



HAL
open science

Experimental study of reactive transport in porous media: application to dissolution coupled with density gradients

Assohoun Ahoulou

► **To cite this version:**

Assohoun Ahoulou. Experimental study of reactive transport in porous media: application to dissolution coupled with density gradients. Hydrology. Université de Lorraine, 2020. English. NNT : 2020LORR0172 . tel-03150910

HAL Id: tel-03150910

<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-03150910v1>

Submitted on 22 Feb 2023

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

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



AVERTISSEMENT

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

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

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

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

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>



Ecole doctorale Sciences et Ingénieries des Sciences Naturelles
(SIRENA)

THESE DE DOCTORAT

Spécialité : Géosciences

Présentée pour obtenir le grade de Docteur de l'Université de Lorraine

par

Assohoun Wilfried Arnaud AHOULOU

Etude expérimentale du transport réactif en milieu poreux : application à la dissolution couplée à des gradients de masse volumique.

Dirigée par Constantin OLTEAN et Anne-Julie TINET

Soutenue publiquement le 10 Décembre 2020

Composition du jury :

Rapporteurs :	Azita AHMADI-SENICHAULT, Professeure,	Université de Bordeaux
	Philippe ACKERER, Directeur de Recherche,	Université de Strasbourg
Examineur :	Laurent OXARANGO, Professeur,	Université Grenoble Alpes
Invité :	Fabrice GOLFIER, MCF-HDR,	Université de Lorraine
Encadrants :	Constantin OLTEAN, MCF-HDR,	Université de Lorraine
	Anne-Julie TINET, MCF,	Université de Lorraine

Je dédie cet ouvrage à :

*DIEU Tout-Puissant, amour et miséricorde. À lui revienne
toute la gloire.*

*La grande Famille **AHOULOU** pour son soutien
inestimable.*

Remerciements

Il convient de noter que la tenue et le bon déroulement de ce travail de thèse ainsi que la rédaction du présent rapport ont été possible grâce à certaines personnes envers lesquelles je tiens à exprimer toute ma profonde gratitude.

Je tiens tout d'abord à remercier mon Directeur de Thèse, **M. Constantin OLTEAN**, Enseignant-chercheur à l'ENSG/Université de Lorraine, de m'avoir proposé un sujet de thèse intéressant, pour son implication, son aide patiente, ses réponses et conseils qui m'ont permis d'avancer dans ma réflexion. Il m'a également permis de développer mes compétences de véritable chercheur.

Je remercie particulièrement ma Co-Directrice de Thèse, **Mme. Anne-Julie TINET**, Enseignante-chercheuse à l'ENSG/Université de Lorraine pour sa collaboration, son grand soutien, sa rigueur scientifique et pour les nombreuses directives reçues pour la bonne réalisation de ce projet de recherche.

Je remercie également **M. Fabrice GOLFIER** Enseignant-chercheur à l'ENSG/Université pour son regard critique et ses idées précieuses reçues au cours de ce projet.

Aussi, je veux exprimer ma profonde reconnaissance à cette équipe dynamique du laboratoire GeoRessources et plus précisément à :

- **M. Eric LEFEVRE**, Ingénieur à GeoRessources, pour sa collaboration, ses explications et ses aides apportées lors de mes essais expérimentaux ;

- **M. Christophe MORLOT**, Responsable de la microtomographie, pour sa précieuse collaboration;

- **Mme Mélanie COUREAU**, pour l'élaboration de mes démarches administratives ;

- Mes collègues Doctorants, pour la bonne ambiance fraternelle ;

- Toute l'équipe GeoRessources, l'équipe Hydrogéomécanique Multi-échelle pour l'accueil au sein de leur effectif.

Résumé

Prédire les instabilités déclenchées par la réaction chimique d'un fluide percolateur traversant une roche soluble constitue un enjeu scientifique majeur pour de nombreux domaines d'application (formations des systèmes karstiques, évolution des fractures, stimulation acide des puits de pétrole ou encore la séquestration et le stockage du CO₂). En effet, la dissolution de la matrice solide conduit souvent à l'apparition et au développement des canaux, appelés wormholes, qui modifient les caractéristiques hydrodynamiques (perméabilité et porosité) du milieu traversé. L'objectif de cette thèse est d'étudier, à travers un programme expérimental de laboratoire, l'influence de la variation des propriétés physiques du fluide percolateur et en particulier la variation de sa masse volumique sur la configuration des wormholes. Autrement dit, il s'agit d'étudier le couplage entre les instabilités chimiques et les instabilités hydrodynamiques induites par le contraste de masse volumique. Dans une première étape, le programme expérimental repose sur l'interprétation des images acquises lors de l'injection d'eau pure (phase « acide ») dans un massif salin (roche « soluble ») reconstitué en 2D via une cellule de type Hele-Shaw et en considérant différentes configurations d'injection. Dans une seconde étape, l'utilisation de la microtomographie à rayon X a permis d'approcher ces effets dans une configuration 3D constituée d'éprouvettes de sels dissoutes par des solutions sous-saturées en sel. Quelle que soit la configuration étudiée, les résultats expérimentaux suggèrent que les régimes de dissolution peuvent encore être décrits par les deux nombres adimensionnels classiques, à savoir les nombres de Damköhler et Péclet. Le diagramme de régime est peu sensible aux variations de contraste de masse volumique, en particulier pour des Péclet relativement forts et Damköhler faibles, mais subit un ralentissement de la propagation du front de dissolution lorsque le nombre de Richardson (rapport des effets gravitationnels et convectifs) augmente. L'analyse des descripteurs morphologiques tels que le volume, l'interface zone dissoute/zone non dissoute, la tortuosité et la distribution de la taille de pores montre que le contraste de masse volumique a une influence non-négligeable sur les régimes de dissolution pour un Richardson moyen à fort. Certains de nos résultats expérimentaux ont pu être confirmés par simulations numériques bidimensionnelles menées avec le logiciel COMSOL Multiphysics®.

Mots-clés : Transport réactif, interactions roche/fluide, wormhole, dissolution, contrastes de masses volumiques, cellule Hele-Shaw

Abstract

Predicting the instabilities triggered by the chemical reaction of a percolating fluid passing through soluble rock is a major scientific challenge for many fields of application (formation of karstic systems, fracture evolution, acid stimulation of oil wells or CO₂ sequestration and storage). Indeed, the dissolution of the solid matrix often leads to the appearance and development of channels, called wormholes, which modify the hydrodynamic characteristics (permeability and porosity) of the crossed medium. The objective of this thesis is to study, through an experimental laboratory program, the influence of the variation of the physical properties of the percolating fluid and in particular the variation of its density on the configuration of the wormholes. In other words, the coupling between chemical and hydrodynamic instabilities induced by density contrast is studied. In a first step, the experimental program is based on the interpretation of images acquired during the injection of pure water ("acid" phase) in a saline massif ("soluble" rock) reconstituted in 2D via a Hele-Shaw type cell and considering different injection configurations. In a second step, the use of X-ray tomography allowed to approach these effects in a 3D configuration consisting of specimens of salts dissolved by under-saturated salt solutions. Whatever the studied configuration, the experimental results suggest that the dissolution regimes can still be described by the two classical adimensional numbers, namely the Damköhler and Péclet numbers. The regime diagram is not very sensitive to variations in density contrast, especially for relatively strong Péclet and weak Damköhler numbers, but suffers a slowing down of the propagation of the dissolution front when the Richardson number (ratio of gravitational and convective effects) increases. The analysis of morphological descriptors such as volume, dissolved/undissolved zone interface, tortuosity and pore size distribution shows that the density contrast has a non-negligible influence on the dissolution regimes for medium to strong Richardson. Some of our experimental results were confirmed by two-dimensional numerical simulations conducted with COMSOL Multiphysics® software.

Keywords: Reactive transport, rock/fluid interactions, wormhole, dissolution, density contrasts, Hele-Shaw cell

Table des matières

Remerciements	i
Résumé	iii
Abstract	iv
Table des matières	v
Liste des figures	viii
Liste des tableaux	xiv
Introduction générale.....	2
I- Contexte général	2
II- Motivation et objectifs de la recherche	3
III- Plan de la thèse.....	4
Chapitre I : État de l’art sur les instabilités induites par les interactions roches-fluides et les instabilités induites par le contraste de masse volumique	7
I- Enjeux de la dissolution et du contraste de masse volumique – Principes	8
II- Notions d’échelles et techniques d’approches des instabilités.....	13
II.1- Notion d’échelle	13
II.2- Techniques d’approches des instabilités induites par les interactions roche-fluides et les propriétés de fluides.....	15
II.2.1- Approches expérimentales	15
II.2.2- Approches numériques.....	16
III- Instabilités induites par le couplage entre le transport et la dissolution	17
III.1- Histoire et classification des régimes d’instabilités induites par la dissolution	19
III.2- Paramètres évalués et pouvant influencer ou expliquer la formation des régimes de dissolutions	25
III.2.1- Nature du fluide et Volume de pores à la percée (PVBT).....	25
III.2.2- Hétérogénéité minéralogique.....	32
III.2.3- Perméabilité et porosité	34
III.2.4- Écoulement et dissolution dans les fractures naturelles	37
IV- Instabilités hydrodynamiques dues au contraste de masse volumique	39
IV.1- Généralités sur les instabilités hydrodynamiques induites par le contraste de masse volumique	39
IV.2- Couplage entre instabilités hydrodynamiques induites par le contraste de masse volumique et instabilités induites par la dissolution.....	42
IV.2.1- Instabilités hydrodynamiques induites par le contraste de masse volumique dans le stockage du CO ₂	43

IV.2.2- Instabilités hydrodynamiques induites par le contraste de masse volumique dans les fractures	49
V- Conclusion partielle	52
Chapitre II : Mise en œuvre expérimentale bidimensionnelle (2D) et tridimensionnelle (3D)	56
I- Mise en œuvre expérimentale bidimensionnelle (2D).....	56
I.1- Matériau utilisé	56
I.2- Dispositifs expérimentaux	57
I.3- Déroulement d'un essai bidimensionnel (2D)	62
I.3.1- Remplissage de la cellule	62
I.3.2- Saturation du milieu poreux	62
I.3.3- Injection et acquisition de données	63
I.3.4- Traitement de données sur ImageJ (Fiji).....	65
I.3.5- Analyse et quantification sur ImageJ (Fiji)	68
II- Mise en œuvre expérimentale tridimensionnelle (3D).....	74
II.1- Matériau utilisé	74
II.2- Dispositifs expérimentaux	76
II.3- Déroulement d'un essai tridimensionnel (3D).....	79
II.3.1- Saturation des éprouvettes de NaCl	79
II.3.2- Phase d'injection et de dissolution.....	79
II.3.3- Acquisition et traitement des données	80
II.3.4- Analyse des données 3D	84
Chapitre III : Résultats et discussions des effets du contraste de masse volumique sur les différents régimes de dissolution bidimensionnels (2D).....	91
I- Experimental insights into the interplay between buoyancy, convection and dissolution reaction	91
II- Compléments d'analyses et discussions du couplage réaction chimique et instabilités hydrodynamiques	125
II.1- Orientation des ramifications en fonction du débit	125
II.2- Distribution de la taille des pores par régimes	126
II.2.1- Distribution de la taille de pores des régimes diffusifs (compacts et coniques). 127	
II.2.2- Distribution de la taille de pores des régimes convectifs (dominants, ramifiés) 129	
III- Simulations numériques de la dissolution couplée aux instabilités hydrodynamiques – Cas de la configuration 2D.....	132
III.1- Introduction	132
III.2- Modèle numérique	133
III.3- Résultats et discussions	135

Chapitre IV : Résultats et discussions des effets du contraste de masse volumique sur les régimes de dissolution tridimensionnels (3D).....	149
I- Introduction.....	149
II- Comparaison globale : régimes de dissolution et PVBT	150
III- Analyse des données de pression	151
IV- Analyse des masses dissoutes à la percée	153
V- Analyse de la courbe PVBT.....	153
VI- Analyse des descripteurs morphologiques.....	156
VI.1- Faible Richardson ($Ri < 10^{-2}$)	156
VI.2- Richardson moyen ($10^{-2} < Ri < 10^{-1}$).....	160
VI.3- Fort Richardson ($Ri > 10^{-1}$)	164
VI.3.1- Régime compact – $Q_{inj} = 1 \text{ ml.h}^{-1}$	164
VI.3.2- Régime conique – $Q_{inj} = 10 \text{ ml.h}^{-1}$	166
VII- Discussion sur les données de porosimétrie au mercure	169
VIII- Conclusion partielle	172
Conclusion générale et perspectives.....	175
Références bibliographiques	clxxxix

Liste des figures

FIGURE 1. Illustration de la dissolution à partir des injections de puits: a) Stimulation de puits de production de pétrole par injection d'acide occasionnant une dissolution. Image tirée de (Maheshwari, 2014); b) Dissolution et création de cavité salines (1) et pompage de la saumure pour l'industrie chimique (2).Image tirée de (Furst, 2018) 9

FIGURE 2. Schéma conceptuel d'un milieu karstique montrant les zones de recharges tiré de (Willems, 2014)..... 10

FIGURE 3. Illustration du comportement de propagation typique des polluants (Propagation, volatilisation et dissolution d'un mélange d'hydrocarbures tiré de (Fagerlund, 2006)..... 11

FIGURE 4. Schéma du processus de séquestration de CO₂ dans les aquifères salins (Jafari Raad and Hassanzadeh, 2016)..... 12

FIGURE 5. Différentes échelles du problème ; a) Échelle du pore ; b) Échelle de Darcy ; c) Échelle de la carotte ; d) Échelle du réservoir..... 14

FIGURE 6. Wormholes engendrés par la dissolution autour d'un puits tiré de la thèse de (Golfier, 2002). A droite, image de wormholes simulés tirée de (Renard, 2007)..... 18

FIGURE 7. Diagramme de comportement (Pe,Ki) d'après Daccord et al (1993)..... 20

FIGURE 8. Diagramme de comportement des régimes de dissolution en fonction de Pe-Da associé aux images de simulations. (Golfier, 2002)..... 24

FIGURE 9. Effets des paramètres opératoires sur le diagramme de classification (Pe, Da) ; a) débit d'injection ; b) température ; c) acide ; La flèche illustre l'effet de la variation du paramètre étudié. (Golfier, 2002)..... 24

FIGURE 10. Profondeur de pénétration de la dissolution en fonction du volume d'acide injecté (Fredd, 2000)..... 27

FIGURE 11. Courbe PVBT tirée de (Maheshwari, 2014) 28

FIGURE 12. Tendances qualitatives des courbes de percée des modèles de simulations 1D, 2D et 3D (Panga et al., 2005)..... 29

FIGURE 13. Volumes de pores à la percée obtenus après injection d'acides différents dans les calcaires. L'optimum change avec le type d'acides tiré de (Fredd and Fogler, 1998b)..... 30

FIGURE 14. Variation du PVBT pour les différents patterns de dissolution en milieu fracturé et non-fracturé tirée de (Liu et al., 2017c)..... 31

FIGURE 15. Influence de la température sur le PVBT; a) Condition isothermique; b) Condition non-isothermique, tirée de (Xue et al., 2019)..... 31

FIGURE 16. Évolution de la perméabilité en fonction de la porosité de deux milieux différents (hétérogène & homogène) ; a) Évolution à $Pe = 0.1$ et b) $Pe = 10$; (Liu et al., 2017b)	33
FIGURE 17. Une visualisation de la convection de Rayleigh-Bénard par (Stasiek and Jewartowski, 2017).....	40
FIGURE 18. Graphe du domaine de stabilité (Charru, 2007).....	41
FIGURE 19. Simulation des instabilités hydrodynamiques par (Philippi et al.,2019). 3 Régimes obtenus: diffusifs, d'instabilités et de panaches avec les nuances de couleurs qui représentent la concentration	42
FIGURE 20. Instabilités hydrodynamiques avec différentes valeurs de Ra ; (Riaz et al., 2006)	46
FIGURE 21. Données expérimentales montrant une dépendance linéaire entre le nombre de Rayleigh et le nombre de Sherwood (Neufeld et al., 2010)	47
FIGURE 22. Régimes d'écoulements pour le contraste de densité (convection naturelle pour $Ra = 5000$) ; (Farajzadeh et al., 2011).....	48
FIGURE 23. Diagramme de comportement 3D des régimes de dissolutions dans les fractures (Oltéan et al.,2013).....	51
FIGURE 24. Variation de la masse volumique des solutions en fonction de la concentration massique en NaCl.....	57
FIGURE 25. Vue schématique de la cellule de type Hele-Shaw	58
FIGURE 26. Cellule scellée dans une structure métallique	59
FIGURE 27. Vue schématique de la tête d'injection (Réservoir). Les dimensions indiquées sont en mm.....	59
FIGURE 28. Dispositifs expérimentaux des essais bidimensionnels (2D) : a) Configuration horizontale ; b) Configuration verticale	61
FIGURE 29. Mise en saturation du milieu.....	63
FIGURE 30. Illustration de la dynamique de la dissolution lors de la phase d'acquisition à différents temps (compilation d'images), couleur blanche $t = 3540s$, couleur rose $t = 5850s$, couleur bleue $t = 9370 s$	64
FIGURE 31. Exemple de la conversion d'image ; a) Image brute RGB b) Image niveaux de gris 8 bits rognée	66
FIGURE 32. Illustration du filtre médian (de rayon 1) sur une image matricielle en transformant le pixel 11 en 5 (valeur médiane des 8 pixels voisins).....	66
FIGURE 33. Traitement des images (traitement et binarisation) (rangée du haut). a) Image rognée ; b) Calcul d'image (a-b) ; c) Image segmentée et binarisée ;.....	67

FIGURE 34. Les histogrammes d'images ; a) Histogramme d'intensité d'une image brute de dissolution avec 3 différentes zones : zone non dissoute, une zone de transition et une zone dissoute avec I les pics des différentes zones ; b) Histogramme d'une image de dissolution segmentée et binarisée avec deux zones distinctes (zone dissoute et zone non dissoute). 68

FIGURE 35. Illustration de la quantification de la zone dissoute zoomée ; a) Image 1 avec une zone dissoute ayant les caractéristiques 632 x 932 pixels segmentée avec la zone dissoute en noir. b) Histogramme de l'image 632 x932 présentant la quantité totale de pixels à 589024 et le nombre de pixels en blanc 447820. La différence donne la surface dissoute de 141204 pixels représentés sur l'histogramme..... 69

FIGURE 36. Illustration de l'estimation du périmètre par la formulation de Cauchy-Crofton a) 4 familles de parallèles (grilles) couvrant la zone dissoute à évaluer b) Une ligne déterminée par deux paramètres (p,θ) 70

FIGURE 37. Illustration de la détermination de la vitesse de front de dissolution; a) Pile d'images avec identification de fronts de dissolutions à chaque pas de temps donné; b) Vue d'ensemble de tous les points de fronts; c) Coordonnées des fronts de dissolution obtenues à partir du ROI Manager 71

FIGURE 38. Illustration des longueurs curvilignes et rectilignes pour la détermination de la tortuosité à partir du squelette d'un wormhole [$\tau = Lc/Lr$]. 72

FIGURE 39. Local thickness (distribution de la taille de pores) ; a) Illustration de la formule avec une sphère de rayon r insérée dans un objet ; b) Image d'un exemple de local thickness généré. Il s'agit d'un wormhole dominant avec une répartition de la taille de pores dont la couleur blanche représente la matrice et les plus grands diamètres sont en couleur noire. ... 73

FIGURE 40. Illustration de la détermination des angles des différentes ramifications 73

FIGURE 41. Échantillonnage des carottes de NaCl ; a) Dispositifs d'échantillonnage ; b) Éprouvette utilisée (L=10.5cm x l =4.8 cm) 74

FIGURE 42. Matériau vu au MEB avec un agrandissement de 250x et une résolution de 200 μm – Observation des cristaux de sel ainsi que des pores. 75

FIGURE 43. Répartition de la porosité en fonction du rayon de pores 75

FIGURE 44. Mise en évidence de la répartition des pores au sein de la matrice de sel à partir d'images tomographiques; a) Vue radiale; b) Vue en coupe transversale 76

FIGURE 45. Vue schématique de la cellule triaxiale 77

FIGURE 46. Dispositifs expérimentaux des essais tridimensionnels (3D); a) Configuration transversale; b) Configuration verticale 78

FIGURE 47. Illustration de la mise en saturation des carottes de NaCl 79

FIGURE 48. Phase d'acquisition tomographique ; a) Tomographe vue de l'intérieur b) Vue schématique des composantes du tomographe ainsi que leurs descriptions, tirées de (Morlot et al., 2016) et modifiée.....	82
FIGURE 49. Procédé d'acquisition de données tomographiques, tiré de (Morlot et al., 2016) et modifié	82
FIGURE 50. Données brutes de tomographie reconstruites à différentes vues. a) Vue radiale suivant l'axe Ox; b) Vue longitudinale première face suivant l'axe Oz; c) Vue longitudinale deuxième face suivant l'axe Oz	83
FIGURE 51. Segmentation de la zone d'intérêt; a) zone d'intérêt extrait de l'image brute; b) Histogramme bimodal de l'image brute comportant une zone dissoute encadrée et la zone saine avec le plus grand pic. La valeur du seuillage pour cet exemple est de 33638 pixels.	85
FIGURE 52. Segmentation d'image brute à image segmentée	85
FIGURE 53. Principe de la morphologie de dilatation et d'érosion utilisant un disque B comme élément structurant tiré de https://imagej.net/MorphoLibJ d'après David Legland et Ignacio Arganda-Carrera. a) X est l'élément de base et B l'élément structurant ; b) Opération de dilation ; c) Opération d'érosion	86
FIGURE 54. Exemple de squelettisation de ramifications. a) Image de base ramification b) Squelette avec 1433 nœuds au total avec 1118 nœuds de branches et 315 nœuds terminaux ; c) Squelettes produits	87
FIGURE 55. Différentes opérations de traitement. a) Régime de dissolution ; b) Opération d'érosion-dilatation permettant d'extraire la branche principale ; c) Résultat de l'opération de soustraction de l'image a et b permettant d'isoler les ramifications ; e) Résultat de l'opération de squelettisation de la branche principale ; f) Résultat de l'opération de squelettisation des ramifications.....	88
FIGURE 56. Orientation des ramifications en fonction du débit (configuration verticale & horizontale).....	126
FIGURE 57. a) Distribution de la taille de pores pour le régime compact $Q_{inj} = 0.1 \text{ ml.h}^{-1}$; b) Représentation visuelle de l'ensemble de la structure poreuse avec zoom - (1) Configuration horizontale (BH0.1) et (2) Configuration verticale (BV0.1-2)	128
FIGURE 58. Distribution de la taille de pores pour le régime conique ; a) Graphe de distribution de la taille de pores pour le débit $Q_{inj} = 2 \text{ ml.h}^{-1}$; b) Images local thickness en configuration horizontale (1) (BH2) et verticale (2) (BV2) avec zoom $Q_{inj} = 2 \text{ ml.h}^{-1}$; c) Graphe de distribution de la taille de pores pour le débit $Q_{inj} = 1 \text{ ml.h}^{-1}$; d) Images local thickness en configuration horizontale (3) (BH1) et verticale (4) (BV1) avec zoom pour $Q_{inj} = 1 \text{ ml.h}^{-1}$.	129

FIGURE 59. a) Distribution de la taille de pores pour le régime ramifié $Q_{inj} = 10 \text{ ml.h}^{-1}$; b) Représentation visuelle de l'ensemble de la structure poreuse avec zoom – Configuration horizontale (1) (BH10) et (2) Configuration verticale (2) (BV10)	130
FIGURE 60. a) Distribution de la taille de pores pour le régime ramifié $Q_{inj} = 40 \text{ ml.h}^{-1}$; b) représentation visuelle de l'ensemble de la structure poreuse avec zoom – Configuration horizontale (BH40_2) (1) et Configuration verticale (BV40_2) (2)	131
FIGURE 61. Distribution de la taille de pores pour le régime ramifié $Q_{inj} = 100 \text{ ml.h}^{-1}$	132
FIGURE 62. Représentation schématique du domaine d'étude.....	135
FIGURE 63. Régimes de dissolution – configuration horizontale – I) Concentrations réduites des différents régimes ; II) Porosité des différents régimes ; a) Uniforme ; b) Ramifié ; c) Dominant ; d) Conique).....	136
FIGURE 64. Régimes de dissolution – configuration verticale- I) Concentrations réduites des différents régimes ; II) Porosité des différents régimes - a) Uniforme ; b) Ramifié ; c) Dominant ; d) Compact	138
FIGURE 65. Champs de vitesses ; a) Champs de vitesses des différents régimes de dissolution ; b) Zoom montrant les cellules contrarotatives formées pour le régime ramifié à gauche et le régime dominant à droite ; c) Sections montrant l'évolution des champs de vitesses à gauche et de la masse volumique à droite	138
FIGURE 66. Descripteurs morphologiques – Régime ramifié – a) Surfaces dissoutes en fonction du temps ; b) Périmètres en fonction du temps.....	140
FIGURE 67. Distribution temporelle $t = 3.5\text{s}$ (couleur bleue), $t = 4.0\text{s}$ (couleur verte) et $t = 4.5\text{s}$ (couleur rouge) de la vitesse verticale à la base des wormholes ($y = 0.006 \text{ m}$).....	141
FIGURE 68. Descripteurs morphologiques – Régime dominant – a) Surfaces dissoutes en fonction du temps ; b) périmètres en fonction du temps	142
FIGURE 69. Résultats numériques des porosités des régimes compacts avec et sans contrastes de masse volumiques ; a) $t = 5000 \text{ s}$; b) $t = 10\,000\text{s}$	144
FIGURE 70. Évolution du champ de concentration montrant l'apparition des cellules contrarotatives des régimes compacts ; a) $t = 5000\text{s}$; b) $t = 10\,000\text{s}$	144
FIGURE 71. Graphe PVBT selon les résultats numériques.....	145
FIGURE 72. Schéma de Synthèse.....	146
FIGURE 73. Classification des essais selon le diagramme proposé dans Golfier, 2002.	150
FIGURE 74. Illustration de la détermination des temps de percée sur les graphes de pressions	151

FIGURE 75. Graphes de Pressions ; a-b) $Q_{inj} = 1000 \text{ ml.h}^{-1}$; c-d) $Q_{inj} = 100 \text{ ml.h}^{-1}$; e-f) $Q_{inj} = 10 \text{ ml.h}^{-1}$; g-h) $Q_{inj} = 1 \text{ ml.h}^{-1}$	152
FIGURE 76. Pourcentage de masses dissoutes en fonction du débit d'injection	153
FIGURE 77. Courbes PVBT en configuration tridimensionnelle 3D; a) $C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$; b) $C_{inj} = 160 \text{ g.l}^{-1}$	155
FIGURE 78. Données tomographiques segmentées montrant les différents régimes de dissolutions ramifiés - $Ri < 10^{-2}$; a) $C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$ en configuration vertical; b) $C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$ en configuration transversale; c) $C_{inj} = 160 \text{ g.l}^{-1}$ en configuration verticale	157
FIGURE 79. Ratio de volume en fonction du ratio de masse – $Ri < 10^{-2}$	157
FIGURE 80. Longueur curviligne en fonction de la longueur rectiligne - $Ri < 10^{-2}$	159
FIGURE 81. Volume en fonction du rayon $Ri < 10^{-2}$	160
FIGURE 82. Données tomographiques segmentées montrant les différents Régimes de dissolutions dominants - $10^{-2} < Ri < 10^{-1}$; a) $C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$ en configuration vertical; b) $C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$ en configuration horizontale; c) $C_{inj} = 160 \text{ g.l}^{-1}$ en configuration verticale ; d) $C_{inj} = 160 \text{ g.l}^{-1}$ en configuration horizontale	161
FIGURE 83. Ratio de volume en fonction du ratio de masse – $10^{-2} < Ri < 10^{-1}$	161
FIGURE 84. Longueur curviligne en fonction de la longueur rectiligne – $10^{-2} < Ri < 10^{-1}$	163
FIGURE 85. Volume en fonction du rayon $10^{-2} < Ri < 10^{-1}$	163
FIGURE 86. Ratio de volume en fonction du ratio de masse – $Ri > 10^{-1}$	164
FIGURE 87. Données tomographiques segmentées montrant les Régimes de dissolutions compacts- $Ri > 10^{-1}$; a) $C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$ en configuration vertical; b) $C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$ en configuration horizontale	165
FIGURE 88. Illustration des effets de la sélection ROI sur le volume dissous	166
FIGURE 89. Données tomographiques segmentées montrant les Régimes de dissolutions compacts- $Ri > 10^{-1}$; a) $C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$ en configuration vertical; b) $C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$ en configuration horizontale; c) $C_{inj} = 160 \text{ g.l}^{-1}$ en configuration verticale ; d) $C_{inj} = 160 \text{ g.l}^{-1}$ en configuration horizontale	167
FIGURE 90. Forte présence de microrugosités – Configuration verticale – $C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$	168
FIGURE 91. Faible présence de microrugosités – Configuration verticale – $C_{inj} = 160 \text{ g.l}^{-1}$	168
FIGURE 92. Illustration des zones de prélèvement pour les essais de porosimétrie mercure	170
FIGURE 93. Données issue des essais de porosimétrie au mercure ; a) et c) Spectre d'intrusions (distribution de taille de pores) b) et d) Variation de la porosité en fonction de la taille des pores;	171

Liste des tableaux

TABLEAU 1. Les différents régimes de dissolution Fredd et Miller, 2000 avec les images de simulations numériques 2D de (Liu et al., 2017d)	21
TABLEAU 2. Paramètres fixes au cours de la phase d'acquisition.....	81
TABLEAU 3. Données numériques.....	135
TABLEAU 4. Caractéristiques morphologiques - $Ri < 10^{-2}$	158
TABLEAU 5. Caractéristiques morphologiques - $10^{-2} < Ri < 10^{-1}$	162
TABLEAU 6. Caractéristiques morphologiques $Ri > 10^{-1}$	167



INTRODUCTION GENERALE

INTRODUCTION GENERALE

I- Contexte général

La dissolution est d'une importance fondamentale dans une variété de systèmes géologiques. Elle joue un rôle primordial dans bon nombre d'applications telles que la formation des karsts, la séquestration de CO₂, l'évaluation des risques et de la migration des polluants dans les eaux souterraines, l'exploitation des mines de sel ou encore la stimulation des réservoirs pétroliers. Le mécanisme de dissolution en milieu poreux a été longuement étudié sous la thématique du transport réactif qui concerne les interactions roches-fluides ainsi que les phénomènes bio-physico-chimiques associés. Il s'agit donc d'un couplage entre le transport, l'hydrodynamisme et la géochimie (Daccord, 1987; Daccord et al., 1993; Glover and Guin, 1973; Golfier et al., 2002; Liu et al., 2017a; Min et al., 2016a; Szymczak and Ladd, 2011a). Une connaissance poussée de ces phénomènes implique des tests expérimentaux et numériques à travers différentes échelles dont l'objectif est de comprendre les principes fondamentaux qui régissent leurs dynamiques. Par ailleurs, lors du transport réactif, lorsqu'un fluide est injecté dans une matrice poreuse, il réagit avec la matrice solide. Ces interactions roches-fluides conduisent à des instabilités formant des canaux d'écoulement préférentiels appelés wormholes. Regroupés en cinq régimes (régimes compacts, coniques, dominants, ramifiés et uniformes), leurs formes peuvent être classées en fonction des nombres adimensionnels tels que le nombre de Péclet et le nombre de Damköhler (Budek and Szymczak, 2012; Golfier et al., 2002). En outre, le développement de ces instabilités dépend des paramètres opératoires (débit d'injection du fluide, le type de fluide), de la nature de la matrice poreuse et ses caractéristiques (porosité, perméabilité, hétérogénéité, réactivité, ...) et des conditions thermodynamiques (pression, température) (Golfier et al., 2002). Si cette problématique est étudiée tant d'un point de vue expérimental que numérique depuis de nombreuses années, la littérature sur le sujet met en avant les enjeux des effets d'échelles et le rôle prépondérant des effets locaux sur ces phénomènes à des échelles plus grandes. Toutefois, malgré les études expérimentales et numériques réalisées sur ces régimes de dissolution, certains aspects restent peu connus ou ne sont pas pris en compte dans les analyses. Il s'agit par exemple des variations locales de propriétés du fluide telles que la masse volumique et/ou la viscosité dynamique du fluide sous l'effet de la dissolution. En effet, la différence de masse volumique entre le fluide saturant le

milieu poreux et le fluide injecté peut induire des instabilités hydrodynamiques qui peuvent impacter et/ou favoriser la formation des canaux de dissolution. Pour la plupart des problèmes, par exemple dans les cavités salines, nous pouvons avoir un fort gradient de concentration en raison de la grande solubilité du sel autour de l'interface solide/liquide (Luo et al., 2015). Négliger ces forts gradients peut entraîner des approximations grossières dans la prédiction de la dissolution (Luo et al., 2015). Ces variations de masse volumique ont été généralement étudiées dans le cas de la dissolution de CO₂ (Emami-Meybodi et al., 2015; Islam et al., 2014; Lu et al., 2017; Riaz et al., 2006; Sainz-Garcia et al., 2017; Slim et al., 2013; Wang et al., 2016) mais la mise en évidence de leurs impacts sur les wormholes restent quasi inexistantes dans la littérature.

II- Motivation et objectifs de la recherche

L'objectif général de cette thèse est de contribuer à cette problématique de dissolution en milieu poreux couplée aux effets du contraste de masse volumique via une démarche incluant à la fois l'expérimentation, le traitement d'image et dans une moindre mesure la modélisation numérique. Autrement dit, le but de ces travaux est de répondre à la question suivante : quel est l'impact des instabilités hydrodynamiques sur les instabilités induites par la dissolution ?

Plus précisément, les sous-objectifs visés par cette thèse sont donc de :

- (i) Améliorer la compréhension sur le rôle des instabilités hydrodynamiques sur les propriétés morphologiques des wormholes.
- (ii) Fournir les informations fondamentales sur la compréhension du développement des wormholes lorsque celui-ci est soumis à une compétition entre forces gravitationnelles et forces convectives ;
- (iii) Comprendre l'évolution du champ de concentration au sein de la structure des wormholes lorsque celui-ci est soumis aux forces convectives, à la dissolution et aux effets du contraste de masse volumique.

III- Plan de la thèse

La thèse est répartie en 4 principaux chapitres :

- (i) Le chapitre 1 présente l'état de l'art des différents travaux réalisés (expérimentaux & numériques) sur les instabilités de dissolution et les instabilités hydrodynamiques ainsi que leurs différents champs d'applications.
- (ii) Le chapitre 2 fait l'inventaire des différentes techniques et méthodologies employées permettant l'acquisition des différentes données.
- (iii) Le chapitre 3 présentera les résultats d'une étude expérimentale de la dissolution d'un massif sel/plâtre en cellule de type Hele-Shaw (2D) sous différentes dispositions (verticale ou horizontale) et paramètres opératoires (débit d'injection). En particulier, seront présentées et interprétées les données morphologiques issues du traitement des images acquises par photographies. Ces résultats seront par ailleurs confrontés à une étude numérique réalisée sous Comsol Multiphysics®.
- (iv) Le chapitre 4 présentera les résultats d'une étude expérimentale en carotte de sel (3D) sous différentes dispositions (verticale ou transversale) et paramètres opératoires (débit et concentration d'injection) avec imagerie par microtomographie à rayon X.



CHAPITRE I :

**ETAT DE L'ART SUR LES INSTABILITES
INDUITES PAR LES INTERACTIONS ROCHES-
FLUIDES ET LES INSTABILITES INDUITES PAR
LE CONTRASTE DE MASSE VOLUMIQUE**

CHAPITRE I : ETAT DE L'ART SUR LES INSTABILITES INDUITES PAR LES INTERACTIONS ROCHES-FLUIDES ET LES INSTABILITES INDUITES PAR LE CONTRASTE DE MASSE VOLUMIQUE

Introduction

Les interactions roches-fluides et/ou fluides-fluides conduisent souvent à l'apparition et au développement des figures géométriques de configurations aléatoires appelées instabilités. Les instabilités roches-fluides sont induites par la dissolution de la roche par un fluide réactif tandis que les instabilités fluides-fluides sont généralement dues aux propriétés physiques différentes (masse volumique et/ou viscosité dynamique) des fluides mis en jeu. Afin de connaître les effets de l'une sur l'autre, il s'avère nécessaire de faire un bilan des travaux antérieurs réalisés sur chaque type d'instabilité. L'objectif ici est donc de faire ressortir les paramètres importants à contrôler ainsi que les mécanismes physico-chimiques qui les régissent. Plus précisément, nous allons d'abord nous intéresser aux enjeux et applications de la dissolution et aux notions d'échelles ainsi que les techniques d'approches utilisées dans l'étude des deux types d'instabilités. Ensuite, nous allons détailler les travaux portant sur les instabilités induites par les interactions roches-fluides afin de connaître, entre autres, leurs modes de formations, leurs conditions de développements, ainsi que les paramètres physico-chimiques qui les influencent. Et enfin, notre intérêt portera sur les instabilités induites par le contraste de masse volumique (fluide/fluide) en spécifiant leurs différents modes de déclenchements, leurs conditions de formations ou encore leurs propagations et développements.

I- Enjeux de la dissolution et du contraste de masse volumique – Principes

Les instabilités induites par le couplage entre l'écoulement, le transport, la dissolution et le contraste de masses volumiques trouvent leurs applications dans différents secteurs d'activités notamment :

- (i) **Optimisation de puits : l'ingénierie pétrolière et minière** (Babaei and Sedighi, 2018; Cohen et al., 2008; Daccord and Lenormand', 1993; Fredd, 2000; Izgec et al., 2010; Lagneau, 2011; Maheshwari, 2014; Schechter and Gidley, 1969; Simon, 2012).

Dans le cas de l'optimisation des puits, une solution acide est injectée dans les puits à des pressions inférieures à la pression de rupture de la roche. En ingénierie pétrolière par exemple, la migration de l'acide injecté engendre la dissolution des minéraux du réservoir créant ainsi des canaux d'écoulements (Figure 1.a). Ce mécanisme de dissolution augmente par conséquent la perméabilité des zones endommagées dans la région proche du puits. Dès lors, la productivité du puits qui est intimement liée au comportement de la roche réservoir s'améliore. Par ailleurs, cette dissolution issue de l'interaction roche-fluide est prise en considération tout en négligeant l'existence d'un éventuel contraste de masse volumique entre les fluides locaux et de l'acide injecté.

En extraction minière, ces injections d'acides in situ consistent principalement à extraire une substance minérale par sa mise en solution dans la formation géologique qui la contient (Simon, 2012). En effet, cette technique appelée la « récupération in situ » consiste à dissoudre le minéral que l'on veut exploiter tout en faisant circuler une solution acide capable de le dissoudre. La solution minéralisée est ensuite pompée à travers des puits de récupération avant d'effectuer des traitements de séparation.

Dans les cavités salines, des puits sont utilisés pour injecter de l'eau afin de dissoudre le massif de sel (gypse) (Figure 1.b). Cette dissolution du massif de sel permet d'une part de pomper la saumure résultante et de la retraiter et d'autre part

d'utiliser la cavité créée par le mécanisme de dissolution pour les stockages souterrains (e.g., hydrogène) (Younes et al., 2020).

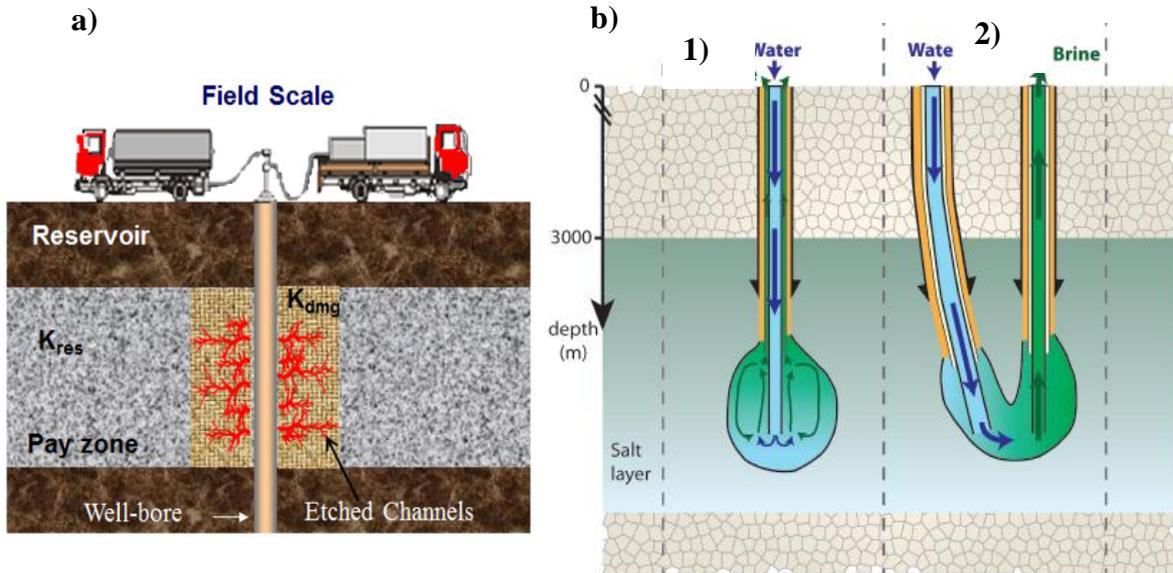


FIGURE 1. Illustration de la dissolution à partir des injections de puits: a) Stimulation de puits de production de pétrole par injection d'acide occasionnant une dissolution. Image tirée de (Maheshwari, 2014); b) Dissolution et création de cavité salines (1) et pompage de la saumure pour l'industrie chimique (2).Image tirée de (Furst, 2018)

- (ii) **Systèmes hydrogéologiques et genèse des systèmes karstiques et fracturés** (Cabeza et al., 2015; Detwiler, 2010; Ford, 2006; Oltéan et al., 2013; Szymczak and Ladd, 2009; Yu and Ladd, 2010).

Les systèmes karstiques sont l'ensemble de dormes de surface et souterraines résultant de la dissolution de calcaires ou de dolomies par les eaux souterraines rendues acides par le dioxyde de carbones (Valois, 2014) (Figure 2). Cette infiltration de l'eau dans ces formations, principalement des carbonates, conduit au mécanisme de dissolution engendrant des canaux d'écoulements qui confèrent au milieu sa morphologie.

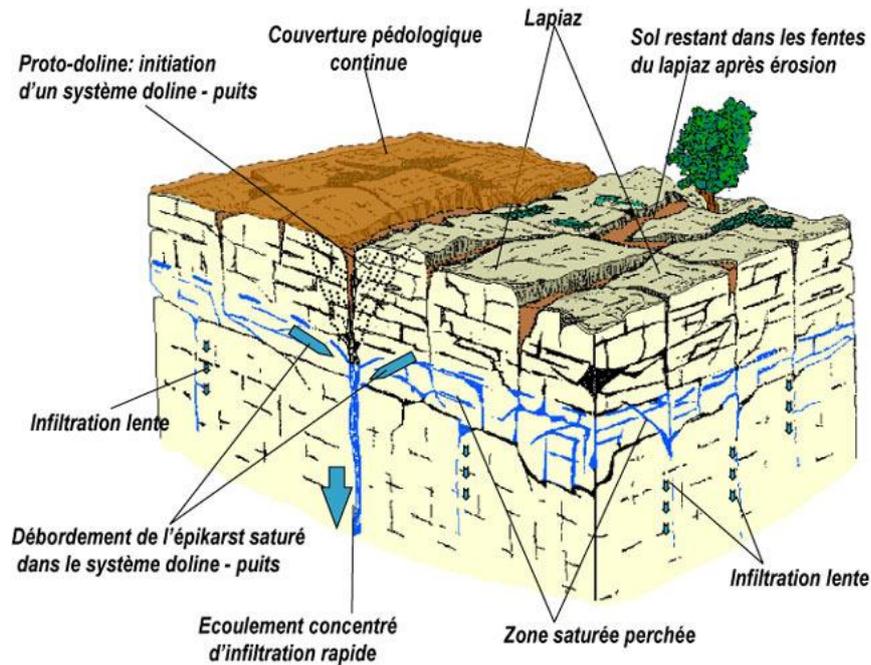


FIGURE 2. Schéma conceptuel d'un milieu karstique montrant les zones de recharges tiré de (Willems, 2014)

- (iii) **Problématiques environnementales** (Fang et al., 2011; Jakobsen et al., 2018; Mayer et al., 2002; Mylopoulos et al., 1999; Steefel et al., 2015; Wallis et al., 2011; Walter et al., 1994):

Les études de transport réactif, principalement la dissolution dans les problématiques environnementales, ont pris de l'ampleur ces dernières années compte tenu du fait de la contamination croissante des eaux souterraines et des sols par les activités anthropiques (pollution agricole, pollutions liée au transport (e.g. routier), pollutions industrielles ou ménagères) (Walter et al., 1994). En effet, les études de transfert de polluants permettent le développement des méthodes et techniques visant à résoudre des problèmes auxquels est confrontée la planète notamment le changement climatique, la remédiation des sols contaminés et la prévention de la pollution (Steefel et al., 2015).

Les pollutions prenant en compte les effets du contraste de masse volumique concernent essentiellement les pollutions acides dues à des fuites et qui engendreront de la dissolution de la matière organique. Une illustration du comportement de propagation d'un polluant est donnée par la figure 3.

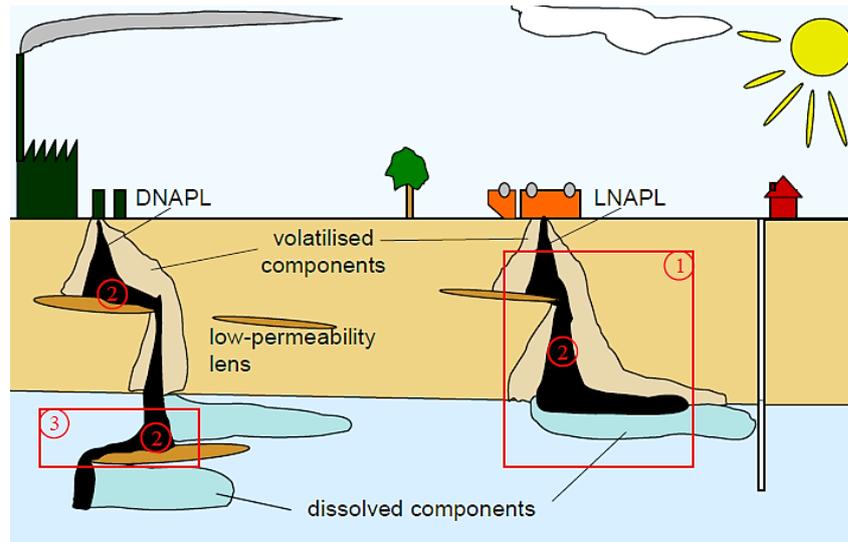


FIGURE 3. Illustration du comportement de propagation typique des polluants (Propagation, volatilisation et dissolution d'un mélange d'hydrocarbures tiré de (Fagerlund, 2006)

- (iv) **Séquestration de CO₂** (Alt-Epping and Diamond, 2017; Bacci et al., 2011; Carroll et al., 2013; Dashtian et al., 2019; Emami-Meybodi et al., 2015; Ennis-King and Paterson, 2007; Gao et al., 2017; Yang et al., 2016) (Ennis-King, 2007 ; Bacci, 2011, Ziedouni, 2009).

Le stockage de CO₂ dans les réservoirs géologiques souterrains apparaît comme étant une solution incontournable permettant la stabilisation et la réduction importante de la teneur de CO₂ dans l'atmosphère (Jean-Baptiste and Ducroux, 2003). Cependant, l'un des défis majeurs du stockage géologique du CO₂ reste la prédiction, la surveillance et la gestion du risque de fuite dans les voies naturelles et artificielles telles que les fractures, les failles, la dissolution de la roche (Hassanzadeh et al., 2009). En effet, le stockage consiste à injecter du CO₂ dans un aquifère salin. L'accélération de la dissolution du CO₂ par injection dans la saumure augmente le taux de piégeage de la solubilité dans les aquifères salins et augmente donc la sécurité de stockage (Hassanzadeh et al., 2009).

La dissolution et la précipitation sont des mécanismes très importants dans la séquestration géologique de CO₂ dans les réservoirs. Ils changent les propriétés de la matrice solide et poreuse telles que la densité apparente, la microporosité, la conductivité hydraulique mais également les connexions des canaux de pores (Tian

and Wang, 2018). De plus, la dissolution du CO₂ entraîne une légère augmentation de la masse volumique de la phase aqueuse avec des conséquences sur son transport dans les formations aquifères (Pruess and Zhang, 2008). Le CO₂ injecté remonte dans la partie supérieure de l'aquifère salin, se dissout dans la saumure sous-jacente créant une couche plus dense que la saumure initiale. Sous l'action du contraste de masse volumique dans le champ de gravité, cette couche peut devenir instable entraînant l'apparition et le développement d'un régime convectif, i.e., des cellules convectives contrarotatives, traduit par le développement des doigts convectifs à la « zone d'interface » (Figure 4). Selon (Lapwood, 1948), cette convection induite par le contraste de masse volumique se produit lorsque le nombre de Rayleigh Ra est supérieur à $4\pi^2$. Au fur et à mesure que ces instabilités augmentent, elles migrent vers le fond de la formation par convection (Figure 4). Cela accélère la dissolution en amenant de la saumure fraîche (c'est-à-dire de la saumure sans le CO₂ dissous) à l'interface CO₂-saumure et en accentuant le gradient de concentration en CO₂ (Emami-Meybodi et al., 2015). Il est donc important d'étudier ses effets générés par le contraste de masse volumique et la dissolution.

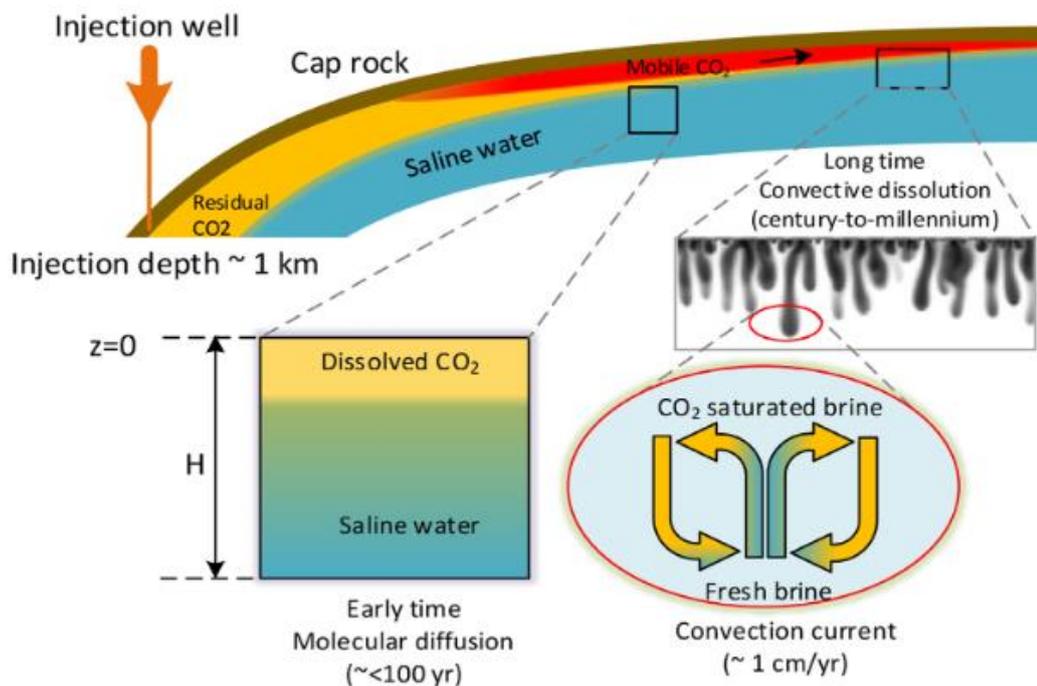


FIGURE 4. Schéma du processus de séquestration de CO₂ dans les aquifères salins (Jafari Raad and Hassanzadeh, 2016)

II- Notions d'échelles et techniques d'approches des instabilités

II.1- Notion d'échelle

Définir l'échelle d'étude dans l'analyse des instabilités est primordiale. En effet, la variabilité de la taille et les caractéristiques des instabilités ont amené les chercheurs à les étudier à différentes échelles. D'une manière générale, trois principales échelles dans l'étude des instabilités peuvent être évoquées (Figure 5) :

- Échelle microscopique (échelle du pores en μm) (Chen and Zhang, 2010a; Chen et al., 2018a; Huber et al., 2014): C'est l'échelle à laquelle l'on décrit les processus fondamentaux avec des physiques bien connues et la géométrie exacte du milieu. L'écoulement du fluide est décrit par la loi de Navier-Stokes et les deux phases considérées dans ce cas sont la phase fluide et la phase solide (Figure 5.a). Cette échelle fournit le plus de détails mais présente une limite quant à la représentativité du milieu.
- Échelle macroscopique (mm-cm) : Elle comprend l'échelle de Darcy et l'échelle de la carotte :
 - Échelle locale ou échelle de Darcy (Emami-Meybodi et al., 2015; Golfier et al., 2002; Liu et al., 2017a; Lu et al., 2017; Slim et al., 2013; Szymczak and Ladd, 2011a): Cette échelle est caractérisée par l'existence d'un volume suffisamment grand, appelé VER (Volume Élémentaire Représentatif) défini à partir de la matrice poreuse initiale. À l'échelle locale, deux régions sont identifiées : la région fluide du canal de dissolution et celle du milieu poreux (Figure 5.b).
 - Échelle de la carotte : Pour cette échelle, le volume de référence (VER) doit être choisi afin qu'il puisse inclure les effets locaux de dissolution (Figure 5.c). En effet, cette définition du VER est un outil indispensable permettant d'effectuer le passage entre échelles et de comprendre aisément les éventuels mécanismes aux grandes échelles. Pour cette échelle, en plus de la matrice et la région fluide, une zone de transition entre les deux phases est considérée.
- Grande échelle (échelle du réservoir) (m-km). Il s'agit de l'échelle de l'application et cette échelle est difficilement contrôlable vu les dimensions. (Figure 5.d).

Rappelons que des possibilités de changement d'échelle définies grâce à différentes méthodes comme la prise de moyennes volumiques (Ahmadi et al., 2001; Golfier et al., 2002) ou la théorie de l'homogénéisation (Amanbek et al., 2019; Xu, 2012) permettent d'étudier les mécanismes à petite échelle afin de les transposer aux grandes échelles.

Le présent projet de recherche s'effectuera à l'échelle locale. L'intérêt de travailler sur cette échelle est de pouvoir prendre en considération les propriétés microscopiques et macroscopiques de la dissolution.

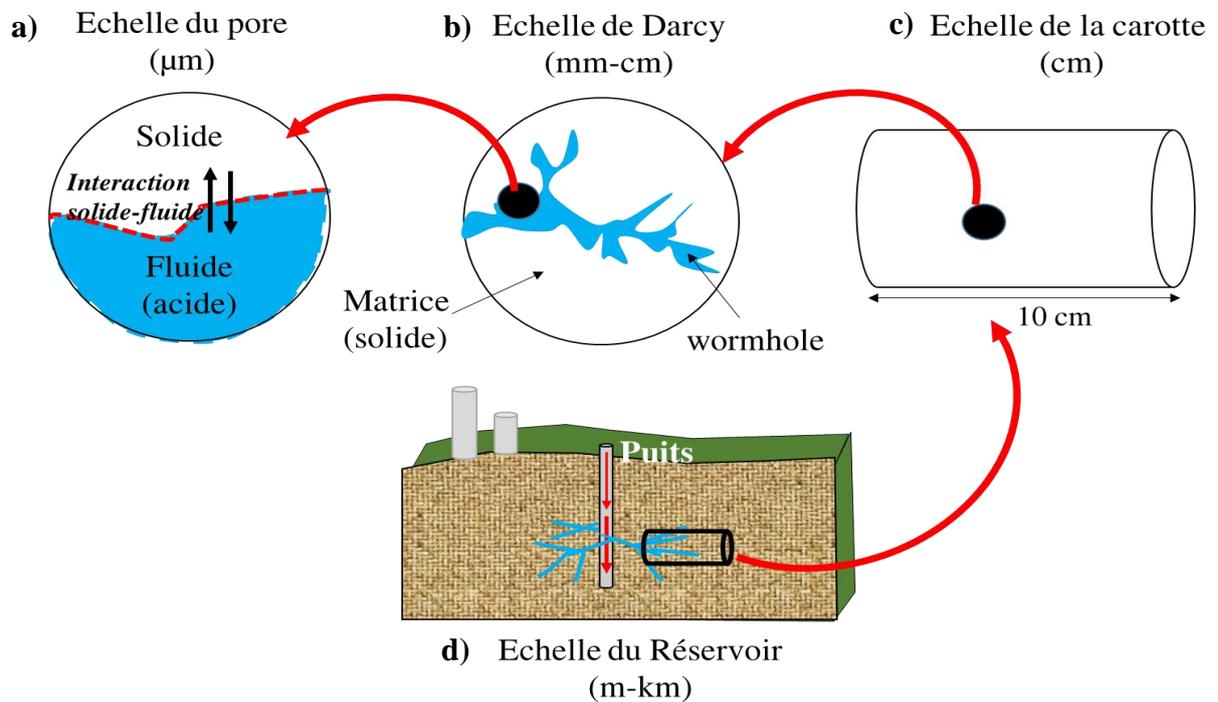


FIGURE 5. Différentes échelles du problème ; a) Échelle du pore ; b) Échelle de Darcy ; c) Échelle de la carotte ; d) Échelle du réservoir

II.2- Techniques d'approches des instabilités induites par les interactions roche-fluides et les propriétés de fluides

Dans cette partie, notre objectif est de présenter une synthèse de travaux basés sur des approches tant expérimentales que numériques applicables à l'étude des instabilités chimiques et hydrodynamiques.

II.2.1- Approches expérimentales

La plupart des modèles expérimentaux utilisés dans le cadre de la dissolution en milieux poreux ont été envisagés et conçus à l'échelle macroscopique, i.e., l'échelle de Darcy. Ils ont permis d'approfondir la compréhension des processus de dissolution entraînant l'apparition et le développement des instabilités. Quant aux études portant sur les instabilités hydrodynamiques (convection naturelle), des modèles physiques ont été souvent réalisés en matériaux transparents permettant de visualiser leurs modes de déclenchement et leurs propagations spatio-temporelles. Il faut cependant noter que le choix du système roche-fluide ou fluide-fluide pour l'expérimentation reste déterminant. En effet, dans les interactions roches-fluides, le choix du système implique la maîtrise de la chimie et de la composition minéralogique de la roche ainsi que les propriétés du fluide réactif. Ceci vient du fait que c'est le fluide injecté qui occasionne une altération de la partie réactive de la matrice en modifiant fortement les propriétés intrinsèques du milieu (perméabilité, porosité) (système roche-fluide) (Renard, 2007). En revanche, pour le système fluide-fluide, ce sont les propriétés physiques des fluides telles que la masse volumique, la concentration et/ou la viscosité qui doivent être considérées.

Dans la littérature, les milieux poreux majoritairement utilisés dans l'expérimentation des études de dissolution sont les carottes de carbonates (dolomites, calcites, calcaire...) et roches évaporites (halites) consolidées, fracturées ou encore des milieux granulaires reconstitués. Les analyses et les observations effectuées sur des roches carbonatées sont souvent menées dans des configurations tridimensionnelles (3D) sur des carottes de différentes dimensions insérées ou non dans des dispositifs particuliers « coreflood » (Gharbi et al., 2013; Gray et al., 2016; Menke et al., 2015, 2017, 2018a). Ces dispositifs permettent de combiner des fluides lors de l'injection ou encore de maîtriser les conditions de températures et pressions

élevées pour simuler des réservoirs spécifiques (e.g. des réservoirs de carbonates). Quant aux essais bidimensionnels (2D), on peut citer les travaux menés par (Golfier et al., 2002; Oltéan et al., 2013) dans des cellules de type Hele-Shaw. Le choix d'un tel dispositif permet de visualiser en temps réel la dynamique de la dissolution et d'ajuster les paramètres opératoires impactant le développement des instabilités. Notons que les cellules de Hele-Shaw sont également utilisées comme dispositif expérimental dans l'étude des instabilités hydrodynamiques générées par un contraste de masse volumique et/ou viscosité dynamique (Ching et al., 2017; Neufeld et al., 2010; Slim et al., 2013; Taheri et al., 2018; Tsai et al., 2013). En ce qui concerne la phase d'acquisition des données, elle peut être soit post-mortem, soit dans le temps via une acquisition des données en dynamique impliquant l'utilisation d'appareils photo numériques, des lasers ou encore de la radiographie / microtomographie à rayon X.

La photographie et la microtomographie à rayon X sont devenues des outils incontournables pour les études d'écoulements des fluides complexes en milieux poreux. Ces techniques constituent un moyen précieux pour décrire et comprendre les interactions roches-fluides (Qiu et al., 2018). Leurs utilisations couvrent deux domaines qui sont la caractérisation du milieu poreux et la visualisation de l'écoulement du fluide. En effet, ces outils n'affectent pas la structure interne de l'échantillon ou le domaine d'étude au cours des phases d'acquisitions des données (Duliu, 1999). Néanmoins, ils nécessitent plusieurs séquences de traitement afin de faire ressortir le résultat escompté (Kaestner et al., 2008). De nombreuses propriétés essentielles pour comprendre le mécanisme de transports réactifs telles que la répartition de la taille des pores, la porosité totale et effective, la tortuosité et le coefficient de diffusion peuvent être estimées grâce à ces deux techniques. À titre d'exemple, nous pouvons citer les études réalisées par (Li et al., 2019; Luquot et al., 2016; Oliveira et al., 2011). Toutes ces techniques d'approches physiques continuent d'être développées et améliorées afin de mieux comprendre les mécanismes d'instabilités (chimiques et hydrodynamiques).

II.2.2- Approches numériques

Les modèles numériques constituent des outils performants complémentaires aux études expérimentales. Appliqués aux études de dissolutions, ils peuvent être utilisés aussi bien en configuration monodimensionnelle (1D) (Panga et al., 2005), que bidimensionnelles (2D) (Cohen et al., 2008; Golfier et al., 2002; Kalia and Balakotaiah, 2007; Oltéan et al., 2013) voire

tridimensionnelles (3D) (Liu et al., 2016; Maheshwari et al., 2013; Qiu et al., 2018; Tian and Wang, 2018; Yang et al., 2016). Il est à noter que dans la littérature, les différents modèles numériques sont : les modèles stochastiques (Daccord, 1987; Fredd and Fogler, 1998b); les modèles du tube capillaire (Hung, et al., 1989; Molins et al., 2014; Wang, Y et al., 1993), les modèles du réseau (Budek and Szymczak, 2012; Daccord, 1987; Liu et al., 2017c; Schechter and Gidley, 1969; Yang et al., 2016) ou encore les modèles du continuum (Budek and Szymczak, 2012; Daccord, 1987; Liu et al., 2017c; Schechter and Gidley, 1969; Yang et al., 2016) et les modèles à l'échelle des pores (Chen and Zhang, 2010b; Chen et al., 2018a; Huber et al., 2014; Kang et al., 2014a; Liu and Mostaghimi, 2017; Norouzi Rad et al., 2013; Yang et al., 2016).

III- Instabilités induites par le couplage entre le transport et la dissolution

Lorsqu'un fluide réactif est injecté dans un milieu poreux, il est susceptible de dissoudre les minéraux en se propageant initialement à travers les zones de fortes perméabilités, ce qui conduit à l'apparition et au développement d'un front de dissolution plus ou moins instable. Selon (Renard, 2007) ce processus de dissolution peut être vu comme un enchaînement de trois étapes qui sont le transport du fluide injecté grâce aux mécanismes de diffusion et d'advection, la réaction chimique qui se déroule aux interfaces solides-fluides et enfin le transport des produits de réactions. En effet, ces instabilités générées par le couplage entre écoulement et la dissolution créent des canaux d'écoulement préférentiels appelés wormholes dont la taille varie de celles des pores à quelques millimètres (Golfier et al., 2002) (Figure 6). Elles conduisent donc à une modification structurelle de la phase solide.

Selon (Szymczak and Ladd, 2011a), le processus de dissolution en milieu poreux pourrait être attribué à l'existence de deux types d'instabilités : d'une part, une instabilité initiale qualifiée d'instabilité d'entrée et qui opère sur n'importe quel champ initial de porosité et d'autre part, une instabilité de front localisée sur le front de dissolution lors de sa propagation. L'importance relative de ces instabilités sur la propagation instable ou non du front de dissolution dépend de la quantité de matière soluble contenue dans la roche initiale (Szymczak and Ladd, 2011a).

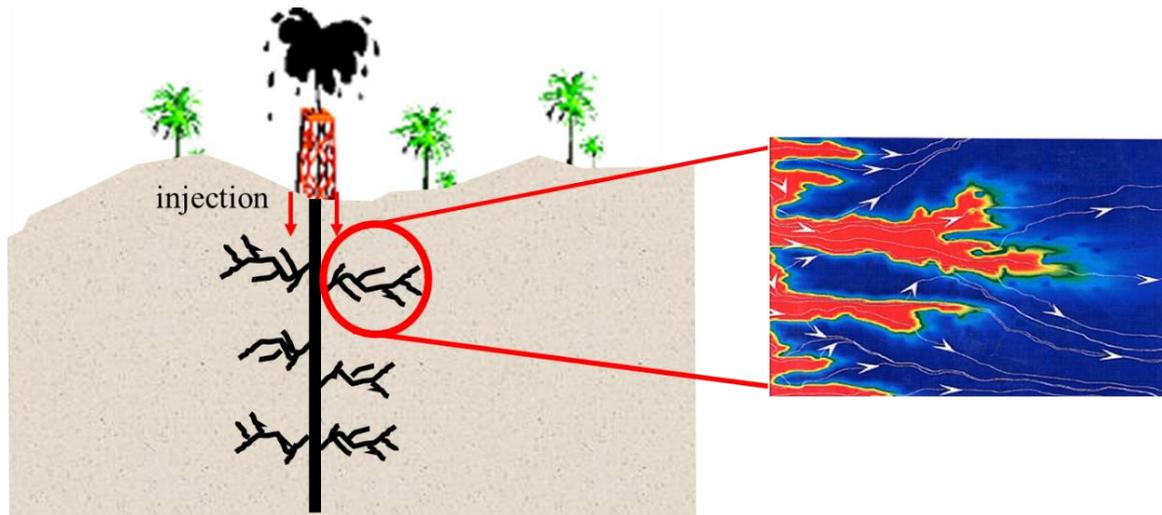


FIGURE 6. Wormholes engendrés par la dissolution autour d'un puits tiré de la thèse de (Golfier, 2002). A droite, image de wormholes simulés tirée de (Renard, 2007).

En fait, la pénétration de l'acide augmente la perméabilité locale et donc le transfert de masse, entraînant ainsi un accroissement de la dissolution. Selon les nombreuses études (Fredd and Fogler, 1998b; Fredd and Miller, 2000; Golfier et al., 2002) essayant d'expliquer les différentes figures de dissolution observées ainsi que les processus physiques mis en jeu, plusieurs facteurs entrent en compte dans la mise en place de ce phénomène de dissolution. Ce sont :

- Les caractéristiques du matériau : perméabilité, porosité, réactivité fluide/matériau, hétérogénéité ;
- Les paramètres opératoires : débit d'injection, concentration en acide, longueur de la carotte ;
- Les conditions thermodynamiques : température, pression.

III.1-Histoire et classification des régimes d'instabilités induites par la dissolution

(Schechter and Gidley, 1969) réalisent une toute première expérimentation de dissolution en utilisant un système Calcaire - Acide chlorhydrique (HCl). Les dimensions des échantillons de calcaires sont de 7.68 cm de long et de 2.50 cm de diamètre. Cette étude s'est intéressée à l'évolution des propriétés intrinsèques du milieu ainsi que les différentes dépendances entre la perméabilité et la géométrie des pores. Utilisant un système Pyrex 7740 (81% de SiO₂) - Fluorure d'hydrogène dilué, (Glover and Guin, 1973) ont étudié le comportement temporel de la porosité et de la perméabilité d'un milieu poreux dissous par un acide. L'incompréhension de la physique des régimes de dissolutions obtenus ont amené (Daccord, 1987) à utiliser un système 2D radial Plâtre-Eau pour mettre en évidence le développement des instabilités (wormholes) et l'évolution de la pression d'injection avec le temps. En effet, il est ressorti de leurs études qu'à des débits d'injection relativement élevés, le milieu est pratiquement et uniformément dissous tandis qu'à des faibles débits d'injection, seulement une partie du milieu est dissoute. En revanche, à des débits d'injection intermédiaires, la dissolution du plâtre entraîne la formation des wormholes. Partant de ce fait, certains auteurs comme (Rege and Fogler, 1989) se sont focalisés sur la question de la compétition de ces instabilités au sein du milieu poreux. Ils ont pu réaliser leurs études à l'aide d'un système Carbonate - Chlorure ferrique. La dissolution du carbonate par l'acide a provoqué une augmentation du pH de la solution, précipitant ainsi l'hydroxyde ferrique. Ce précipité a colmaté les pores du milieu et augmenté la résistance à l'écoulement du fluide. Les fluctuations des valeurs de perméabilité observées ont pu confirmer que la compétition entre les instabilités était due à la modification de la porosité par le colmatage des pores (effets de la précipitation).

Par ailleurs, en 1988, avec le système Calcaire/Dolomite – Acide chlorhydrique, (Hoefner and Fogler, 1988) ont montré que le développement des instabilités, i.e., les taux de formation et croissance des wormholes, est fortement lié à sa structure (taille des branches et le degré de ramifications) qui, à son tour est contrôlée par le débit injecté et donc la vitesse d'écoulement et la cinétique de réaction. Autrement dit, la forme des ramifications et donc des wormholes peut être décrite à travers le nombre de Damköhler (Da) défini comme étant le rapport entre la vitesse de réaction de l'acide avec la paroi des pores et la vitesse de transport convectif de l'acide.

Dès lors, les études se sont de plus en plus accentuées sur la classification des différents régimes de dissolutions. Avec un système Plâtre-Eau, une première classification en fonction du nombre de Péclet et de la cinétique de dissolution a été établie par (Daccord et al., 1993) (Figure 7). Les différents régimes de dissolutions sont :

- Dissolution limitée par le transfert de masse (wormholes compacts/coniques);
- Dissolution limitée par la cinétique de réaction (wormholes prédominants) ;
- Dissolution limitée par la convection (wormholes ramifiés/uniformes).

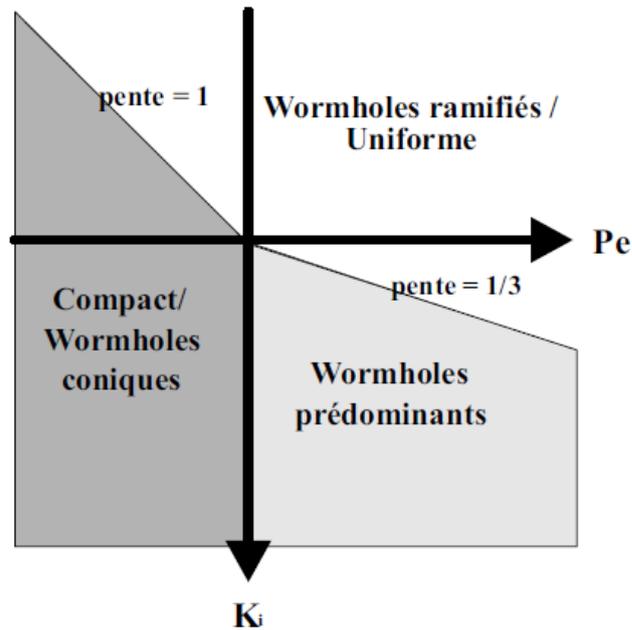


FIGURE 7. Diagramme de comportement (Pe,Ki) d'après Daccord et al (1993)

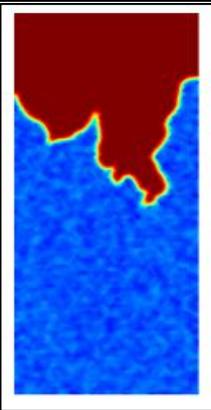
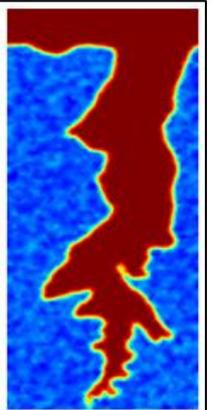
L'étude s'est focalisée sur les différents schémas de dissolutions ainsi qu'à l'écoulement des produits réactifs au sein du milieu poreux. L'accent a également été mis sur le processus d'acidification radiale tridimensionnelle et l'effet de diffusion. Cette classification a été complétée par les travaux de (Fredd and Miller, 2000) qui, suite à une étude expérimentale portant sur la dissolution des échantillons de calcaire par l'acide chlorhydrique et l'acide éthylènediaminetétraacétique (EDTA), ont proposé une nouvelle classification en fonction du nombre de Péclet (Pe), défini comme étant le rapport entre la convection et la diffusion, et du nombre de Damköhler (Da). Ce sont :

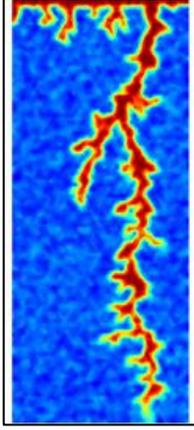
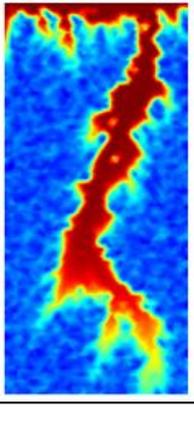
- Le régime compact avec une prédominance du mécanisme de diffusion ;
- Le régime conique produit grâce à un équilibre entre les mécanismes de diffusion et de convection ;

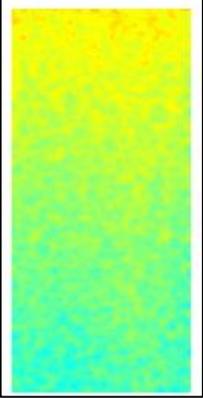
- Le régime dominant avec une prédominance de la convection comme mécanisme de transport ;
- Le régime ramifié, uniforme qui sont essentiellement convectifs.

Les différents régimes de dissolution obtenus sont détaillés dans le tableau 1. Nous avons également ajouté les résultats numériques issus des travaux de (Liu et al., 2017d) compte tenu du fait que les figures de dissolutions ont pu être reproduits par simulation numérique.

TABLEAU 1. Les différents régimes de dissolution Fredd et Miller, 2000 avec les images de simulations numériques 2D de (Liu et al., 2017d)

Régimes de dissolution	Essai Expérimental	Simulation numérique	Descriptions
Régime Compact			Il est obtenu à faible débit d'injection. Le régime est marqué par une avancée d'un front plat et de fine épaisseur qui se propage très lentement. L'acide est complètement consommé au contact du matériau. La dissolution est principalement contrôlée par le mécanisme de diffusion qui empêche le développement des instabilités.
Régime Conique			Régime obtenu par une légère augmentation du débit d'injection. Front instable même si la diffusion reste encore le processus prédominant. Le réactif non consommé dans la section d'entrée pénètre dans la matrice rocheuse, « érode » les parois des canaux en formant un canal principal de forme conique à forte conductivité hydraulique.

<p>Régime dominant</p>			<p>Ce régime est obtenu à un débit d'injection dit intermédiaire. Il est considéré comme étant un régime optimal, c'est-à-dire un meilleur accroissement de la perméabilité pour une quantité d'acide injectée réduite. Le front de propagation est fin et la diffusion devient négligeable devant la vitesse de convection. Au contact du matériau, le fluide réactif pénètre préférentiellement dans les pores les plus grands conduisant tout d'abord à la formation des wormholes plus ou moins ramifiés ; quand le fluide parvient à l'extrémité des wormholes, le réactif non encore consommé participe à leurs développements. La compétition entre les wormholes entraîne dans la phase finale le développement d'un seul et unique wormhole caractérisé par un front de dissolution raide, i.e., pas de gradient de porosité, et une dissolution aux extrémités.</p>
<p>Dissolution Ramifié</p>			<p>Ce régime est observable à un débit d'injection élevé, supérieur à la valeur optimale. Les wormholes se scindent en plusieurs branches quand les extrémités rencontrent une hétérogénéité. La vitesse d'écoulement plus élevée favorise la pénétration du fluide réactif dans la matrice poreuse et rend le front de dissolution plus large et flou. Les wormholes sont plus ramifiés.</p>

<p>Dissolution Uniforme</p>			<p>Le débit d'injection pour ce régime est très élevé. La convection est le mécanisme prédominant avec une forte augmentation de la porosité. Le réactif pénètre dans tous les pores du matériau. À mesure qu'il progresse au sein de sa matrice poreuse, il est consommé.</p>
--	---	---	--

En 2002, dans la thèse de (Golfier, 2002), Sandrine Leclerc (1998) et Vincent Brare (1999) réalisent une expérience de dissolution en utilisant un système NaCl-Solution saline dans une cellule de type Hele-Shaw (Longueur = 25 cm x Largeur = 5 cm x Épaisseur = 1 cm). Ce système sel-eau est comparable au calcaire dissous sous l'effet de l'acide. En effet, une augmentation de la concentration injectée du sel correspond à une diminution de la concentration d'acide dans le cas d'un système acide-calcaire. À l'exception du régime de dissolution uniforme, ils ont obtenu tous les régimes de dissolutions mentionnés dans le tableau 1. Ces travaux ont été complétés par des simulations numériques et un tableau de classification des régimes en fonction des nombres de Péclet (Pe) et de Damköhler (Da) a été proposé (Figure 8). Ce diagramme donne des informations sur les « seuils » (Pe, Da) permettant de différencier les différents régimes de dissolutions obtenus. Ils montrent également que seul le nombre de Péclet permet la transition entre les régimes compacts, coniques et wormholing.

L'ensemble de ces études antérieures montrent les différentes instabilités induites par les interactions roches-fluides ainsi que l'importance des nombres adimensionnels (Pe, Da) dans leurs classifications. Outre les effets induits par le coefficient de diffusion et le débit injecté sur les figures de dissolution, (Golfier et al., 2001), ont également évalué les effets induits par la diffusion et la température. Ainsi, une forte augmentation du débit d'injection ou l'utilisation d'une émulsion aura tendance à déplacer le diagramme vers les régimes purement convectifs (régime uniforme) (Figure 9-a et 9-c) tandis qu'une augmentation de la température déplacerait la flèche vers les régimes diffusifs (coniques, compacts) (Figure 9-b).

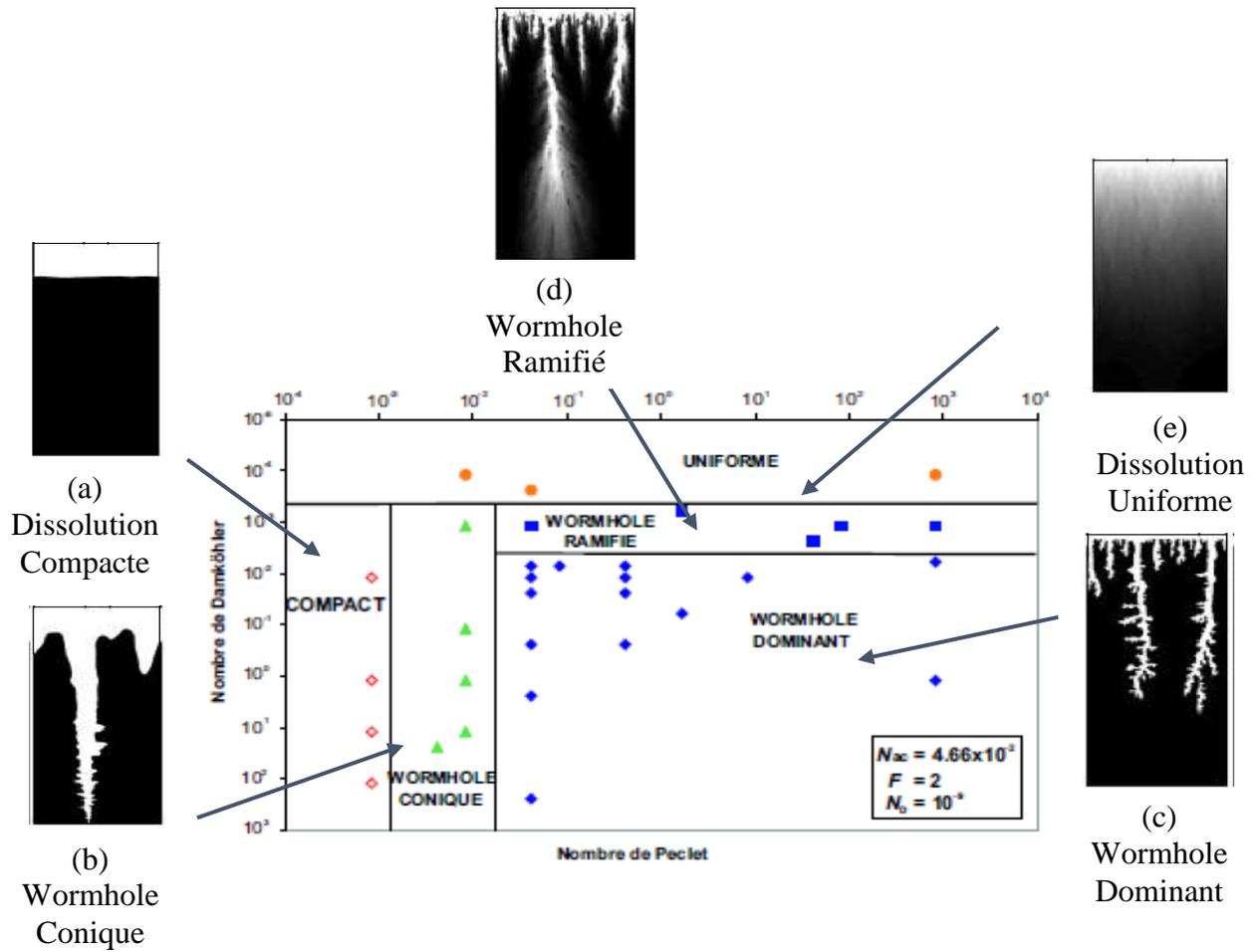


FIGURE 8. Diagramme de comportement des régimes de dissolution en fonction de Pe-Da associé aux images de simulations. (Golfier, 2002)

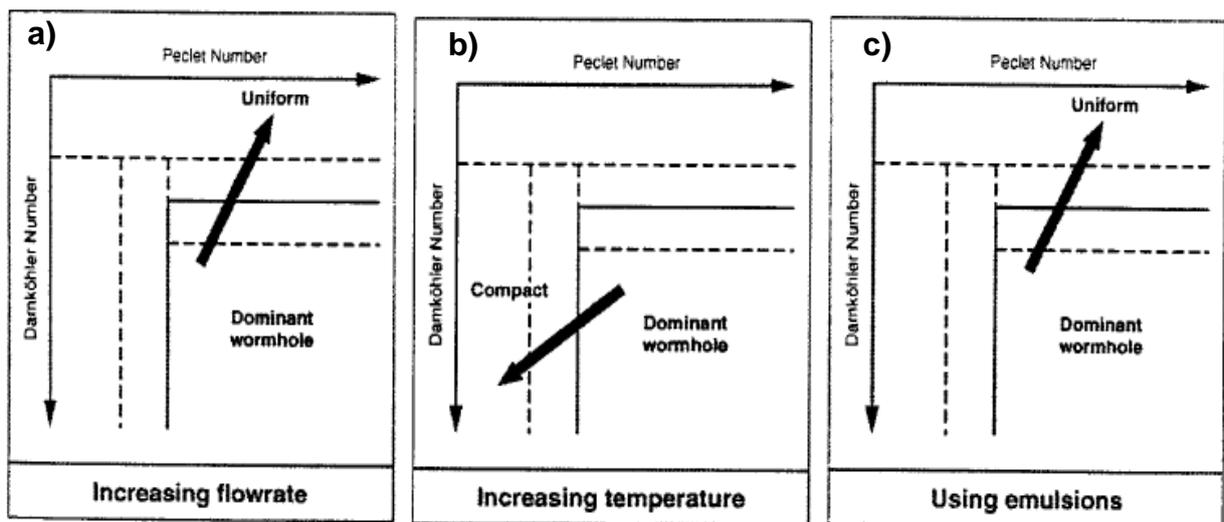


FIGURE 9. Effets des paramètres opératoires sur le diagramme de classification (Pe, Da) ; a) débit d'injection ; b) température ; c) acide ; La flèche illustre l'effet de la variation du paramètre étudié. (Golfier, 2002)

III.2- Paramètres évalués et pouvant influencer ou expliquer la formation des régimes de dissolutions

Depuis les travaux menés par (Golfier et al., 2001 ; 2002), de nombreuses études se sont intéressées aux différents éléments qui peuvent impacter ou expliquer le développement de ces instabilités. L'ensemble de ces éléments peuvent être regroupé par catégories :

(i) Les conditions expérimentales comprenant :

- la nature du fluide injecté (concentration, température) et le volume de pores pour la percée prenant en compte le débit injecté (Kalia and Balakotaiah, 2007; Li et al., 2010; Maheshwari et al., 2013; Mahmoodi et al., 2018; Panga et al., 2005 ; Gomaa et al., 2018).

(ii) Les propriétés roches/fluides regroupant :

- l'hétérogénéité minéralogique (Al-Khulaifi et al., 2018; Beckingham, 2017; Glover and Guin, 1973; Liu et al., 2017b; Min et al., 2016a; Nogues et al., 2013) ;
- La perméabilité et la porosité ainsi que la géométrie de leurs profils (Babaei and Sedighi, 2018; Chen et al., 2018b; Cohen et al., 2008; Kang et al., 2014; Kou et al., 2019; Liu and Liu, 2016; Min et al., 2016; Rötting et al., 2015, 2015; Tian and Wang, 2018; Yasuda et al., 2013) ;
- Les fractures naturelles (Liu et al., 2017d; Starchenko and Ladd, 2018; Szymczak and Ladd, 2009; Wang et al., 2020).

III.2.1- Nature du fluide et Volume de pores à la percée (PVBT)

Selon (Hang et al., 1997), la propagation des wormholes pourrait être affectée, d'une part par une consommation élevée du fluide réactif aux parois des wormholes, limitant ainsi la concentration en acide au front de dissolution et, d'autre part, par une limitation due aux réactions de surface. En outre, la thèse de (Cohen, 2007) a montré que le taux de croissance de la longueur des wormholes est directement corrélé à la concentration d'acide à son extrémité. Le développement des instabilités est donc influencé par le type d'acide et de son mécanisme de consommation. Pour démontrer cela, des dissolutions ont été effectuées avec des systèmes Calcaires-Acides (Forts, Faible et Agents) (Fredd and Fogler, 1998b). Il est ressorti que le type

du fluide réactif joue un rôle essentiel sur le développement des instabilités. En effet, le taux d'injection optimal des acides du type Éthylènediaminetétraacétique (M Hac-M EDTA) par exemple est significativement inférieur à celui de l'Acide Chlorhydrique (HCl) (Fredd and Fogler, 1998b). Un tel comportement est le résultat de la réaction et des mécanismes de transport qui affectent les conditions optimales d'injection. De plus, ce taux d'injection optimum change avec le type de fluide utilisé pour la dissolution.

Par ailleurs, les effets d'acides frais et acides usés dans l'acidification des carbonates (dolomites) ont été discutés par (Yoo et al., 2018) afin d'évaluer leurs impacts sur les taux de dissolutions et les effets de la diffusion. Comme résultat, il a été observé que le taux de dissolution et le coefficient de diffusion pour l'acide usé étaient supérieurs à ceux de l'acide frais (pH faible, viscosité élevée) (Yoo et al., 2018). Également, l'effet de l'acide usé sur la cinétique de la réaction acide-roche est essentiellement considéré pour réaliser les conditions d'injection dans les carbonates. En outre, (Ma et al., 2017) montrent que la concentration en acide affecte la vitesse de propagation et le temps de percée mais n'influe pas la structure du wormhole. Lorsque la vitesse de réaction augmente, il est plus facile de générer un wormhole dominant avec moins de ramifications (Ma et al., 2017).

Le pouvoir de dissolution de l'acide peut être également impacté par les conditions ambiantes, e.g., la température à laquelle est réalisée l'expérience de dissolution (Wang and Yu, 2018). Ainsi, un passage de la dissolution compacte à une dissolution uniforme est possible en augmentant la température (Wang and Yu, 2018), conclusion qui semble être contradictoire à celle de (Golfier et al., 2001).

(Fredd, 2000), en analysant l'efficacité des méthodes de traitement d'acidification de la matrice carbonatée, suggère des stratégies d'injection telles que l'augmentation du taux d'injection ou la diminution du taux de dissolution (en modifiant les propriétés du fluide) afin d'augmenter les profondeurs de pénétration (Figure 10).

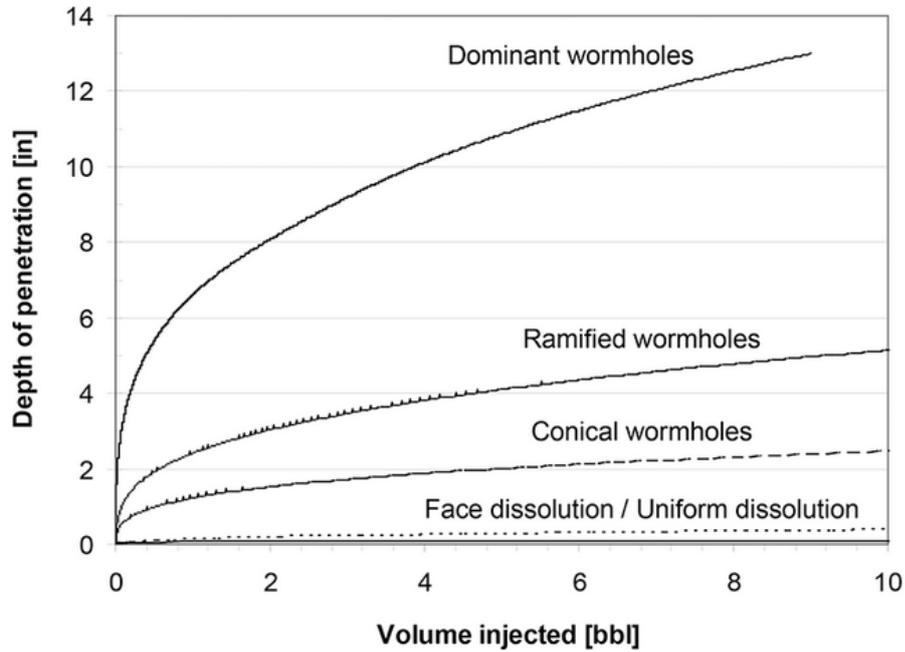


FIGURE 10. Profondeur de pénétration de la dissolution en fonction du volume d'acide injecté (Fredd, 2000)

En partant de cette stratégie, il ressort que le régime dominant peut être considéré comme étant le régime de dissolution optimal dans le processus d'acidification, i.e., pénétration maximale pour un débit injecté minimal. Cependant, selon (Golfier et al., 2001), ce débit optimal évolue avec l'augmentation de la concentration acide, de la température et de la longueur du milieu poreux. D'autres auteurs comme (Daccord, 1989, Bazin 2001) se sont aussi intéressés aux conditions optimales d'obtention de ce régime. Ces conditions peuvent être identifiées à partir des graphes PVBT (volume de pores à la percée). Pour les régimes diffusifs (compacts, coniques), la quantité d'acide nécessaire à la percée (PVBT) s'approche de la limite asymptotique de la quantité d'acide nécessaire pour dissoudre complètement la roche (Maheshwari, 2014). En revanche, pour les régimes essentiellement convectifs (ramifiés, uniformes), le PVBT augmente avec l'injection d'acide et respecte la fonction $Q^{1/3}$ avec Q le débit injecté (Figure 11).

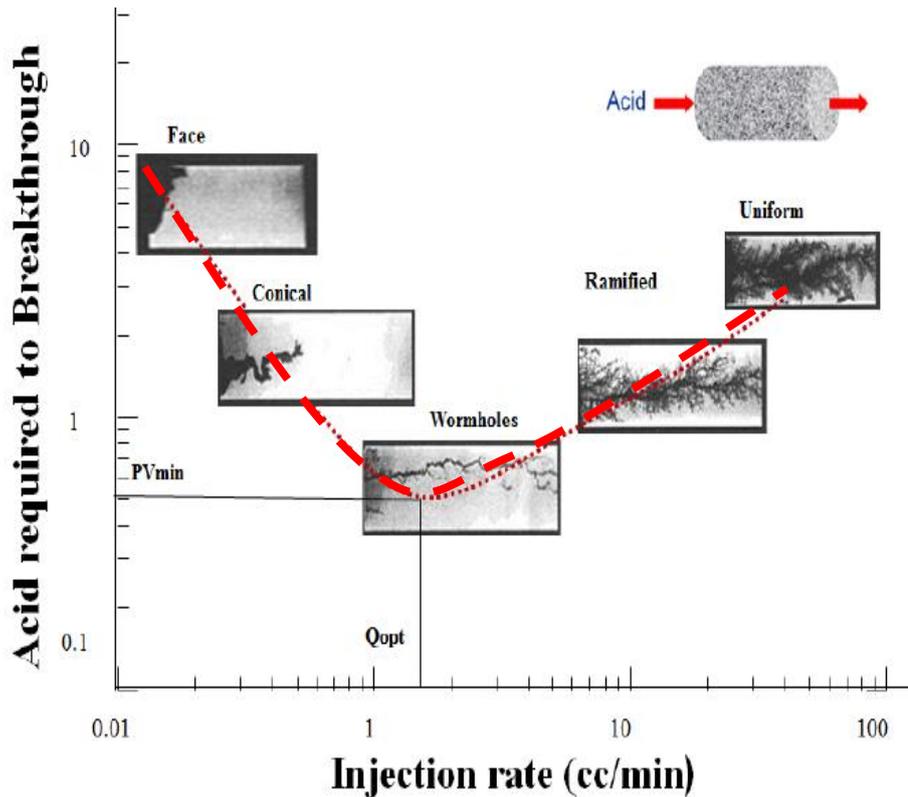


FIGURE 11. Courbe PVBT tirée de (Maheshwari, 2014)

Selon (Akanni, 2015), le PVBT est influencé par le modèle utilisé (2D-3D / linéaire-radial), l'hétérogénéité, la porosité initiale du milieu, la géométrie du milieu et la température. De plus, le PVBT dans une géométrie plus longue est plus élevé que celui d'un domaine réduit car il faudrait un taux d'acide important pour traverser le domaine. Le volume de pores pour la percée est également étudié en injection radiale et linéaire par (Akanni, 2015; Qiu et al., 2018). De ces études, il ressort également que les taux d'injections sont plus élevés dans la configuration linéaire que dans la configuration radiale.

Par ailleurs, de l'analyse menée par (Maheshwari, 2014) via la comparaison qualitative entre la courbe d'acidification (Panga et al. 2005) et les figures de dissolution (obtenues par simulations numériques ou expérimentalement (Bazin, 2001), il résulte que les simulations en 1D et 2D prédisent mieux le taux d'injection optimal et les volumes de pores à la percée que les simulations en 3D. Cependant, les simulations en 1D sont incapables de prédire les figures de dissolution obtenues dans le tableau 1. Notons également que les taux d'injection optimale prédits par les différentes simulations décroissent de la 1D à la 3D en raison de la chenalisation (Panga et al., 2005) (Figure 12). Dans ce même ordre d'idées, (Akanni, 2015) a pu confirmer que le PVBT en configuration 2D est plus grand que celui de la configuration 3D.

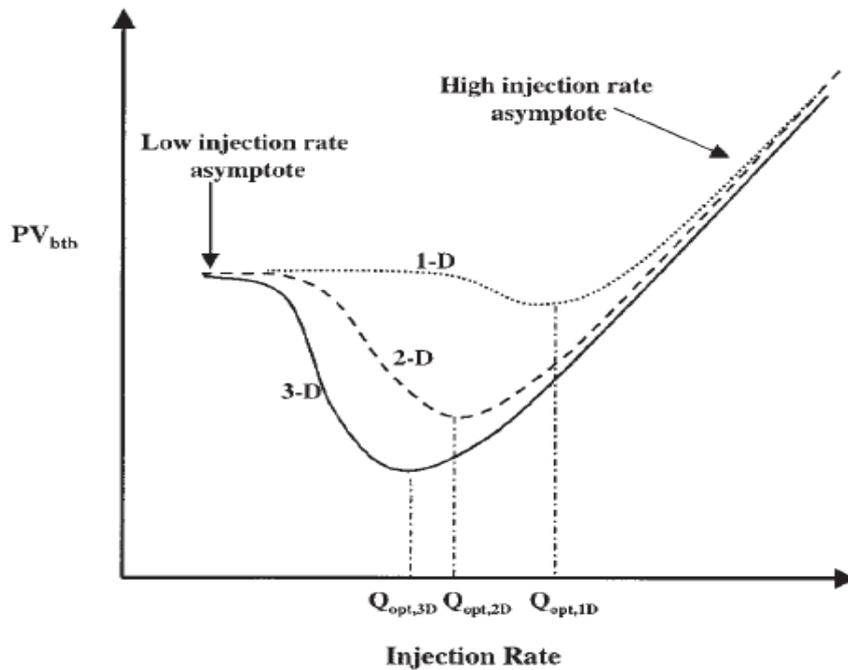


FIGURE 12. Tendances qualitatives des courbes de percée des modèles de simulations 1D, 2D et 3D (Panga et al., 2005)

(Fredd and Fogler, 1998b) avancent que les acides avec différents taux de réaction affectent différemment les conditions d'injection optimales, autrement dit, ces acides ont un effet différent sur le comportement du graphe PVBT. En effet, en injectant des acides microémulsions (Butanol et Pentanol) et le HCl dans des calcaires, ils mettent en évidence un décalage entre les courbes PVBT (Figure 13). Le comportement du graphe PVBT montre que les microémulsions sont plus efficaces que le HCl aqueux aux faibles taux d'injections.

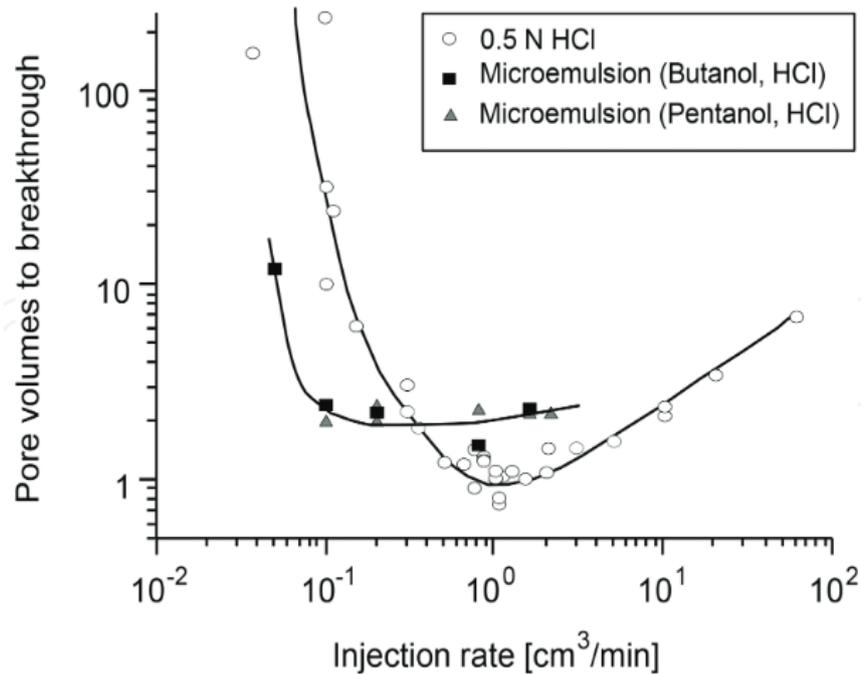


FIGURE 13. Volumes de pores à la percée obtenus après injection d'acides différents dans les calcaires. L'optimum change avec le type d'acides tiré de (Fredd and Fogler, 1998b)

Quant aux effets de l'hétérogénéité du milieu sur le PVBT, ils ont été étudiés par (Liu et al., 2012). Les auteurs montrent que le volume de pores à la percée pour les porosités normalement distribuées est plus petit que celui correspondant aux porosités uniformément distribuées. Ce qui se traduit par une vitesse de propagation des wormholes plus rapide. Cependant, les fractures avec de petites ouvertures ne dominent pas la propagation des wormholes et n'ont aucune influence sur le volume de percée. Le taux d'injection optimum est presque inchangé du milieu non fracturé au milieu fracturé si le système de réaction acide-minéral est le même (Figure 14) (Liu et al., 2012). L'existence de la fracture affecte seulement les structures de dissolution qui sont associées aux différents taux d'injection (Liu et al., 2017c). Selon (Akanni, 2015), l'hétérogénéité influence le PVBT pour les régimes de wormholing mais faiblement les régimes compact et uniforme.

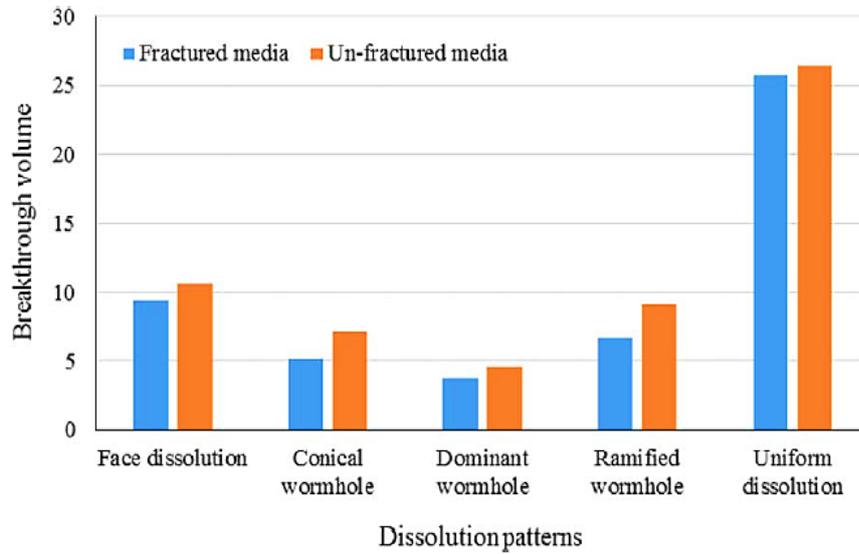


FIGURE 14. Variation du PVBT pour les différents patterns de dissolution en milieu fracturé et non-fracturé tirée de (Liu et al., 2017c).

En ce qui concerne l'influence de la température sur le PVBT, (Xue et al., 2019) ont analysé le volume des pores à la percée dans des conditions isothermiques et non-isothermiques. Ils ont pu faire ressortir que, dans des conditions isothermiques, la capacité d'injection optimale diminue avec la baisse de la température (Figure 15.a) et lorsque les conditions sont non-isothermiques, la capacité d'injection optimale est légèrement influencée par la température (Figure 15.b). Ces résultats sont en accord avec les résultats obtenus par (Akanni, 2015; Frick et al., 1994) qui avancent que les débits optimaux augmentent avec la température.

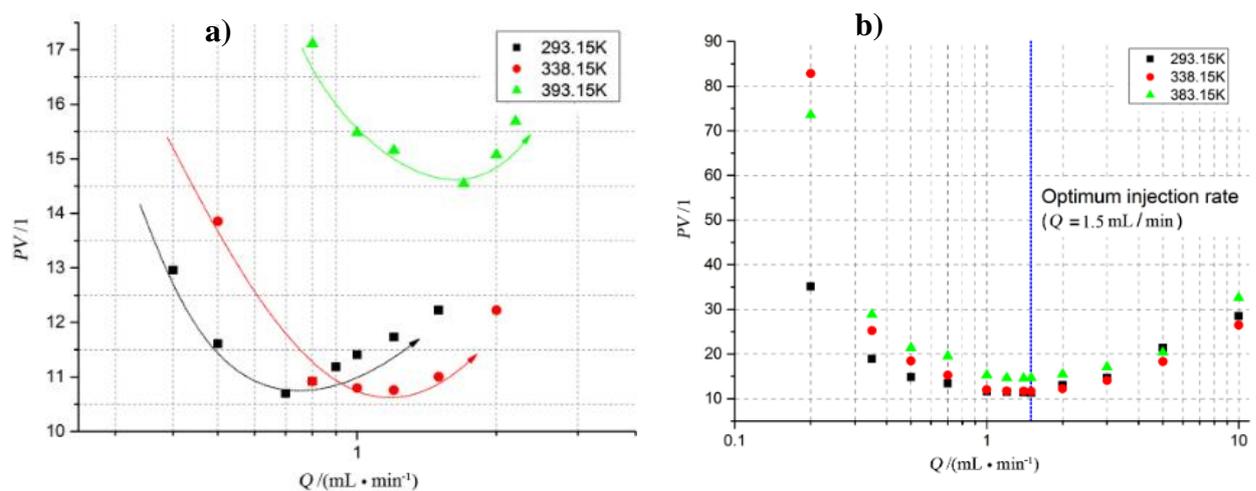


FIGURE 15. Influence de la température sur le PVBT; a) Condition isothermique; b) Condition non-isothermique, tirée de (Xue et al., 2019)

Dès lors, nous pouvons avancer au vu de tout ce qui précède que le volume de pores à la percée (PVBT) est un paramètre incontournable dans l'étude des wormholes et peut être influencé par les conditions opératoires.

III.2.2- Hétérogénéité minéralogique

Selon (Wang and Yu, 2018), l'hétérogénéité du milieu et la texture des minéraux affectent fortement le processus de dissolution et sont par conséquent des facteurs à contrôler et à analyser. En effet, les instabilités induites par les interactions roches-fluides sont influencées par la présence d'hétérogénéités dans la matrice et leurs évolutions spatio-temporelles en dépendent. Une classification des hétérogénéités dans l'étude du développement des wormholes a été réalisée par (Liang et al., 2015) grâce à des simulations faites avec différents teneurs en minéraux. L'hétérogénéité a été classée en 3 catégories : (i) l'hétérogénéité à grande échelle (qui peut être des fractures naturelles), (ii) l'hétérogénéité à l'échelle des pores et (iii) l'hétérogénéité minéralogique. En effet, lorsque la simulation est faite avec plusieurs minéraux avec des pourcentages en minéraux différents, d'importants modèles de wormholes se développent (Liang et al., 2015). Le « wormhole dominant idéal » a été simulé avec une roche constituée de 40% de calcaires, 50% de dolomite et 10% de minéraux insolubles. En outre, les hétérogénéités initiales engendrent le changement de nombreux paramètres et les relations entre elles (Liang et al., 2015).

Ces résultats sont illustrés et confirmés par l'étude expérimentale réalisée par (Martinez-Perez et al., 2017) en injectant de la saumure acide dans des calcaires et en suivant la variation des paramètres géochimiques, structuraux ou encore hydrodynamiques des différents échantillons de calcaire. De plus, selon (Izgec et al., 2010), l'acide circule plus facilement dans un chemin plus réactif avec une minéralogie hétérogène. Cette conclusion est issue de leur étude où ils ont pu montrer que la propagation des wormholes dans les carbonates de « Vuggy » est plus rapide que dans les roches homogènes.

Dans cet ordre d'idée, (Menke et al., 2015) montrent que le transport des réactifs à l'échelle de pore dans les roches hétérogènes limite la dissolution et peut réduire la vitesse de réaction effective moyenne. Par ailleurs, (Andriamihaja et al., 2019) ont analysé l'effet de la dissolution sur le développement du réseau de pores dans les roches carbonatées (calcaire argileux et à grains) à différentes températures et pH constant ainsi qu'à des concentrations en

HCl fixes. En effet, la distribution de la taille de pores avant et après la dissolution indique qu'il n'y a pas de corrélation entre la température et la variation de la taille des pores. Néanmoins, c'est la taille des pores qui est contrôlée par l'hétérogénéité de la roche initiale et l'abondance de minéraux instables. De même, (Smith et al., 2013) expliquent que l'abondance, la surface et la réactivité des minéraux de calcite et de dolomie, ainsi que la morphologie des pores et leur distribution influent de manière complexe sur le développement des caractéristiques de dissolution. Cette étude démontre que le degré d'hétérogénéité de l'espace poreux de ces roches carbonatées exerce une forte influence à la fois sur les figures de dissolution et sur la relation porosité/perméabilité.

(Liu et al., 2017b) ont également analysé l'impact de l'hétérogénéité minéralogique des roches sur les régimes de dissolution et la variation de perméabilité induite. Les relations établies avec les nombres adimensionnels sont les suivantes :

- À un Péclet faible, la perméabilité du milieu homogène est inférieure à celle du milieu hétérogène et il se forme un régime de dissolution compact (Figure 16a).
- À un Péclet élevé, une similarité entre les perméabilités des deux milieux s'observe, cependant le milieu homogène présente une plus grande cinétique de réaction. Le régime uniforme est le régime de dissolution obtenu (Figure 16b).

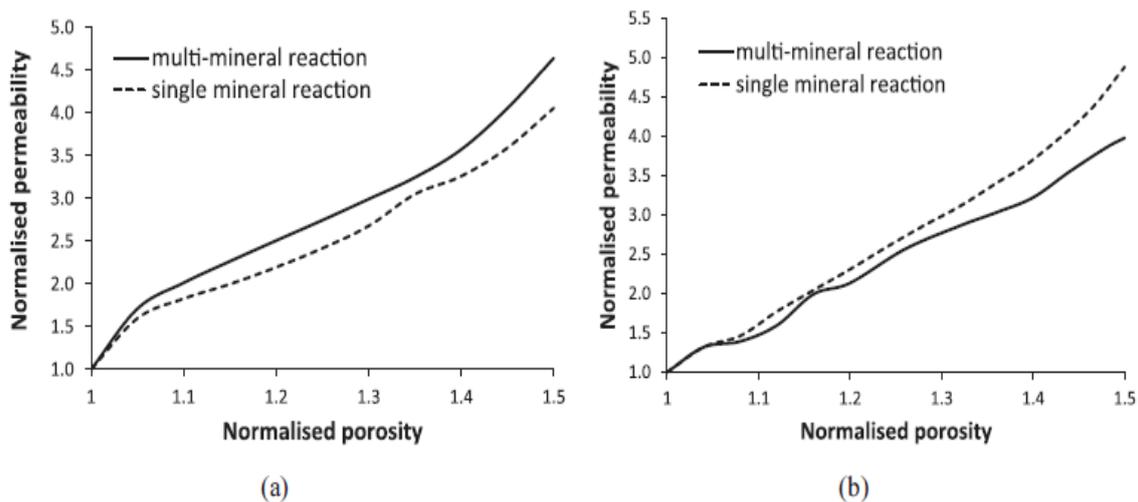


FIGURE 16. Évolution de la perméabilité en fonction de la porosité de deux milieux différents (hétérogène & homogène) ; a) Évolution à $Pe = 0.1$ et b) $Pe = 10$; (Liu et al., 2017b)

Toutes ces analyses montrent d'une part, l'impact de l'hétérogénéité sur le mécanisme de développement des instabilités et d'autre part leurs influences sur la relation porosité/perméabilité induite.

III.2.3- Perméabilité et porosité

Les meilleures estimations des changements à long terme de la perméabilité et de la porosité des réservoirs sont des objectifs visés par les communautés scientifiques travaillant sur les réservoirs de carbonates (Smith et al., 2019). En effet, elles s'intéressent aux changements causés par la dissolution des minéraux carbonatés (Smith et al., 2019). C'est l'une des principales raisons pour laquelle depuis ces dernières années, plusieurs techniques expérimentales ont été développées afin de mieux caractériser la structure des pores de la roche avant et après le mécanisme du transport réactif. Ainsi, une attention particulière a été accordée aux changements de perméabilités induits par le mécanisme de dissolution et ont été ainsi discutés par de nombreux auteurs (Beckingham, 2017; Gouze and Luquot, 2011; Kang et al., 2014b; Liu et al., 2012; Min et al., 2016a; Rötting et al., 2015; Yasuda et al., 2013).

Selon l'étude numérique menée par (Golfier, 2002), il ressort que la variation de perméabilité est liée au débit d'injection et le taux de réaction. Ainsi :

- Pour un faible débit d'injection (e.g., $Da = 100$), la perméabilité augmente lentement ;
- Pour un débit d'injection intermédiaire (e.g., $Da = 200$), la perméabilité augmente par palier ;
- Pour un débit élevé (e.g., $Da = 10$ et/ou $Da = 1$), la perméabilité diminue ; pour l'augmenter, il faut augmenter la quantité d'acide injecté.

Par ailleurs, (Kang et al., 2003) ont également montré que:

- À Péclet ($Pe > 1$) et Péclet-Damköhler élevés ($Pe.Da > 1$), un régime de wormholing est obtenu et conduit à une augmentation de la perméabilité. Le processus de dissolution est dans ce cas limité par la diffusion.
- À faible nombre de Péclet ($Pe \ll 1$) et à grand nombre de Péclet-Damköhler ($Pe.Da > 1$), un régime compact est obtenu car les réactions se produisent principalement à l'entrée du domaine. Ceci conduit à l'augmentation légère de la perméabilité dans le processus de dissolution.
- À des nombres modérés de Péclet ($Pe \approx 0.5$) et Péclet-Damköhler ($Pe.Da \approx 0.1$), les réactions sont généralement non uniformes, avec une dissolution plus marquée en amont du front qu'en aval.

- À faibles Péclet ($Pe < 0.01$) et Péclet-Damköhler ($Pe.Da \ll 1$), le régime uniforme est obtenu. Le processus est alors limité par la réaction. (Kang et al., 2003)

Ces deux précédentes études montrent bien la corrélation entre les nombres adimensionnels (Pe et Da) et l'évolution de la perméabilité au cours du processus d'acidification.

La variation de la porosité dans le processus de dissolution a été également analysée par (Tian and Wang, 2018) au cours du stockage de CO_2 . Cependant, ils précisent que, outre le changement de porosité, le stockage est aussi influencé par d'autres facteurs comme le mouvement du front de réaction, sa vitesse de propagation ou les propriétés intrinsèques initiales. De plus, (Selvadurai et al., 2017) avec un système calcaire d'Indiana- CO_2 -Eau acidifiée montrent que, si la pression de confinement lors de la phase de dissolution a peu, voire aucune influence sur le développement des wormholes, la perméabilité quant à elle, augmente fortement (+38% d'augmentation par rapport à la perméabilité initiale de la roche).

En 2004, (Singurindy et al., 2004) ont mené des expériences de dissolution/précipitation avec un système Carbonate - Eau saline/eau douce dans le but de prédire les changements de porosité dans les environnements côtiers. De cette étude, il ressort que le taux de dissolution ou de précipitation dépendait de la solubilité, du gradient de salinité et de la dispersion macroscopique. Par ailleurs, (Rötting et al., 2015) montrent que l'attaque des roches carbonatées par du HCl à pH compris entre 3.5 et 4.1 affectait non seulement la porosité et la perméabilité mais également les distributions de taille de pores.

Ces études précédentes montrent l'impact du mécanisme de dissolution sur les paramètres de porosité et de perméabilité. Par conséquent, connaître les éventuels changements de porosité-perméabilité lors du processus de dissolution s'avère incontournable. Quant aux travaux expérimentaux orientés vers l'exploration de la perméabilité et la porosité au cours de la dissolution, on peut citer par exemple les travaux de (Luquot et al., 2014 ; 2016) ou encore (Liu et al., 2016). En effet, (Luquot et al., 2016) en étudiant, via aussi bien des techniques classiques de laboratoire que des techniques plus pointues comme le traitement d'images obtenues par microtomographie à Rayon X, l'hétérogénéité formée après la percolation d'acide en milieu poreux montrent que, pour la porosité, les résultats issus de la seconde méthodologie permettent d'estimer à la fois la porosité totale et la porosité effective. Pour les autres

paramètres étudiés (coefficient de diffusion, distribution des pores ou encore tortuosité), les résultats obtenus par les deux techniques sont d'une manière générale similaires, voire complémentaires. Quant aux travaux de (Luquot et al., 2014), ils portent sur les changements des propriétés structurelles dans les calcaires de l'échelle des pores à l'échelle de Darcy sous différents régimes de dissolution et en prenant en compte des conditions expérimentales similaires au stockage de CO₂ (i.e., hautes températures et pressions). De même, l'analyse temporelle de la perte de pression et des flux ont permis d'estimer la perméabilité et la porosité dans les échantillons étudiés. De cette étude, il ressort que l'augmentation locale de la perméabilité due à la dissolution est reliée à une forte pression d'injection tandis que les faibles pressions d'injection suggéreraient une dissolution beaucoup plus homogène. En outre, pour l'expérience menée à haute pression et caractérisée par la formation d'un wormhole dominant, la relation perméabilité (k) – porosité (\mathcal{E}) souvent exprimée sous la forme $k \sim \mathcal{E}^n$ (Gouze and Luquot, 2011; Luquot and Gouze, 2009) montre une valeur de n élevée (i.e., $n = 7.07$). Il faut cependant noter que, selon les auteurs, même si la pression d'injection a une certaine influence sur « n », aucune relation évidente n'a pas pu être déterminée. Ce coefficient, qui pourrait contenir certaines informations structurales, est souvent interprété dans le processus de dissolution comme un paramètre géométrique contrôlant le degré de changement de surface (Luhmann et al., 2014). Selon ces mêmes auteurs, il est inversement lié à la fois au diamètre du chemin d'écoulement et à la tortuosité du canal de dissolution.

Par ailleurs, (Kang et al., 2014b), en analysant numériquement la relation perméabilité-porosité pour une large gamme de nombres de Péclet et de Damköhler aussi bien dans des milieux fracturés simples que dans des milieux poreux plus complexes géométriquement, montrent que cette relation dépend non seulement des régimes de dissolution mais aussi de la structure spécifique du milieu poreux. Un résultat similaire a été obtenu par (Huber et al., 2014) via l'utilisation d'un modèle numérique basé sur la méthode de Lattice Boltzmann et appliqué à un milieu poreux de topologie complexe. Selon (Al-Khulaifi et al., 2018), la paramétrisation de la relation perméabilité-porosité devrait tenir compte des propriétés dépendantes du type de roche telle que la minéralogie et les pores, l'hétérogénéité des structures mais aussi le régime de dissolution contrôlé par les Péclet et Damköhler.

Finalement, notons que la longueur des wormholes augmente en fonction du temps selon une corrélation exprimée sous la forme $r_{wh} = at^b$ avec r_{wh} la longueur du wormhole, a et b des paramètres de régression et t le temps (Daccord and Lenormand', 1993; Kalia and Balakotaiah, 2007; Liu et al., 2012). Il semblerait que le paramètre b , qui varie entre 0.66 et 0.73, montre

l'influence de la vitesse de propagation dans des porosités normalement ou uniformément distribuées (Liu et al., 2012). De plus, (Li et al., 2019), en analysant expérimentalement la géométrie des wormholes, ont pu établir des relations entre les débits d'injection, les volumes dissous, le nombre des wormholes, le nombre des ramifications ou encore la surface dissoute. Compte tenu du fait que les wormholes sont le résultat d'hétérogénéités d'écoulement et de dissolution dans la matrice poreuse, toutes ces relations pourraient éventuellement être utilisées pour estimer la relation porosité-perméabilité (Li et al., 2019).

III.2.4- Écoulement et dissolution dans les fractures naturelles

Finissons cette première partie avec quelques travaux impliquant la dissolution dans les milieux fracturés. Il est bien connu que, l'acide s'écoulant le long d'une fracture peut réagir avec la roche en érodant les parois des fractures et en entraînant le développement de canaux (Szymczak and Ladd, 2006). Toutefois, le cheminement de ces canaux dépend de la répartition initiale des fractures même si ces fractures sont isolées les unes aux autres. Via les simulations numériques menées en configuration radiale, (Wang et al., 2020) trouvent que les wormholes présentent moins de ramifications en présence de fractures naturelles mais ils se propagent plus rapidement avec l'augmentation de la densité des fractures naturelles. De plus, (Liu et al., 2017c) réalisent une simulation de transport réactif permettant d'évaluer l'effet multiple d'un réseau de fractures sur le flux réactif dans les carbonates. De cette étude, il ressort que la propagation et les caractéristiques des wormholes (longueur, orientation, nombre de branches) dépendent de l'orientation de la fracture par rapport à la direction principale de l'écoulement.

(Szymczak and Ladd, 2009), à travers des simulations à l'échelle des pores étudient les instabilités dans des fractures artificielles en trois dimensions. Le but recherché était d'identifier les conditions optimales de formation des wormholes dans une fracture spatialement homogène caractérisée par une rugosité initiale. Ainsi, la valeur seuil de la rugosité permettant de « déclencher » l'instabilité a été estimée à $f \approx 0.2 - 0.3$. En dessous de cette valeur, la rugosité ne joue aucun rôle et les wormholes ne se développent pas. En revanche, au-dessus de ces valeurs seuils, les canaux commencent à se développer, mais leurs tailles et leurs espacements sont contrôlés, comme dans un milieu poreux classique, par les valeurs de Péclet et de Damköhler. D'ailleurs, l'influence de la topographie de la fracture semble être pratiquement négligeable (Szymczak and Ladd, 2009).

(Upadhyay et al., 2015) montrent que les figures de dissolution dans les fractures sont insensibles aux conditions initiales de la fracture et en particulier à son ouverture. Ce résultat est issu d'une étude basée sur une large gamme de rugosité et de longueurs de corrélation caractérisant le champ d'ouverture de la fracture qui, dans de nombreux cas, sont plus importantes que ce que l'on peut attendre des fractures naturelles. Néanmoins, à long terme, la compétition entre les wormholes « efface » les variations initiales de la distribution des ouvertures, conduisant à une relation dite « universelle » entre la séparation des wormholes et leurs longueurs. Bien que les fractures fournissent des voies dominantes pour l'écoulement et le transport dans le sous-sol, elles ne représentent généralement qu'une petite partie de la porosité totale. Cependant, comme l'écoulement d'un fluide réactif peut provoquer la dissolution des surfaces rocheuses, il peut également entraîner une modification importante des ouvertures de fractures et des changements de perméabilité. La dissolution des fractures est donc limitée par les taux de réaction à la surface des fractures et le transport des réactifs dans la fracture. Dans les fractures dont la cinétique de réaction locale est rapide par rapport au transport des réactifs (grand Da), la dissolution de la fracture sera limitée par le transport et fortement influencée par le Pe (Detwiler et al., 2003).

Notons que (Starchenko and Ladd, 2018) à travers des simulations 3D menées à petite échelle (échelle de laboratoire) sur des milieux fracturés ont analysé les effets des vitesses d'écoulement et de réaction sur l'évolution de l'ouverture de la fracture. Quatre (4) régimes de dissolution ont été ainsi observés : « face », compact, « necked » et uniforme. Ces régimes de dissolution sont en accord avec ceux obtenus expérimentalement par (Garcia-Rios et al., 2015). En guise de conclusion à ce paragraphe, nous pouvons noter que, selon (Cheung and Rajaram, 2002), les schémas de dissolution et la croissance de la « transmissivité » dans les fractures à ouverture variable sont contrôlés aussi bien par les taux de réaction, les paramètres hydrodynamiques et du transport que par les statistiques du champ d'ouverture initial.

IV- Instabilités hydrodynamiques dues au contraste de masse volumique

IV.1- Généralités sur les instabilités hydrodynamiques induites par le contraste de masse volumique

Les instabilités hydrodynamiques induites par la variations des propriétés physiques des fluides mis en jeux (i.e., masse volumique et/ou viscosité dynamique) trouvent leurs applications dans nombreux domaines d'activités comme le stockage et la séquestration de CO₂ (Herzog, 2001), l'ingénierie pétrolière (Aziz and Bories, 1973; Kaydani et al., 2018), la récupération d'énergie géothermique (Barbier, 2002; Henley and Ellis, 1983; Oldenburg and Pruess) ou encore l'intrusion de l'eau salée dans les formations aquifères côtières (Fernandez et al., 2002). En effet, deux types d'instabilités hydrodynamiques seront abordés dans le cadre de ce paragraphe : il s'agit des instabilités de Rayleigh-Taylor et des instabilités de Rayleigh-Bénard, instabilités pouvant apparaitre en raison de l'existence d'un gradient de masse volumique et de température (De Wit et al., 2012).

Lorsqu'un fluide plus dense se superpose sur un fluide moins dense, « l'interface » peut se déformer entraînant un écoulement convectif car le fluide le plus dense à tendance à descendre et le fluide le moins dense à monter dans l'espace gravitationnel (Charru, 2007). Cette classe d'instabilité hydrodynamique qui tient compte d'un gradient de masse volumique, dans le champ de pesanteur, est l'instabilité de Rayleigh-Taylor (Charru, 2007). D'une manière classique, ce type d'instabilité peut être retrouvé aussi bien pour les fluides miscibles (avec simple ou double diffusivité) que non miscibles.

En outre, selon, (De Wit, 2016), les réactions chimiques peuvent également interagir avec les flux hydrodynamiques et générer des instabilités chimio-hydrodynamiques via leur influence sur l'évolution spatio-temporelle de la concentration des fluides ainsi que la dynamique de la dissolution. Les réactions chimiques sont capables d'amplifier fortement ces instabilités en modifiant les propriétés physiques de(s) fluide(s) étant à l'origine de l'instabilité (De Wit, 2016; Lemaigre et al., 2013). Les gradients de concentration résultant des processus de réaction-diffusion peuvent alors entraîner des gradients de densité, de viscosité ou encore de perméabilité. Ces derniers peuvent, à leur tour, induire des instabilités hydrodynamiques et des flux convectifs et ainsi engendrer une rétroaction hautement non linéaire entre les processus chimiques et hydrodynamiques (De Wit, 2016). Par ailleurs, en observant la croissance des

doigts associées aux instabilités de Rayleigh-Taylor dans une cellule de type Hele-Shaw, (Wooding, 1969) a montré que la longueur d'onde moyenne augmenterait proportionnellement à la racine carrée du temps ($t^{1/2}$). Selon (Künze and Lunati, 2012), les mouvements de convection, qui sont déclenchés par des perturbations à petite échelle grâce à la variation de la masse volumique, peuvent affecter fortement les flux et le transport à grande échelle.

Les instabilités de Rayleigh-Bénard quant à elles, impliquent les instabilités induites par l'existence d'un gradient de température. Elles ont été largement étudiées aussi bien pour des fluides newtoniens que non newtoniens (Carrión et al., 2020; Chen et al., 2020; Requilé et al., 2020; Siddheshwar et al., 2020; Wei and du Puits, 2020; Weiss et al., 2018; Yadati et al., 2019). Les applications industrielles sont nombreuses et sont, entre autres, le stockage de gaz, les systèmes de prévisions météorologiques, la convection dans le manteau terrestre, etc. (Chen et al., 2020). Fondamentalement, il s'agit d'une instabilité thermo-convective engendrée par un gradient de température entre deux plaques. Les instabilités se produisent en raison d'un gradient de température lorsque la paroi inférieure est chauffée continuellement et la paroi supérieure est refroidie. Les deux principaux mécanismes qui déterminent sa dynamique sont d'une part, la flottabilité ou poussée d'Archimède générée par des structures convectives appelées cellules de Bénard (Figure 17) et d'autres parts les forces de diffusion.

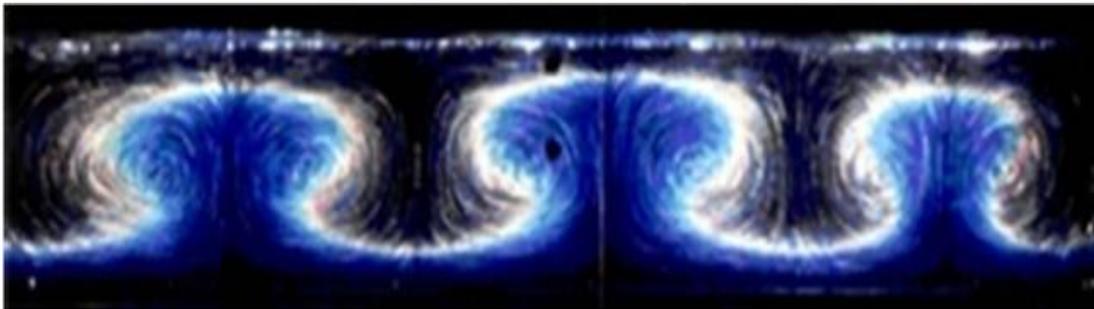


FIGURE 17. Une visualisation de la convection de Rayleigh-Bénard par (Stasiek and Jewartowski, 2017)

Comme les instabilités de Rayleigh-Taylor, les instabilités hydrodynamiques de Rayleigh-Bernard peuvent également modifier les propriétés de l'écoulement. Le développement de ces instabilités dépend du nombre de Rayleigh et des conditions aux limites. Classiquement, le nombre de Rayleigh (Ra) est défini comme étant le produit entre le nombre de Grashof (rapport entre les forces de gravité et les forces visqueuses) et celui de Prandtl

(diffusivité par rapport à la viscosité cinématique). Autrement dit, le nombre de Rayleigh est défini comme le rapport entre les forces de flottabilité et les diffusivités de masse et du moment. Pour des conditions aux limites libres (glissement aux parois), les mouvements de cellules de convection apparaissent à une valeur critique $R_{ac} = 27\pi^4/4 \approx 657$. Pour des conditions aux limites rigides (adhérence aux parois) la valeur critique de R_{ac} a été estimée à 1708 (Pellew and Southwell, 1940 – voir Figure 18). D'ailleurs, ces instabilités sont renforcées avec l'augmentation du nombre de Rayleigh (Laouafa et al., 2018). Ces valeurs critiques ont été analysées, discutées et/ou critiquées par de nombreux auteurs (Charru, 2007; Kuo and Chen, 2009; Manneville, 2006, Philippi et al., 2019).

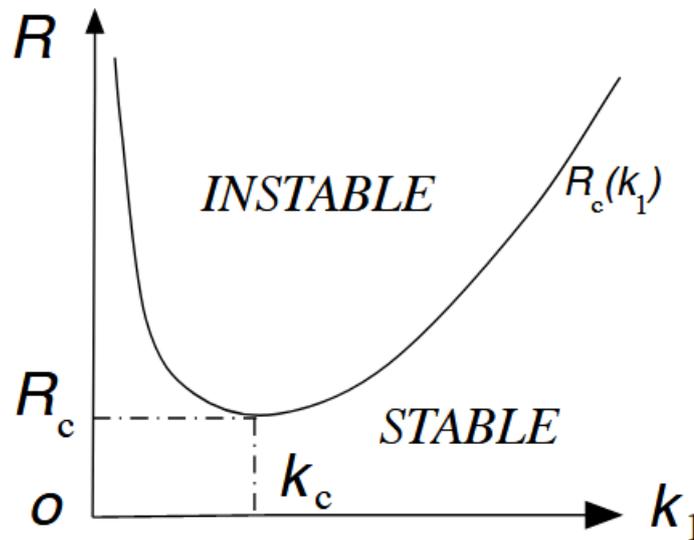


FIGURE 18. Graphe du domaine de stabilité (Charru, 2007)

Il nous semble opportun de rappeler ici que, dans certains exemples (Elder, 1967 ; Philippi et al, 2019), les instabilités convectives générées par les gradients de température ont été considérées comme analogues à celles induites par les gradients de concentration. D'une manière simplifiée, ceci revient tout simplement à remplacer la température par la concentration. Dans ces conditions, pour un problème de dissolution avec des gradients de concentration relativement élevés (e.g., NaCl dissous dans de l'eau), les instabilités convectives peuvent être assimilées aux instabilités du type Raleigh-Bénard et caractérisées via le nombre de Rayleigh (Ra). Dans une simulation réalisée par (Laouafa et al., 2018) sur les effets des gradients de concentrations dans la dissolution de bloc de sel, ils observent des écoulements instables, des doigts de sel et des ondelettes induites par l'interface de dissolution. En fait, la dynamique de l'instabilité physique (Raleigh-Bénard) est à la fois contrôlée par le nombre de

Rayleigh (Ra) et le nombre Péclet (Pe). En outre, (Philippi et al., 2019a) en simulant l'hydrodynamique et le transport de soluté dans une géométrie bidimensionnelle correspondant à un bloc de sel immergé dans de l'eau met en évidence l'existence de 3 régimes (Figure 19) :

- (i) Un régime diffusif où la densité à l'interface augmente et la diffusion surmonte la gravité. Le profil de densité et le flux de soluté suivent la solution ;
- (ii) Un régime d'instabilité correspondant à une augmentation de l'épaisseur de la couche diffusive et une déstabilisation sous l'effet de la gravité. Le profil de densité se déforme et le flux de soluté à l'interface s'éloigne de la solution marquant le début de la convection ;
- (iii) Un régime de panaches avec une déstabilisation de la couche limite et émission des panaches hydrodynamiques. Pour ce régime, il y a une forte variation du profil de densité et les panaches se déplacent le long de l'interface.

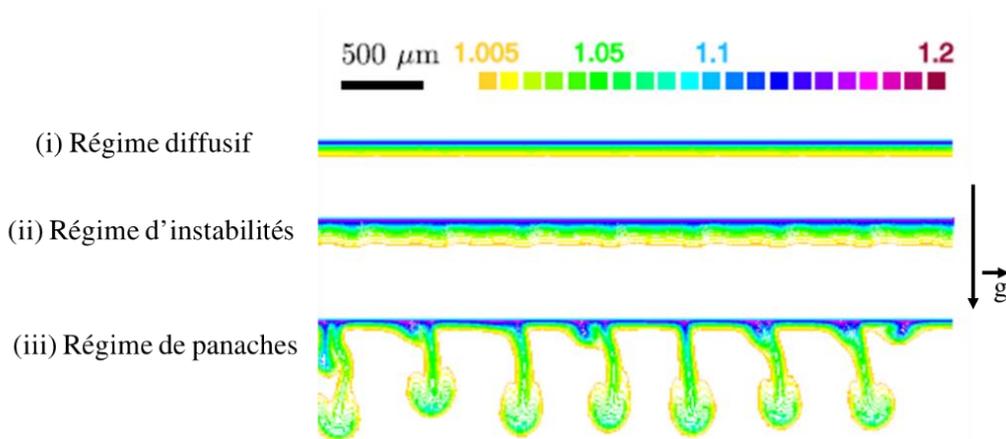


FIGURE 19. Simulation des instabilités hydrodynamiques par (Philippi et al.,2019). 3 Régimes obtenus: diffusifs, d'instabilités et de panaches avec les nuances de couleurs qui représentent la concentration

IV.2-Couplage entre instabilités hydrodynamiques induites par le contraste de masse volumique et instabilités induites par la dissolution

Les bases conceptuelles et l'importance générale de la convection solutale et thermique ont été abordées de manière non exhaustive dans des études antérieures. Il ressort que ce phénomène a fait l'objet d'une grande attention au cours des deux dernières décennies (Jafari Raad and Hassanzadeh, 2018). Le transfert de masse a été associé à ce phénomène de convection naturelle dans de nombreuses études de CO_2 compte tenu du fait qu'il peut avoir une forte incidence sur le temps nécessaire pour passer de l'état flottant du CO_2 à l'état dissous. Dans cette partie, nous allons énumérer les effets des instabilités hydrodynamiques dans la dissolution du CO_2 ainsi que ceux engendrés sur la dissolution dans des fractures naturelles.

IV.2.1- Instabilités hydrodynamiques induites par le contraste de masse volumique dans le stockage du CO₂

Les réactions entre les "solutions acides injectées", la matrice solide et/ou le fluide saturant la matrice poreuse peuvent modifier les propriétés physiques (masse volumique, viscosité dynamique et diffusivité) des fluides concernés. La dissolution du CO₂ dans les aquifères salins est l'un des exemples les plus courants et a fait l'objet d'une attention scientifique particulière ces dernières années (voir (Emami-Meybodi et al., 2015)). La séquestration du CO₂ dans les formations géologiques est désormais considérée comme une solution fiable pour réduire la quantité de CO₂ rejetée dans l'atmosphère. C'est la raison pour laquelle les instabilités hydrodynamiques produites dans le cas de la dissolution du CO₂ ont fait l'objet de nombreuses études (Fan et al., 2017; Farajzadeh et al., 2007; Lu et al., 2017; Slim et al., 2013; Smith et al., 2017; Thomas et al., 2018).

Selon (Xu et al., 2006), trois (3) principaux mécanismes contribuent au processus de dissolution lors d'une phase de séquestration de CO₂. Il s'agit de:

- La diffusion du CO₂ hors phase supercritique dans la saumure ;
- Les réactions entre la saumure riche en CO₂ et la minéralogie du milieu engendrant la modification de la perméabilité et de la porosité de la formation ;
- La convection induite par la différence de masse volumique entre la saumure saturée en CO₂ et la saumure initiale.

Notons cependant que le CO₂ injecté dans les formations géologiques peut être piégé par des mécanismes de piégeage physiques (stratigraphique, résiduel) et chimiques (solubilité, minéral). En effet, le piégeage physique est généralement précoce alors que le piégeage chimique, notamment la solubilité, se produit à un stade ultérieur et est considéré comme le mécanisme le plus sûr. En raison de l'importance du piégeage de la solubilité dans le stockage géologique du CO₂, le processus de dissolution convective du CO₂ dans les aquifères salins a fait l'objet de nombreuses études. Ces études ont été menées soit théoriquement (à travers une analyse de stabilité), soit expérimentalement, soit numériquement. D'un point de vue théorique, l'analyse de stabilité linéaire visait à déterminer les caractéristiques des instabilités comme le temps d'apparition, le taux de croissance, la géométrie du doigt et la longueur d'onde, pour des propriétés physiques données du réservoir (Ennis-King et al., 2005; Jafari Raad and

Hassanzadeh, 2018; Xu et al., 2006). Quant aux études expérimentales, elles ont porté sur des questions telles que l'évolution du régime d'écoulement (Slim et al., 2013), l'analyse des flux convectifs et les caractéristiques des digitations (Neufeld et al., 2010; Tsai et al., 2013), la longueur de mélange (Budroni et al., 2014; Chang et al., 2016), le transfert de masse (Balaj et al., 2014; Yang and Gu, 2006), ainsi que les champs de vitesse (Kreyenberg et al., 2019). Concernant les études numériques, elles ont été utilisées afin d'approfondir et mieux comprendre les mécanismes physiques du processus de convection (Meng & Jiang, 2014). Autrement dit, elles ont permis de :

- Évaluer le flux de dissolution (Emami-Meybodi et al., 2015; Hidalgo et al., 2013 ; Hassanzadeh et al., 2007 ; Hidalgo et al., 2012) ;
- Montrer l'impact des hétérogénéités géologiques sur le mélange convectif (Soltanian et al., 2016, 2017). En outre, l'effet de la réaction géochimique sur le piégeage de la solubilité a été étudié par (Babaei and Sedighi, 2018; Ennis-King and Paterson, 2007; Islam et al., 2016).
- Analyser l'altération de la porosité induite par le processus de dissolution et son effet sur la propagation des digitations (Fu et al., 2015; Hidalgo et al., 2015). Bien que la plupart des études aient envisagé l'utilisation des géométries relativement simplistes dont la limite supérieure est une limite à concentration imposée, certaines ont envisagé un système à deux composantes plus réalistes par l'incorporation au niveau de la limite supérieure d'une zone de transition capillaire (Li et al., 2013).

Alors que la diffusion moléculaire est un transport lent, la convection induite par le contraste de masse volumique implique une circulation « accélérée » de la saumure ambiante dans l'aquifère. Cette accélération joue un rôle important dans la dissolution du CO₂ et est due à un mélange des deux fluides ainsi qu'à l'activation du piégeage de la dissolution du CO₂ (Huppert and Neufeld, 2014).

Selon (Xu et al., 2006), la stabilité du système aquifère est fortement influencée par la perméabilité de l'aquifère et en particulier par le facteur d'anisotropie. Plus le facteur d'anisotropie augmente plus le système de séquestration de carbone devient instable. Un résultat similaire est obtenu par (Ching et al., 2017) qui révèlent, à travers une étude expérimentale que, l'effet de perméabilité influence de manière significative aussi bien la vitesse de convection initiale ainsi que la dynamique ultérieure du développement des digitations du panache. De plus, selon (Chen and Zhang, 2010b), la perméabilité joue un rôle non-négligeable dans l'efficacité du mélange lors de la convection naturelle.

Dans des conditions expérimentales de laboratoire comparables aux conditions de réservoir, (Gharbi et al., 2013; Menke et al., 2018b) ont étudié, à l'échelle des pores, les interactions fluide-roche et en particulier l'impact des hétérogénéités locales sur la dissolution dans le contexte du stockage du CO₂ dans les aquifères carbonatés salins. Des travaux semblables menés par (Ott and Oedai, 2015a; Ott et al., 2012) ont permis de comparer les effets induits par un écoulement dit monophasique (injection CO₂-saumure à l'équilibre, i.e., acide carbonique) qui se traduit par la formation des wormholes et un écoulement dit diphasique (saumure et CO₂) qui entraîne une dissolution compacte. À travers une approche combinée d'expérimentation et de modélisation, (Snippe et al., 2020a) ont pu quantifier des schémas de dissolution obtenus pour différents stratégies d'injection CO₂-eau-gaz. Selon les auteurs, l'injection gazeuse ou co-injection de CO₂ et d'eau ont tendance à créer des wormholes à croissance rapide tandis qu'à une injection d'eau sans CO₂ dissous, la croissance des wormholes est lente.

(Wang et al., 2016) ont analysé le processus de convection en milieu poreux via la variation du nombre de Rayleigh et en particulier l'effet de la dispersion transversale sur la structure et les caractéristiques des digitations. Ainsi, via un programme expérimental mené dans une configuration 3D, les auteurs ont montré une certaine liaison entre la densité de nombre de doigts, le nombre de Rayleigh et la dispersion transversale. Selon (Cardoso and Andres, 2014), il semblerait qu'une augmentation de la vitesse de la réaction entraîne une forte diminution du taux de croissance des digitations et une forte diminution de leurs nombres au début de la convection. Ainsi, quand Da/Ra^2 augmente, il y a un retard d'apparition et un affaiblissement de la convection. De plus, (Riaz et al., 2006) ont montré l'influence du nombre de Rayleigh sur le temps de déclenchement des instabilités ainsi que la configuration des digitations développées dues au contraste de masse volumique. En effet, pour des nombres de Rayleigh relativement importants, l'interaction entre les digitations concurrentes est relativement forte et non linéaire. En revanche, pour des Ra faibles, les doigts sont plus épais avec une forte diffusion (Riaz et al., 2006) (Figure 20).

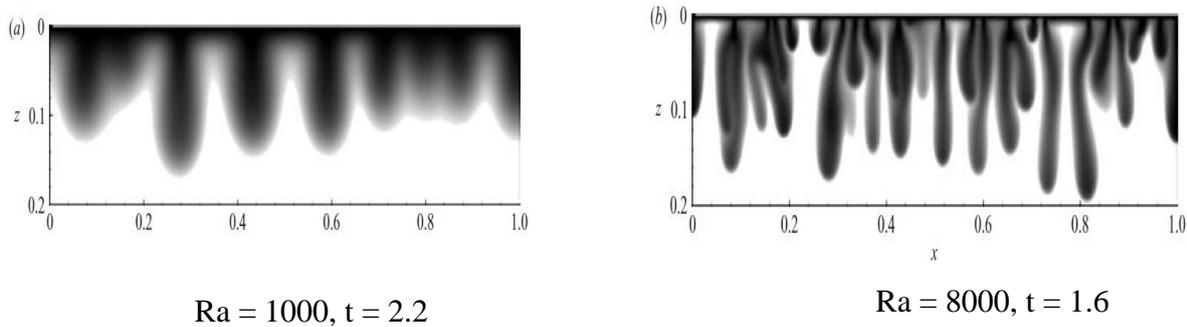


FIGURE 20. Instabilités hydrodynamiques avec différentes valeurs de Ra ; (Riaz et al., 2006)

Une étude de synthèse réalisée par (Quintard, 2013) sur la dissolution des cavités souterraines ou des milieux poreux souligne le rôle important joué par les nombres de Rayleigh et de Péclet sur la propagation des instabilités convectives. D'après les simulations de dissolution d'un tube menées par (Luo et al, 2012), il ressort que:

- Pour des Ra et Pe faibles, les gradients de concentrations sont petits et symétriques ;
- Pour des faibles Ra , l'augmentation du Péclet engendre un développement de la couche limite convective et l'écoulement reste relativement symétrique ;
- Pour des Pe faibles, l'augmentation de Ra entraînant le déclenchement de la convection naturelle marquée par l'apparition des cellules convective et donc des digitations engendrant une augmentation de la rugosité de la partie supérieure ;
- Pour des Ra forts, l'augmentation de Pe , les instabilités disparaissent et la rugosité de mur supérieur diminue (Quintard, 2013).

Par ailleurs, (Neufeld et al., 2010) montrent que l'interface entre le mélange méthanol/éthylène-glycol et l'eau saturant le domaine recule à une vitesse constante indépendamment de la position du panache. En effet, selon les auteurs, le flux convectif ne dépendrait que du nombre de Rayleigh. En outre, via l'analyse de leurs résultats, ils mettent en évidence que le nombre de Sherwood (Sh), mesure adimensionnelle du flux convectif, varie en fonction du nombre de Rayleigh (Ra) (Figure 21).

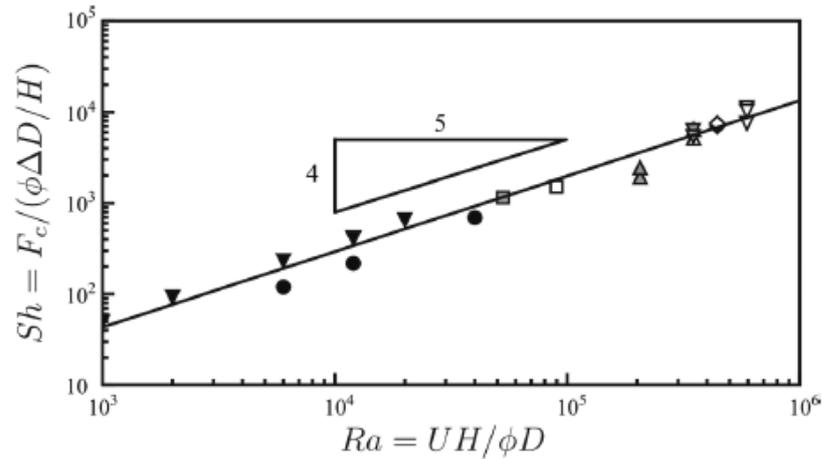


FIGURE 21. Données expérimentales montrant une dépendance linéaire entre le nombre de Rayleigh et le nombre de Sherwood (Neufeld et al., 2010)

Certains aspects traités ci-dessus se retrouvent également dans le travail expérimental de (Slim et al., 2013) via les six régimes obtenus (diffusif, croissance linéaire, croissance avec une forte déviation de la diffusion pure, fusionnement suggérant l'apparition d'une instabilité secondaire, réinitialisation et arrêt convectif). Ces régimes décrivent la dissolution du CO_2 dans un système aquifère idéalisé ou plus exactement la convection générée par la dissolution dans une cellule de Hele-Shaw pour des nombres de Rayleigh situés entre 100 et 1700. Il faut cependant noter que selon (Ennis-King and Paterson, 2007), le couplage réaction - convection dépend d'une part de l'efficacité de la réaction à modifier, les propriétés des fluides saturant le milieu poreux (température et/ou concentration) et d'autre part des paramètres du milieu poreux (porosité et perméabilité) (Ennis-King and Paterson, 2007). De même, le mélange convectif peut également créer une solution acide qui peut réagir avec la matrice solide en modifiant la porosité et les champs de perméabilité de la roche. Pour une réaction de dissolution chimique rapide, (Hidalgo et al., 2013) montrent que le schéma de dissolution ne suit pas exactement la géométrie des doigts. Ce phénomène est particulièrement localisé dans les régions caractérisées par un mélange fluide maximal qui correspond aux points de stagnation de l'écoulement. Un résultat similaire, c'est-à-dire l'initiation de la dissolution dans les régions de mélange localement élevé, a été obtenu par (Fu et al., 2015) qui ont étudié les schémas de dissolution dans le temps, résultant de la dissolution d'une roche carbonatée. Ce résultat est décrit via deux régimes. Dans le premier, appelé "allongement vers le bas", les canaux de dissolution, représentés par la variation de la porosité, suivent pratiquement le développement des doigts. La dissolution maximale est observée dans les régions de mélange fort situées aux interfaces

des doigts. Dans le second, appelé "allongement vers le haut", la dissolution maximale migre progressivement vers la couche diffusive initiale où les doigts nouveau-nés rencontrent la montée de la saumure, créant ainsi des gradients de concentration élevés et par conséquent un fort mélange et une forte réaction. La convection est contrôlée par l'équilibre entre les forces motrices flottantes et les mécanismes dissipatifs tels que la diffusion (Jiang et al., 2019).

Dans un aquifère hétérogène (Farajzadeh et al., 2011), où l'hétérogénéité en perméabilité a été caractérisée par un coefficient de Dykstra-Parsons (V_{DP}) et leur disposition spatiale représentée par une longueur de corrélation (λ_R), l'écoulement par convection naturelle est régi à travers l'existence de trois régimes (digitations, dispersion et channeling) (Figure 22).

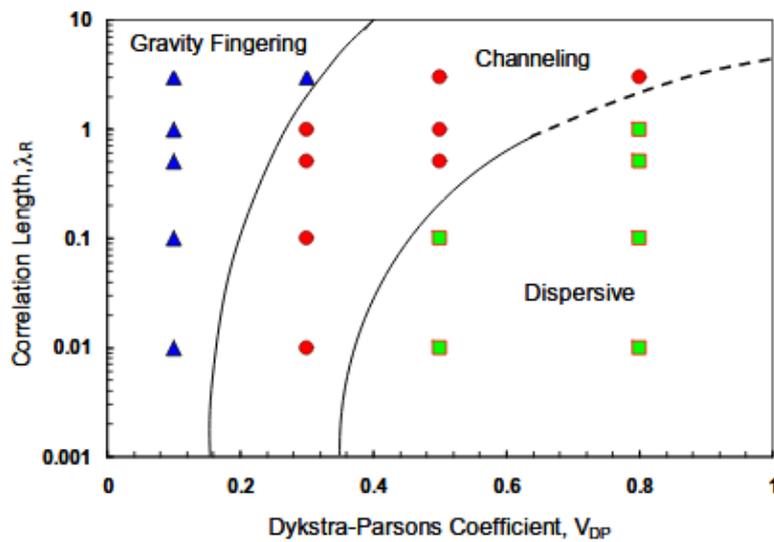


FIGURE 22. Régimes d'écoulements pour le contraste de densité (convection naturelle pour $Ra = 5000$) ; (Farajzadeh et al., 2011)

Le premier régime, i.e., digitations, correspondrait à une faible hétérogénéité. Le deuxième, i.e., la dispersion, à une forte hétérogénéité tandis le troisième régime correspondrait à une hétérogénéité moyenne.

(Privalov et al., 2019) via des expériences menées à l'échelle de laboratoire sur des échantillons soumis à des conditions de stockage de réservoir montrent que, outre l'hétérogénéité de la roche, la propagation de réseau de dissolution est également influencée par l'état de contraintes.

Par ailleurs, la plupart des études négligent le processus de dispersion mécanique qui peut être le facteur dominant de dissipation (Liang et al., 2018). (Nakanishi et al., 2016) étudient les instabilités de Rayleigh-Taylor dans un milieu granulaire à différents nombres de Ra et Pe .

Ainsi, lorsque le nombre de Péclet est supérieur à 10, la dispersion transversale augmente la largeur des doigts entraînant leur coalescence avec une forte incidence sur la diminution de la densité du nombre de doigts. De plus, la dispersion mécanique semble avoir également un impact sur le temps d'apparition des digitations ainsi que sur le taux de transfert de masse.

(Meng et al., 2020) simule à l'échelle du pore les instabilités hydrodynamiques couplées à la réaction chimique (solide-fluide). Il ressort de son étude que tous les modèles d'écoulements dépendent de la compétition entre la masse volumique, le taux de réaction et la dissolution. En outre, les instabilités hydrodynamiques déclenchées par le contraste de masse volumique sont supprimées par la réaction chimique qui diminue la masse volumique locale.

IV.2.2- Instabilités hydrodynamiques induites par le contraste de masse volumique dans les fractures

Comme nous l'avons déjà souligné, parmi les formations aquifères, les aquifères salins sont les principales cibles pour la séquestration géologique du CO₂ en raison de leurs propriétés hydro-physico-chimiques. Toutefois, une préoccupation majeure est la fuite de CO₂ de la formation cible en raison de la présence de fractures ou de failles (Kim et al., 2019). Les réservoirs naturels fortement fracturés sont considérés inadaptés pour un stockage du CO₂ à long terme. Malgré ce constat, des fractures sont observées dans de nombreux réservoirs de stockage de CO₂. Déterminer leurs effets sur les mécanismes de piégeage du CO₂ permet, d'une part, la prédiction du comportement migratoire des panaches de CO₂ et d'autre part, la gestion des risques potentiels liés aux fuites. Selon (Graf and Therrien, 2005), les hétérogénéités telles que les fractures jouent un rôle majeur dans la migration des fluides à densité variable. Le transport de soluté dépendant de la masse volumique dans des milieux poreux fracturés ont été objets de certaines études (Graf and Therrien, 2005; Therrien and Sudicky, 1996; Vujević and Graf, 2015). En effet, (Graf and Therrien, 2005) montrent que l'écoulement à masses volumiques variables dans les fractures provoque un écoulement convectif au sein de la matrice poreuse et que la fracture à haute perméabilité agit comme une barrière à la convection. Selon (Kim et al., 2019), dans les milieux à la fois homogènes et hétérogènes, les fractures servent de passages préférentiels pour des panaches riches en CO₂ et pour l'eau. De plus, les fractures dans les milieux hétérogènes engendrent un transfert de masse plus dynamique (Kim et al., 2019).

Une analyse de la stabilité linéaire a été menée par (Jafari Raad and Hassanzadeh, 2018) afin d'étudier l'effet des propriétés physiques des milieux poreux fracturés et de l'interaction entre la matrice et la fracture sur le début de la convection induite par le contraste de masse volumique. Leurs résultats montrent que la stabilité du système est conditionnée par l'écoulement inter-porosité de la fracture ainsi que la capacité de stockage de la fracture (Jafari Raad and Hassanzadeh, 2018). Malgré ces résultats, la caractérisation des effets de la fracture sur la dissolution convective du CO_2 reste encore un sujet à explorer.

Hormis cet aspect de stockage de CO_2 , l'influence des hétérogénéités des propriétés physiques des fluides sur les régimes de dissolution dans les fractures a été objet d'investigation. Ainsi, (Luo et al., 2012) montrent que le processus de dissolution solide-liquide dépend fortement des nombres de Péclet et Rayleigh. Certains auteurs ont exploré ce phénomène mais dans des configurations particulières représentées par des fractures verticales et/ou horizontales (Chaudhuri et al., 2009; Dijk et al., 2002; Luo et al., 2012; Oltéan et al., 2013). Ils montrent que, sous l'effet du contraste de masse volumique, les schémas de dissolution dépendent, outre les nombres adimensionnels Pe et Da , de l'orientation spatiale de la fracture, des nombres de Rayleigh, Bond et/ou Richardson. En fait, (Oltéan et al., 2013) ont observé que les effets induits par ce contraste entraînent des modifications significatives de la géométrie de la fracture. Ces observations suggèrent donc un couplage fort entre les propriétés physiques des fluides, le transport convectif et la cinétique de réaction. À cet effet, un diagramme 3D faisant intervenir les trois nombres adimensionnels Péclet (Pe), Damköhler (Da) et Richardson (Ri) a été envisagé (Figure 23). Ainsi, il ressort que :

- Pour des valeurs élevées de Pe et de Da faibles, la fracture est soumise à un élargissement uniforme correspondant à un régime dominé par convection ;
- Pour des faibles valeurs de Ri et de Pe , la dissolution se produit en entrée de la fracture. Les changements dans les fractures sont principalement dus à la réaction cinétique ;
- Pour des valeurs faibles de Pe , mais Da élevé et Ri modéré, le processus de dissolution provoque un élargissement local non uniforme de la fracture. Ce modèle d'altération peut être vu comme un régime transitoire, un état d'équilibre globalement instable résultant d'un équilibre entre les différents mécanismes impliqués ;
- Pour Da élevé, Pe modéré et Ri modéré à élevé, les forces de flottabilité deviennent importantes ;
- Pour des valeurs Pe et Ri données, une augmentation de la valeur de Da accélère la dissolution de la partie supérieure de la fracture.

Les résultats indiquent que la gravité joue un rôle clé dans la dissolution des fractures dans les formations évaporites (Oltéan et al., 2013).

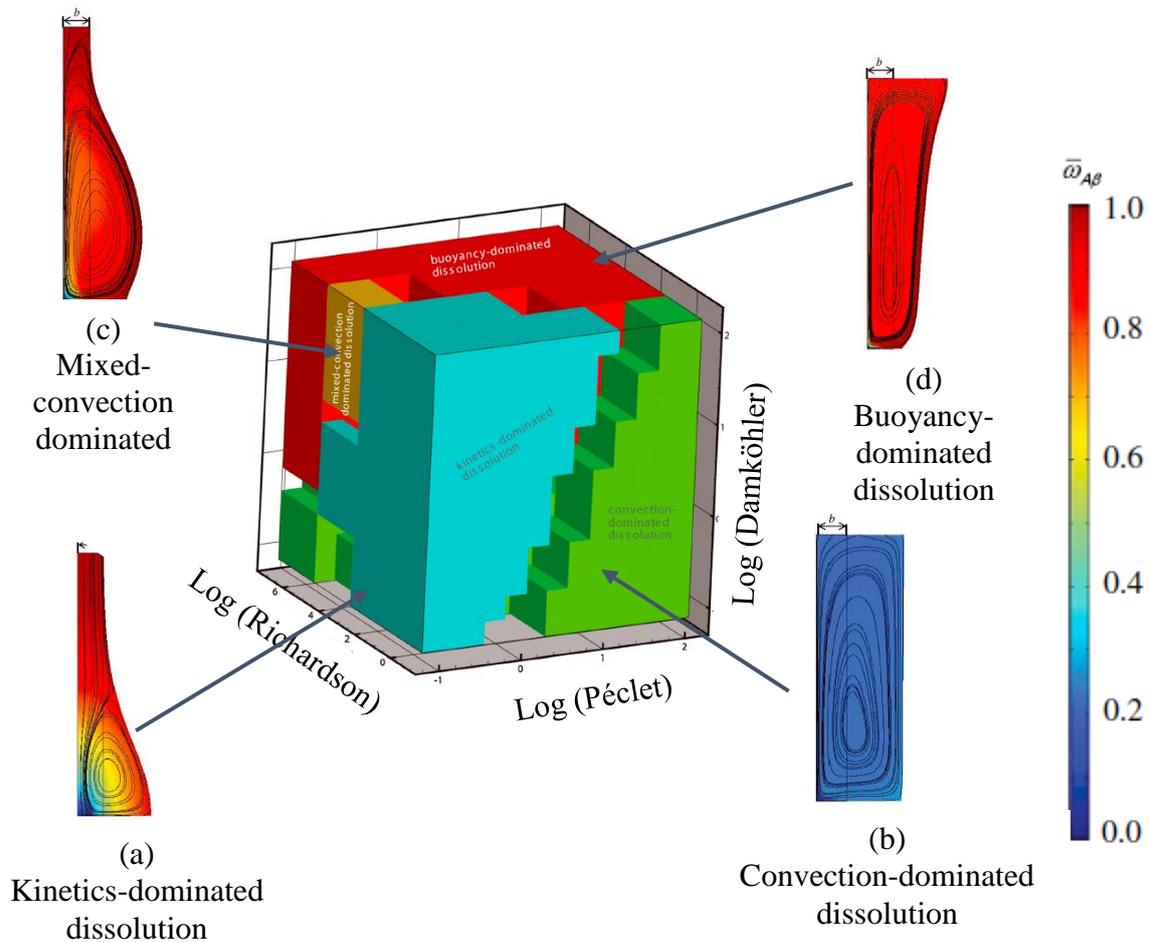


FIGURE 23. Diagramme de comportement 3D des régimes de dissolutions dans les fractures (Oltéan et al., 2013)

(Glass and Nicholl, 1995) ont étudié la dissolution d'une phase fluide piégée (air) au sein d'une phase fluide d'écoulement (eau) dans une fracture horizontale. À travers l'analyse du gradient de concentration, ils ont mis en évidence l'importance des forces capillaires qui contrôlent l'écoulement. De même, le transport de soluté dans une fracture partiellement saturée a été également étudié par (Detwiler et al., 2002). En effet, les champs de concentrations expérimentaux montrent à la fois la chenalisation de l'écoulement induite par les régions d'air piégé dans la fracture et l'effet de la forte diffusion au voisinage de ces régions. Dans l'étude de (Tenchine and Gouze, 2005), l'investigation a été orientée vers le développement de chemins d'écoulements préférentiels et la dispersion anormale induite par de faibles contrastes de masse

volumique dans une fracture naturelle tortueuse. Les simulations numériques qui reproduisent relativement bien les expériences de laboratoire montrent que les propriétés de traceur en termes de dispersion peuvent être modifiées dès que le contraste de masse volumique exprimé comme étant le rapport entre la différence des masses volumiques traceur - eau et la masse volumique de l'eau dépasse 0.05%. Selon (Shikaze et al., 1998), le développement d'un panache de soluté dense dans un milieu géologique fracturé peut être très irrégulier en raison de la complexité du réseau de fractures ainsi que de la présence de cellules de convection qui peuvent se former en raison du contraste de densité entre le soluté envahissant et l'eau souterraine ambiante. De plus, à partir d'un modèle numérique, (Shikaze et al., 1998) ont montré que l'évolution du panache de soluté dense dans les fractures verticales est affectée par le développement de cellules de convection dans les blocs de matrice poreuse entre les fractures verticales.

Toutes ces études montrent l'impact des instabilités hydrodynamiques sur les effets de la dissolution dans fractures.

V- Conclusion partielle

Lorsqu'une phase fluide réactive s'écoule dans une roche poreuse contenant des minéraux solubles (e.g., des grains de carbonate ou d'halite) qui ne sont pas en équilibre avec la solution, elle dissout généralement la matrice poreuse, créant ainsi différents types de modèles de dissolution qui dépendent du débit d'écoulement et le taux de dissolution. Ces modèles de dissolution ont été définis comme : compacts, coniques, dominants, ramifiés et uniformes. Une forte dépendance entre le développement de ces régimes et les nombres adimensionnels tels que le nombre de Péclet, défini comme le rapport entre l'advection et la diffusion, et le nombre de Damköhler, qui compare généralement la force de la vitesse de réaction de l'interface fluide/solide à celle de la diffusion moléculaire a été établie. Si le nombre de Péclet est très faible, impliquant une faible advection, le fluide réactif est rapidement consommé à proximité de la surface d'injection, ce qui entraîne un modèle de dissolution compact. En revanche, s'il est suffisamment élevé, la solution acide traverse pratiquement tout le milieu poreux sans être complètement consommée, ce qui entraîne le développement d'un modèle de dissolution uniforme. Entre ces deux cas extrêmes, la variation des indices de Péclet/Damköhler entraîne l'apparition et le développement de canaux hautement conducteurs appelés wormholes coniques, dominants et ramifiés. La propagation de ces instabilités ainsi que leurs processus de formations sont influencées par l'hétérogénéité minéralogique des roches, le

type et la consommation d'acide injecté, le débit injecté et le volume de pores pour la percée (PVBT), les propriétés du milieu (porosité, perméabilité), ainsi que l'existence et la répartition spatiale des fractures naturelles.

Quant aux instabilités hydrodynamiques induites par le contraste de masse volumique et température, ce sont principalement les instabilités de Rayleigh-Taylor et de Rayleigh-Bénard. Le contraste de masse volumique entre les deux fluides saturant le milieu engendre des forces de flottabilités (Archimède) dues à l'apparition et le développement des cellules convectives. L'apparition de ces cellules est souvent reliée au nombre adimensionnel de Rayleigh (Ra) défini comme étant le rapport entre les forces de flottabilité et les forces de diffusivités de masse et de moment. Ces études, évoquées particulièrement lors du stockage de CO₂ ou la dissolution dans les fractures, se sont principalement basées sur le déclenchement de ces cellules de convections, la géométrie des doigts formés ainsi que les paramètres influençant leurs propagations. À notre connaissance aucune étude ne s'est réellement focalisée sur les effets de ces instabilités hydrodynamiques (convection naturelle) couplés aux différents régimes de dissolution induites par les interactions roches-fluides (wormholes).

D'où une question demeure :

Quels sont les effets des instabilités induites par le contraste de masse volumique sur les instabilités ou plus exactement les wormholes générés par les interactions roches-fluides ?



CHAPITRE II :

**MISE EN ŒUVRE EXPERIMENTALE
BIDIMENSIONNELLE (2D) ET
TRIDIMENSIONNELLE (3D)**

CHAPITRE II : MISE EN ŒUVRE EXPERIMENTALE BIDIMENSIONNELLE (2D) ET TRIDIMENSIONNELLE (3D)

Ce présent chapitre fait l'inventaire de toutes les démarches expérimentales employées. Il s'agit d'une part, des dispositifs expérimentaux ainsi que la méthodologie d'acquisition des données des essais en cellule de type Hele-Shaw (2D) et d'autre part, les moyens utilisés pour les essais en carotte (3D), ainsi que les méthodes de traitement appliquées, en particulier le traitement d'image.

I- Mise en œuvre expérimentale bidimensionnelle (2D)

I.1- Matériau utilisé

Le matériau utilisé pour les expériences 2D est constitué d'un mélange de 90% de grains de sel (NaCl) avec une masse volumique sèche $\rho_{\text{NaCl}} = 2160 \text{ kg.m}^{-3}$ et de 10% de plâtre de Paris ($\text{CaSO}_4, \frac{1}{2} \text{H}_2\text{O}$) avec une masse volumique sèche $\rho_{\text{CaSO}_4, \frac{1}{2}\text{H}_2\text{O}} = 2790 \text{ kg.m}^{-3}$. Le plâtre a été ajouté afin de renforcer la tenue mécanique du sel. Les deux matériaux sont broyés et tamisés jusqu'à une taille de grains de $80 \mu\text{m}$ à $125 \mu\text{m} \pm 1\%$ avant d'être mélangés. La masse volumique sèche du mélange obtenu est de 2260 kg.m^{-3} . Un test de cisaillement direct a été effectué pour déterminer les paramètres de résistance au cisaillement de ce matériau composite, i.e., la cohésion c [Pa] et l'angle de frottement interne ϕ [°]. Dans des conditions de saturation identiques aux expériences envisagées, les valeurs de $c = 42 \text{ kPa}$ et $\phi = 32^\circ$ ont été déterminées. Le sel et le gypse (roche minérale utilisée à la fabrication du plâtre) ont des constantes de vitesse de réaction similaires ($2.4 \times 10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$ pour le sel et 4.5 à $9 \times 10^{-6} \text{ m.s}^{-1}$ pour le gypse) (Colombani, 2008; Dutka et al., 2020a; Weisbrod et al., 2012) même si l'ajout d'un agent tensioactif dans le plâtre commercial peut réduire considérablement la valeur de la vitesse de réaction. Toutefois, la solubilité du sel et du plâtre est sensiblement différente (358.5 g.l^{-1} pour le sel et 2.5 g.l^{-1} pour le gypse) et peut entraîner, à faible vitesse d'injection, une dissolution différenciée pour les deux matériaux.

Par ailleurs, le choix du matériau (NaCl) est basé sur le fait qu'il permette d'étudier le contraste de masse volumique et qu'il modifie sensiblement la masse volumique de l'eau selon

la concentration (Figure 24). De plus, il présente une chimie ‘simple’ ainsi qu’une cinétique de réaction rapide.

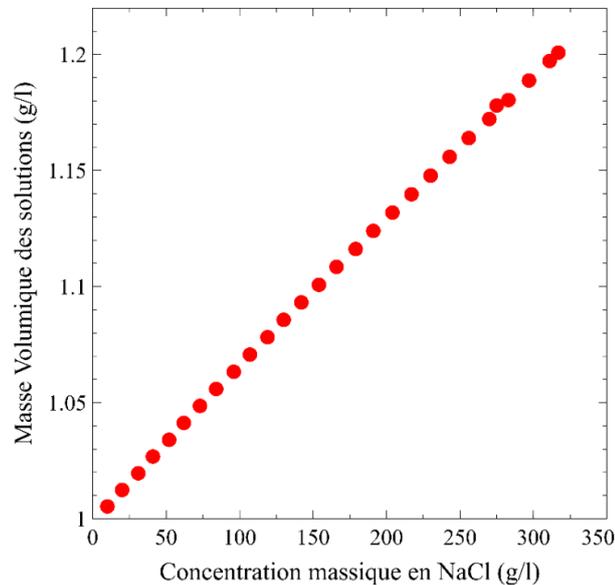


FIGURE 24. Variation de la masse volumique des solutions en fonction de la concentration massique en NaCl

I.2- Dispositifs expérimentaux

Pour la modélisation physique bidimensionnelle des expériences, une cellule du type Hele-Shaw est utilisée (Figure 25). Il s’agit d’une cellule constituée d’un ensemble de deux plaques de verre transparent parallèles de taille (hauteur $h = 30$ cm x largeur $l = 22$ cm) et d’épaisseur $b = 1$ cm, maintenue par un cadre en aluminium (Figure 26). Ce système en aluminium assure la rigidité de la cellule et permet de la placer dans la configuration désirée, i.e., horizontalement ou verticalement. Entre les deux plaques de verres scellées latéralement avec de la silicone, sont insérés des séparateurs de largeurs $f = 2$ cm. Ces séparateurs assurent un écart de $e = 0.05$ cm entre les plaques de verres. Le volume total utile de la cellule est donc de 27 cm³. Le paramètre de forme ($\gamma = (l-2 \times f) / h$) entre l’ouverture et la hauteur du domaine est de $\gamma = 0.0017 \ll 1$. Ce rapport négligeable amène à considérer la cellule de type Hele-Shaw comme étant un domaine à l’échelle macroscopique pouvant prendre en compte toutes les propriétés de transport réactifs (Felder, 2003).

Des réservoirs supérieurs et inférieurs sont ajoutés afin de permettre l'entrée et la sortie du fluide du système. Ces réservoirs de forme rectangulaire en polyméthacrylate de méthyle (PMMA) présentent les caractéristiques suivantes : longueur : 22 cm, largeur : 2 cm et hauteur : 2.2 cm. Chaque réservoir possède 4 entrées cylindriques de diamètre de 0.03 mm espacés de 4.4 cm sur lesquels sont collés des joints afin d'assurer l'étanchéité (Figure 27). Les réservoirs sont connectés à des tubes d'alimentation permettant la circulation (injection/évacuation) du fluide à l'intérieur de la cellule. À l'entrée du réservoir inférieur est insérée du feutre géotextile en polypropylène. En effet, il joue un rôle déterminant dans l'essai : d'une part il évite une obstruction des réservoirs par le matériau, et d'autre part il garantit une injection surfacique du fluide à l'entrée de la cellule.

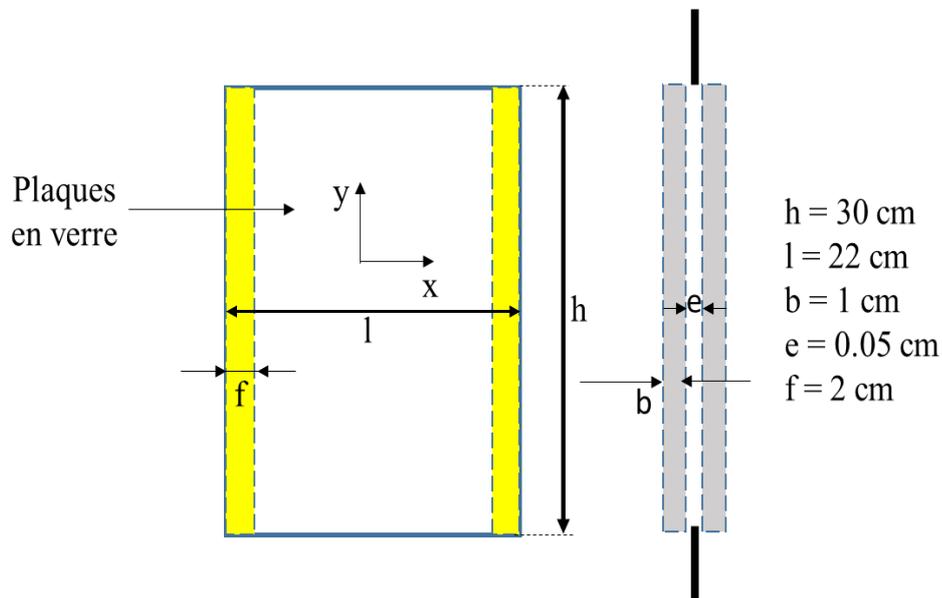


FIGURE 25. Vue schématique de la cellule de type Hele-Shaw

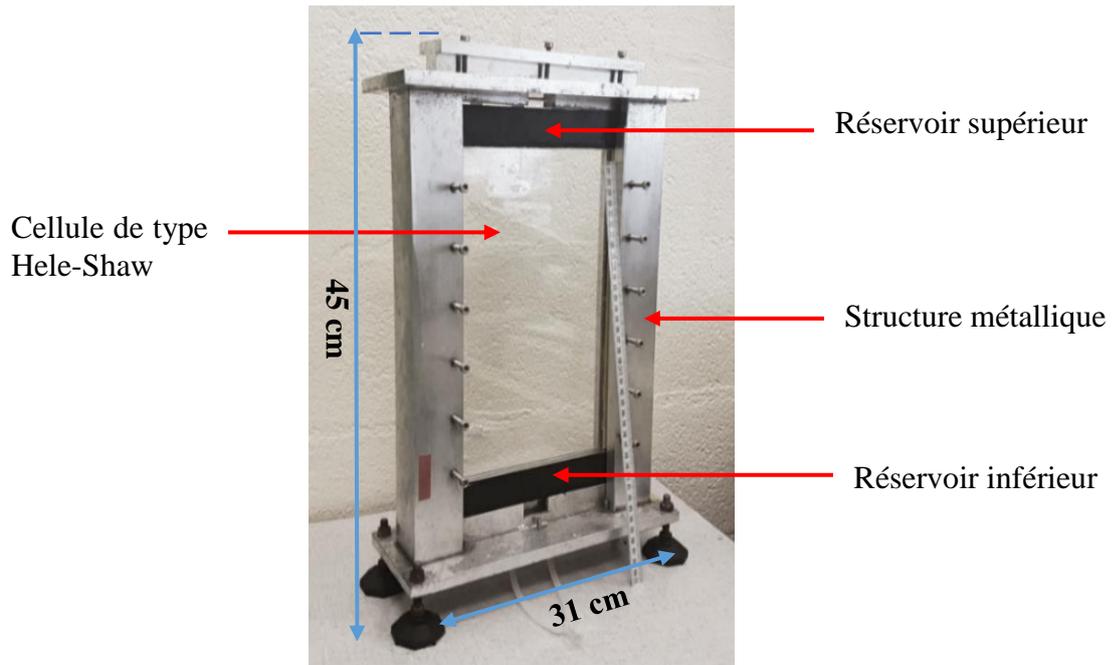


FIGURE 26. Cellule scellée dans une structure métallique

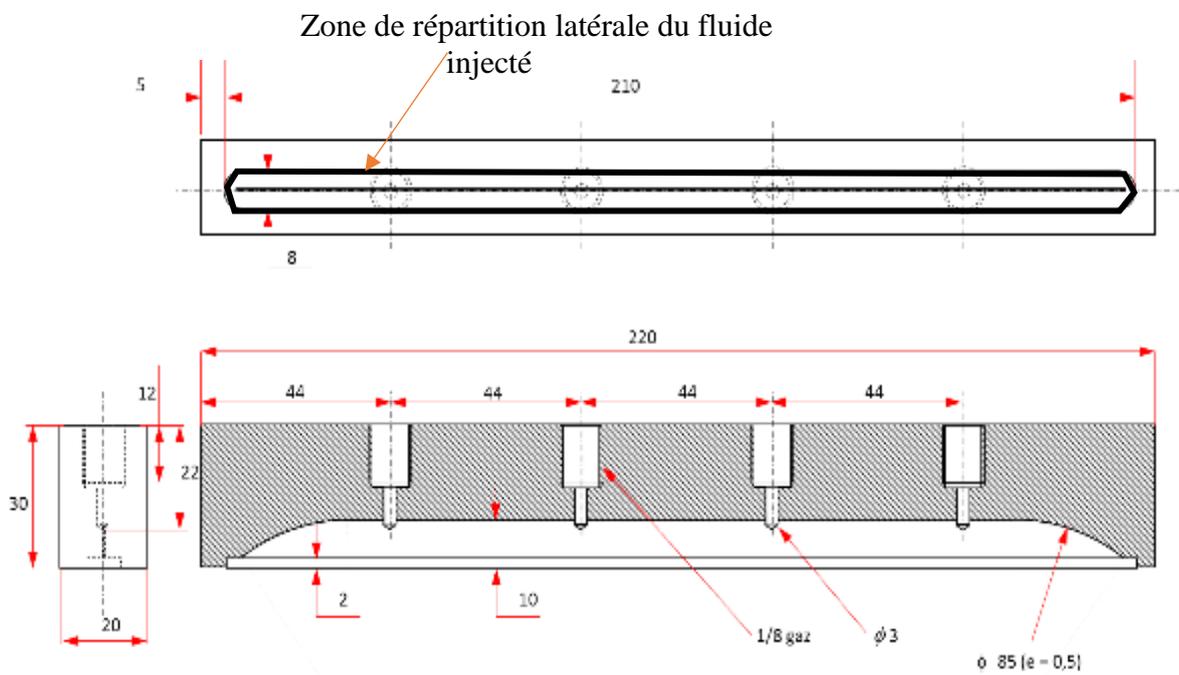


FIGURE 27. Vue schématique de la tête d'injection (Réservoir). Les dimensions indiquées sont en mm.

Outre la cellule et les réservoirs, le dispositif expérimental (Figure 28) est aussi constitué d'un appareil photo numérique de type Canon EOS avec une résolution de 4616 x 3744 pixels pour les prises de vue de la dissolution. Pour les deux configurations de la cellule, l'appareil photo est situé à une distance focale $f_x = 45$ cm. De plus, un rétro-éclairage uniforme constitué d'une feuille lumineuse est utilisé lors de l'acquisition afin d'améliorer la visibilité des figures de dissolution à l'intérieur du massif. Il a la particularité de fournir une lumière bleue homogène sur toute sa surface car celui-ci est directement collé à l'arrière de la cellule. Pour s'assurer d'une injection continue à débit constant, une pompe seringue avec une quantité maximale de 60 ml est utilisée. À ce dispositif est relié un ordinateur permettant la sauvegarde automatique des images de dissolution acquises.

Par ailleurs, deux principales configurations de l'ensemble du dispositif expérimental sont utilisées : une configuration dite horizontale (Figure 28.a) et une configuration dite verticale (Figure 28.b). L'intérêt de ces configurations est de pouvoir créer les conditions favorables au développement d'un wormhole dans un champ gravitationnel (choix de la configuration verticale) et de le comparer lorsque ce champ gravitationnel est supprimé (cas d'un traceur – choix de la configuration horizontale).

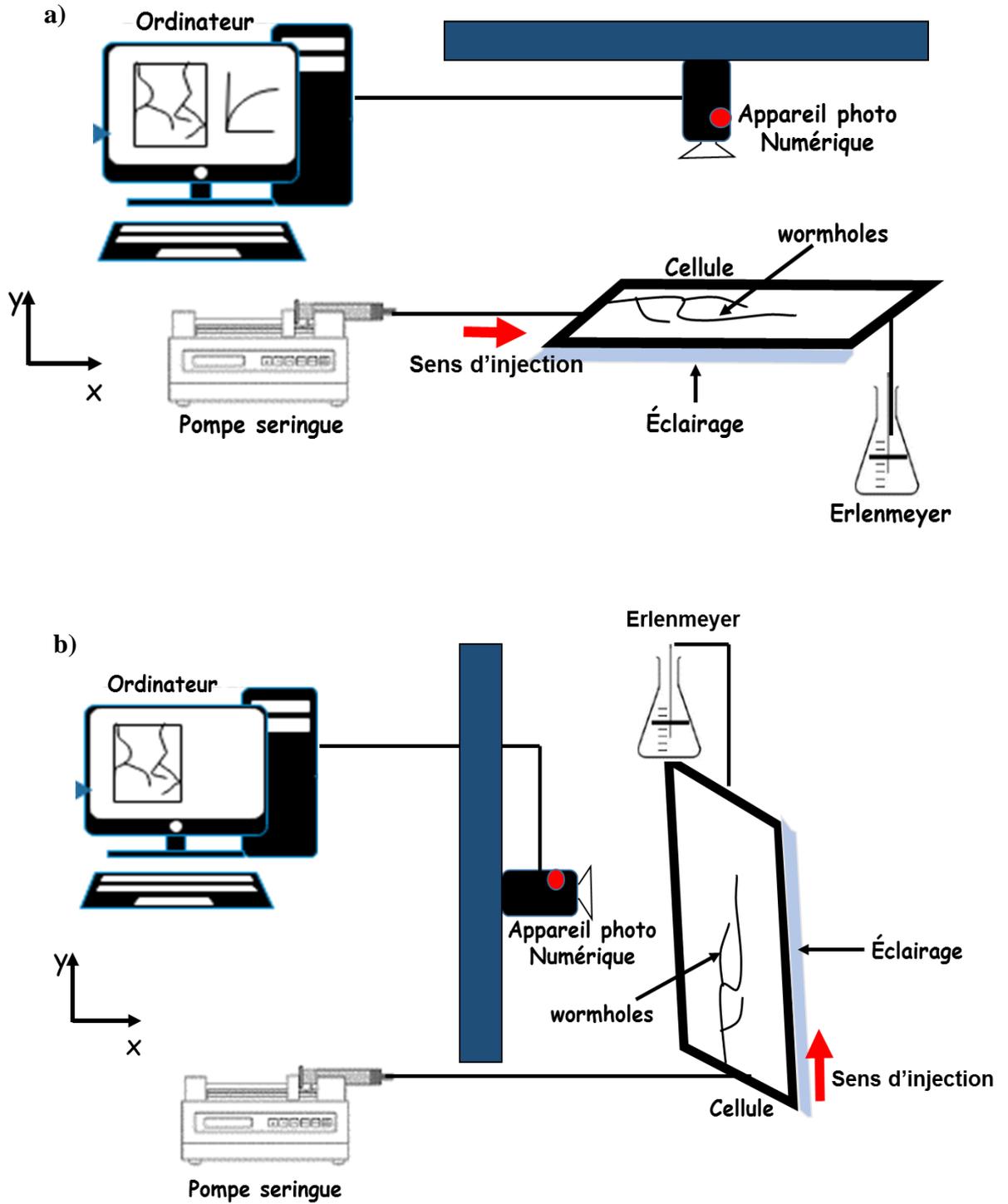


FIGURE 28. Dispositifs expérimentaux des essais bidimensionnels (2D) : a) Configuration horizontale ; b) Configuration verticale

I.3- Déroulement d'un essai bidimensionnel (2D)

Le protocole expérimental pour un essai bidimensionnel comporte 5 étapes :

I.3.1- Remplissage de la cellule

Le remplissage de la cellule se fait à l'aide d'une table vibrante munie de 2 moteurs vibrants (6000Tr/min Max) avec une fréquence maximale de 50 Hertz. Pour s'assurer d'une certaine reproductibilité du remplissage de la cellule, les grains du mélange sel/plâtre sont ajoutés progressivement à l'intérieur de la cellule via un entonnoir fixé à l'entrée de la cellule. Le matériau est tassé uniformément depuis la partie inférieure de la cellule et le milieu poreux ainsi obtenu est compacté. La vibration favorise l'entrée du matériau à l'intérieur de la cellule en assurant une répartition uniforme du mélange. De plus, il est important de s'assurer que la vibration ne laisse pas des vides à l'intérieur du massif. Après le remplissage de la cellule, la porosité du milieu (ε) est calculée via l'expression suivante : $\varepsilon = 1 - (M / (\rho_{grains} \times V))$ où M : masse totale de la phase solide ; ρ_{grains} : masse volumique des grains (2260 kg.m³) ; V : volume de la cellule (2.7 x10⁻⁵ m³). La valeur calculée pour l'ensemble des essais est de l'ordre de 42±5%.

D'une manière générale, ce protocole permet d'assurer une perméabilité d'environ 5x10⁻¹² – 1.5x10⁻¹¹ m², telle qu'estimée à l'aide de l'équation de Kozeny-Carman ($K [m^2] = \frac{\varepsilon^3 D_{50}^2}{180(1-\varepsilon)^2}$ (Bear, 1972)) avec $D_{50} = 100 \mu\text{m}$. Cette formulation est pertinente pour les milieux granulaires homogènes et prend en compte la taille des particules dans les estimations. Quant à la perméabilité à l'intérieur de la zone dissoute (wormholes), elle est limitée par l'espacement entre les plaques et elle est de 2.1x10⁻⁸ m², comme l'indique la loi cubique ($e^2/12$) avec e l'espace entre les plaques.

I.3.2- Saturation du milieu poreux

La phase de saturation consiste à remplir verticalement du bas vers le haut le milieu poreux avec de l'eau sursaturée en NaCl (Figure 29). Cette opération est réalisée à une vitesse relativement faible estimée en moyenne à 6 x 10⁻³ cm.s⁻¹ générée par une augmentation graduelle de la différence de charge via un siphon. Cette faible vitesse permet une saturation homogène (caractérisée par un front de saturation rectiligne) en évitant toute désorganisation

des grains du milieu. La saturation du milieu et des réservoirs prend en moyenne entre 4h et 5h et nécessite un volume de saumure maximal de 5 ml. L'arrêt de la phase de saturation est marqué par la sortie du fluide par le réservoir supérieur. Une fois le processus de saturation terminée, le système est fermé (exutoire et entrée). Il convient de mentionner que toute fuite constatée lors de la phase de saturation amène à l'arrêt systématique de l'opération et au démontage du dispositif expérimental.

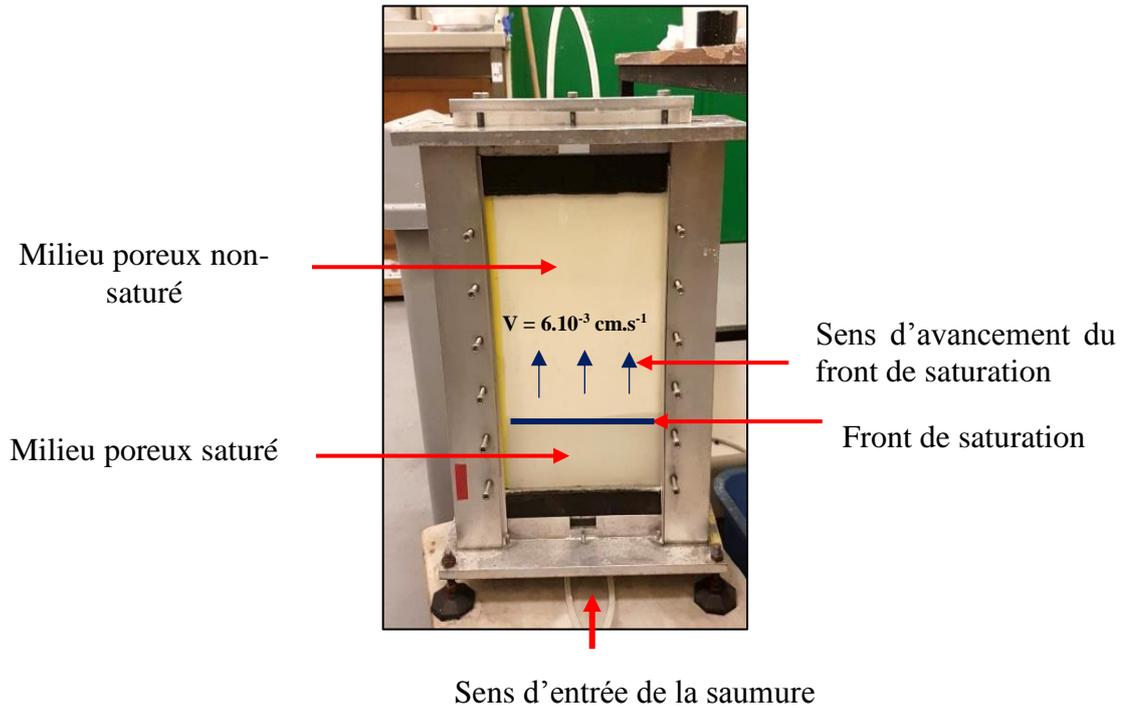


FIGURE 29. Mise en saturation du milieu

I.3.3- Injection et acquisition de données

L'injection est faite à débit constant sur toute la largeur ($l = L - 2 \times f = 18 \text{ cm}$) de la cellule (cf. Figure 25). Les débits injectés dans les deux configurations (horizontale & verticale) sont compris dans l'intervalle $[0.1 \text{ ml.h}^{-1} ; 500 \text{ ml.h}^{-1}]$. Il s'agit de l'injection d'eau pure déminéralisée (masse volumique de $\rho_{inj} = 999.28 \text{ kg. m}^{-3}$ avec une viscosité dynamique de $10^{-3} \text{ Pa.s}^{-1}$ à 20°C). En configuration verticale comme horizontale, l'injection est effectuée dans la partie « inférieure » de la cellule, i.e., en utilisant le réservoir inférieur. Autrement dit, l'injection est faite dans le même sens que la saturation. L'intérêt du sens d'injection en configuration verticale est de pouvoir créer les conditions favorables pour un couplage entre les instabilités hydrodynamiques et chimiques. Le contraste de masse volumique ($\Delta\rho^*$) pour la

configuration horizontale est négligé tandis qu'en configuration verticale, il est de $\Delta\rho^* = (\rho_{\text{sat}} - \rho_{\text{inj}}) \approx 200 \text{ kg.m}^{-3}$.

La phase d'acquisition quant à elle, consiste à faire des prises de vue lors de la propagation de la solution injectée à l'intérieur du massif à des intervalles de temps réguliers. Les prises de vue permettent de suivre la dynamique du processus de dissolution. Un exemple est donné par la Figure 30 montrant une compilation de 3 images acquises à différent pas de temps. Cette compilation permet la visualisation à un temps donné des changements morphologiques du wormhole illustré par des couleurs différentes.

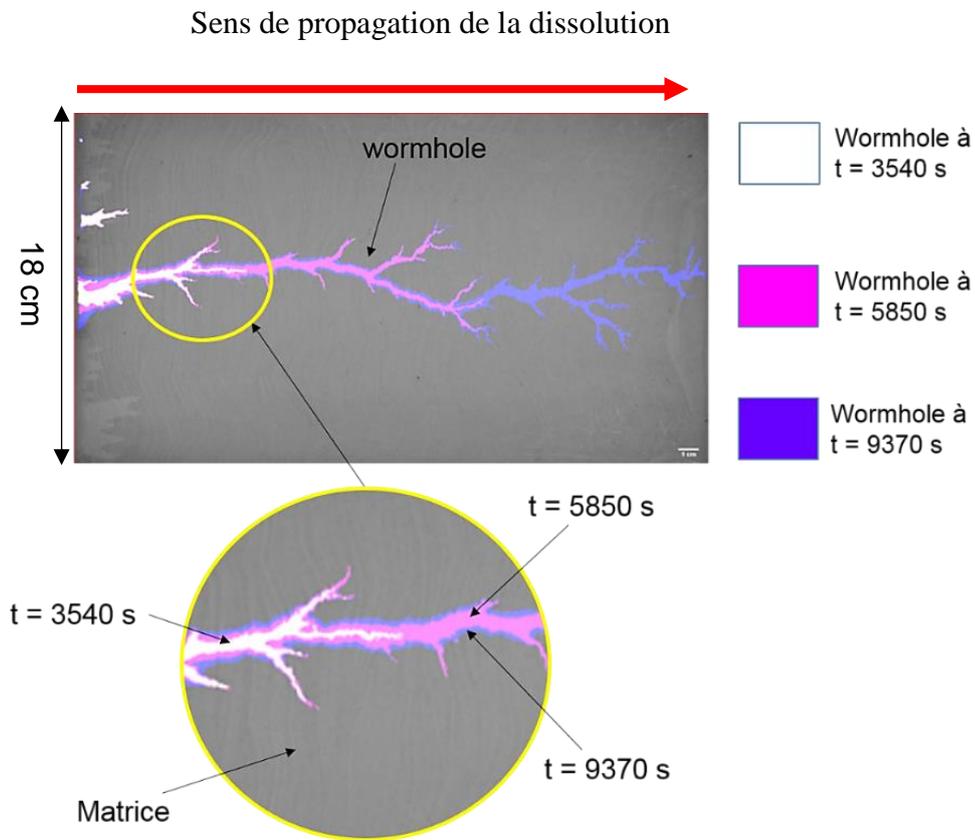


FIGURE 30. Illustration de la dynamique de la dissolution lors de la phase d'acquisition à différents temps (compilation d'images), couleur blanche $t = 3540 \text{ s}$, couleur rose $t = 5850 \text{ s}$, couleur bleue $t = 9370 \text{ s}$

La vitesse d'acquisition des données (c'est-à-dire le nombre d'images / temps de prises de vues ou délai de déclenchement) est adaptée au débit imposé. En effet, le nombre d'images par essai varie entre 40 et 1200 images tandis que le délai de déclenchement imposé à l'appareil photo numérique varie entre 10 secondes et 300 secondes. Par ailleurs, un calibrage des images est effectué pour chaque test conduisant à une valeur de résolution moyenne de 1 pixel / $68 \mu\text{m}$.

Il nous convient de rappeler ici que la finalité de l'acquisition expérimentale porte sur l'obtention d'un jeu de données couvrant au mieux la dynamique de la dissolution du milieu poreux. Après la phase d'acquisition, il est donc important de traiter les images obtenues afin d'en extraire des informations permettant l'interprétation la plus complète de notre expérience.

I.3.4- Traitement de données sur ImageJ (Fiji)

Les images acquises au cours des essais de dissolution sont traitées à l'aide du logiciel ImageJ (Fiji) téléchargeable sur le site web imagej.net/Fiji/Downloads. Le processus de traitement proposé vise à transformer les données brutes en images segmentées avec deux phases (dissoute et non dissoute), éventuellement trois (dissoute, partiellement dissoute et non dissoute) permettant ainsi la caractérisation morphologique de régimes obtenus (wormholes). En effet, ImageJ (Fiji) est une multi-plateforme de traitement et d'analyse d'images installable sur tous les ordinateurs dotés de Java. Il favorise le traitement des images matricielles en 8,16 et 32 bits sous différents formats (stacks, JPEG, TIFF, BPM, RAW, etc.). Le choix s'est essentiellement porté sur ce logiciel parce qu'il est gratuit et permet de développer et d'écrire des macros (automatisation des tâches). Il convient de mentionner que ces macros sont constituées d'une série de commandes incluant parfois des plugins qui ont permis de calculer certaines propriétés morphologiques. Toutes ces macros ont permis de réduire la durée du traitement ainsi que les erreurs et biais liés aux manipulations des différentes piles d'images.

Les phases de traitement de nos données sont réparties en plusieurs opérations : Les images brutes acquises initialement codées en RGB (Rouge-vert-bleu) (256 x 256 x 256 valeurs) sont converties en 8 bits (256 valeurs) (nuances de gris) (Figure 31). Le passage RGB en 8 bits génère donc une perte de quantité d'information. Toutefois, cette conversion est fortement recommandée car elle permet également de gagner des octets en mémoire. Par ailleurs, les expériences réalisées étant relativement monochromes, la perte d'information reste modérée.

Une fois convertie en 8-bits, ces images sont rognées afin de supprimer les sections non pertinentes telles que les réservoirs ou les bords latéraux de la cellule. (Figure 31.b)

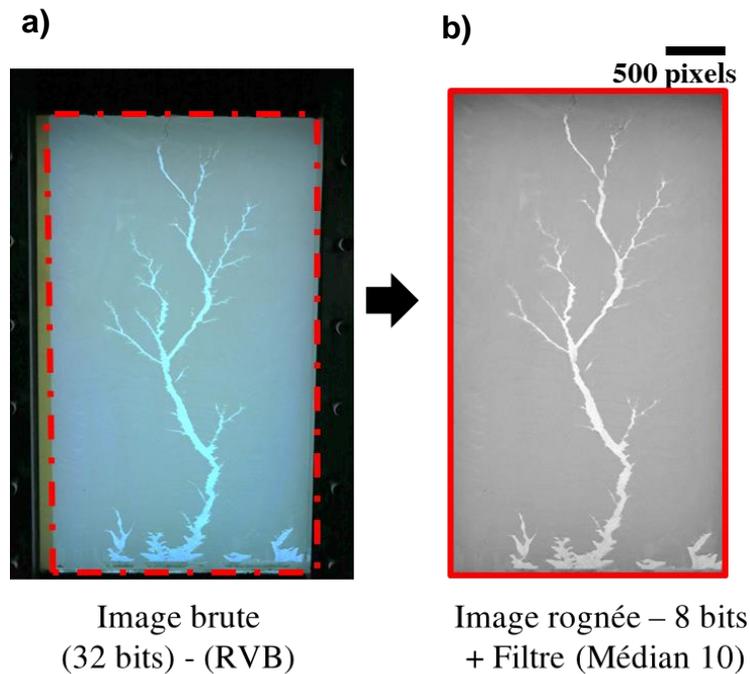


FIGURE 31. Exemple de la conversion d'image ; a) Image brute RGB b) Image niveaux de gris 8 bits rognée

Ces images rognées sont ensuite filtrées à l'aide d'un filtre médian de 10 pixels de rayon afin de supprimer le bruit apparaissant lors de la phase d'acquisition. En effet, le filtre médian remplace les pixels par la valeur médiane des pixels environnants comme l'on peut le voir dans l'exemple suivant (Figure 32) :

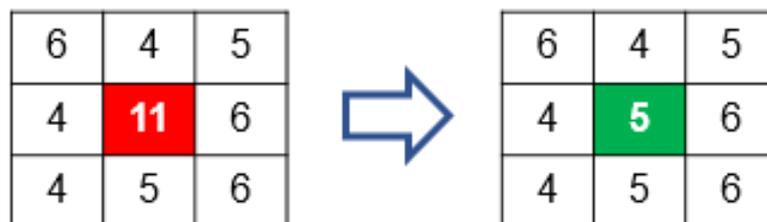


FIGURE 32. Illustration du filtre médian (de rayon 1) sur une image matricielle en transformant le pixel 11 en 5 (valeur médiane des 8 pixels voisins)

Après transformation des images en échelle de gris 8 bits filtrées, la première image avant l'injection est soustraite de l'ensemble des images acquises. Une telle opération permet de supprimer les artefacts qui sont générés soit par le processus de remplissage, soit par l'acquisition d'images, comme le gradient vertical des niveaux de gris (Figure 33-b). Les images sont ensuite segmentées à l'aide d'une méthode basée sur le seuillage. Ce seuillage implique la

lecture des histogrammes d'intensités des images brutes (ou niveaux de gris) permettant de définir la valeur seuil à choisir (Figure 34.a). Cependant, cette valeur seuil doit impérativement être identique pour l'ensemble des images d'un essai donné. De même, le seuillage permet une « binarisation » automatique de l'image et donc d'affecter aux pixels qui seront considérés comme faisant partie de la région d'intérêt (wormholes) une valeur de 255 (Noir) et 0 (Blanc) pour le milieu poreux.

Le seuillage et la binarisation permettent de séparer le wormhole de la matrice (Figure 33.c). L'histogramme issu de cette transformation est illustré par la Figure 34.b. Enfin, pour des raisons de clarté et d'illustration, des images recolorées seront utilisées par la suite pour améliorer le contraste et aider à visualiser les gradients de porosité.

Il peut arriver que les images montrent une zone partiellement dissoute nettement visible. Dans ce cas, une « ternarisation » est réalisée via deux binarisations successives permettant de séparer wormhole et milieu poreux d'une part, et la zone partiellement dissoute du milieu poreux et la zone non-dissoute d'autre part.

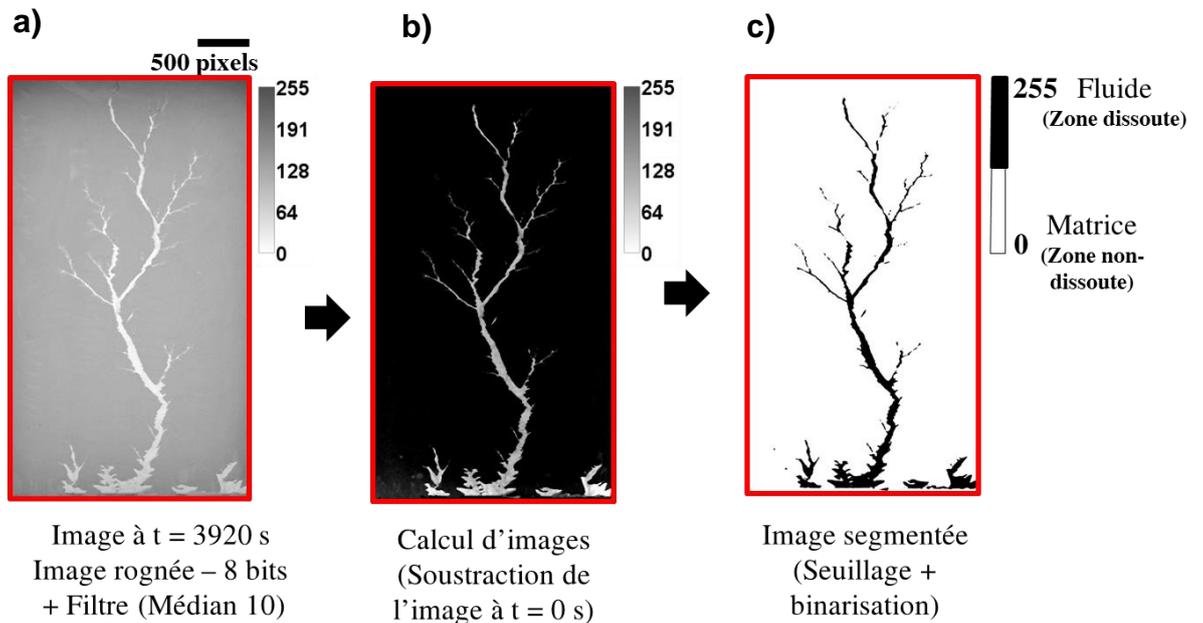


FIGURE 33. Traitement des images (traitement et binarisation) (rangée du haut). a) Image rognée ; b) Calcul d'image (a-b) ; c) Image segmentée et binarisée ;

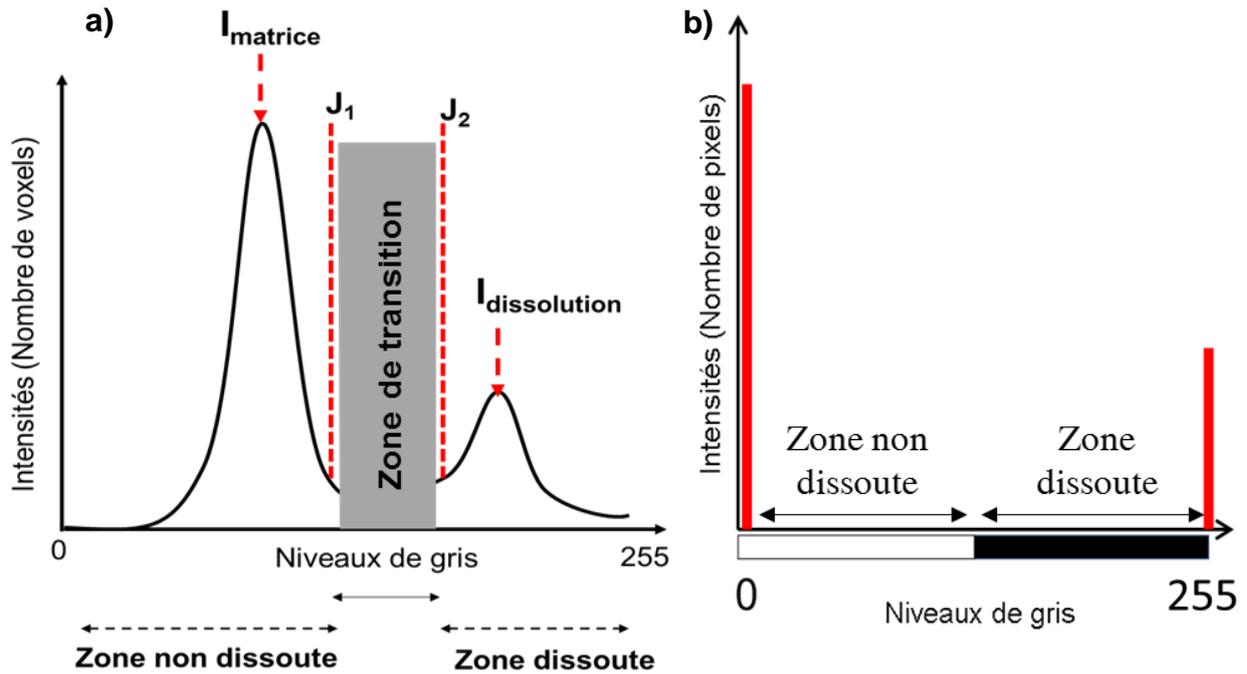


FIGURE 34. Les histogrammes d'images ; a) Histogramme d'intensité d'une image brute de dissolution avec 3 différentes zones : zone non dissoute, une zone de transition et une zone dissoute avec I les pics des différentes zones ; b) Histogramme d'une image de dissolution segmentée et binarisée avec deux zones distinctes (zone dissoute et zone non dissoute).

I.3.5- Analyse et quantification sur ImageJ (Fiji)

Pour analyser les figures de dissolution, plusieurs descripteurs morphologiques sont proposés (surface, interface zone dissoute-zone non dissoute ou périmètre, vitesse frontale de dissolution, tortuosité, angle d'orientation des ramifications et distribution de la taille de pores). Leurs calculs sont effectués à l'aide d'ImageJ et du plug-in MorphoLibJ (Lehmann & Legland, 2012). En effet, MorpholibLibJ est une collection de méthodes de morphologies mathématiques non linéaires. L'ensemble de ces analyses et quantifications sont réalisées sur les images segmentées et binarisées.

I.3.5.1- Surfaces dissoutes

La surface dissoute est calculée directement comme étant la quantité de pixels dans la phase dissoute (Figure 35.a). Autrement dit, c'est le nombre de pixels dans la région dissoute multiplié par la surface (en cm²) de chaque pixel (Figure 35.b).

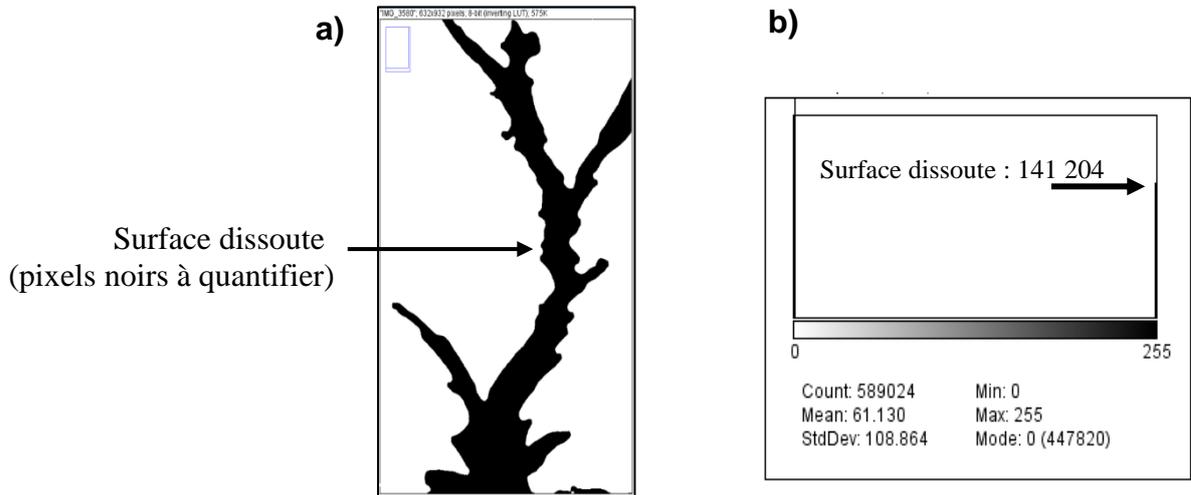


FIGURE 35. Illustration de la quantification de la zone dissoute zoomée ; a) Image 1 avec une zone dissoute ayant les caractéristiques 632 x 932 pixels segmentée avec la zone dissoute en noir. b) Histogramme de l'image 632 x 932 présentant la quantité totale de pixels à 589024 et le nombre de pixels en blanc 447820. La différence donne la surface dissoute de 141204 pixels représentés sur l'histogramme.

À partir de la quantité de pixels, nous pouvons avoir une idée globale du taux surfacique de macroporosité caractérisant la zone dissoute de l'ensemble du milieu poreux. Elle est évaluée à partir de la formule suivante :

$$\epsilon_{macro} = \frac{N_i}{N_{total}}$$

Avec N_i le nombre de pixels représentant la zone dissoute, et N_{total} la quantité totale de pixels contenue dans l'image.

I.3.5.2- Interfaces (Périmètres)

Quant à l'interface entre les phases dissoutes et non dissoutes, ou périmètre, elle est calculée à l'aide de l'algorithme de Cauchy-Crofton (Lehmann and Legland, 2012a). Cette estimation se fait à partir d'intersections d'un ensemble de lignes à différentes orientations (Figure 36) et est calculée à partir de la formule suivante :

$$Len(Y) = \frac{1}{4} \iint n(p, \theta) dp d\theta$$

Avec n le nombre d'intersections entre l'objet et les orientations, p caractéristique du maillage, θ : l'angle formé entre p et les orientations. Dans l'approximation numérique, un maillage est généré pour limiter le nombre d'intersections, ce qui introduit un biais d'estimation. Le périmètre tout comme la surface dissoute est évalué à des pas de temps réguliers tout au long de la phase de dissolution.

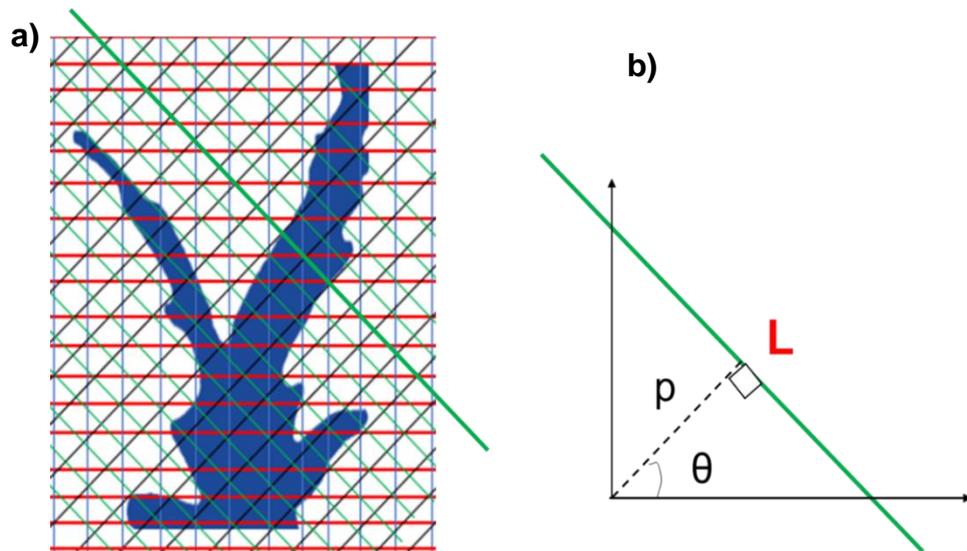


FIGURE 36. Illustration de l'estimation du périmètre par la formulation de Cauchy-Crofton a) 4 familles de parallèles (grilles) couvrant la zone dissoute à évaluer b) Une ligne déterminée par deux paramètres (p, θ).

I.3.5.3- Vitesse moyenne du front de propagation

Le front de la zone dissoute correspond à la position du pixel de la phase dissoute situé le plus loin de la face d'injection. Il est suivi sur un ensemble de 10 à 20 images constitué entre le début de la dissolution et la percée. Le front de dissolution sur ces images est évalué à partir

de l'outil ROI (Region of Interest) du logiciel Fiji qui permet d'identifier sa position à chaque pas de temps et qui donne à partir d'une régression linéaire la vitesse moyenne de propagation du front de dissolution (Figure 37).

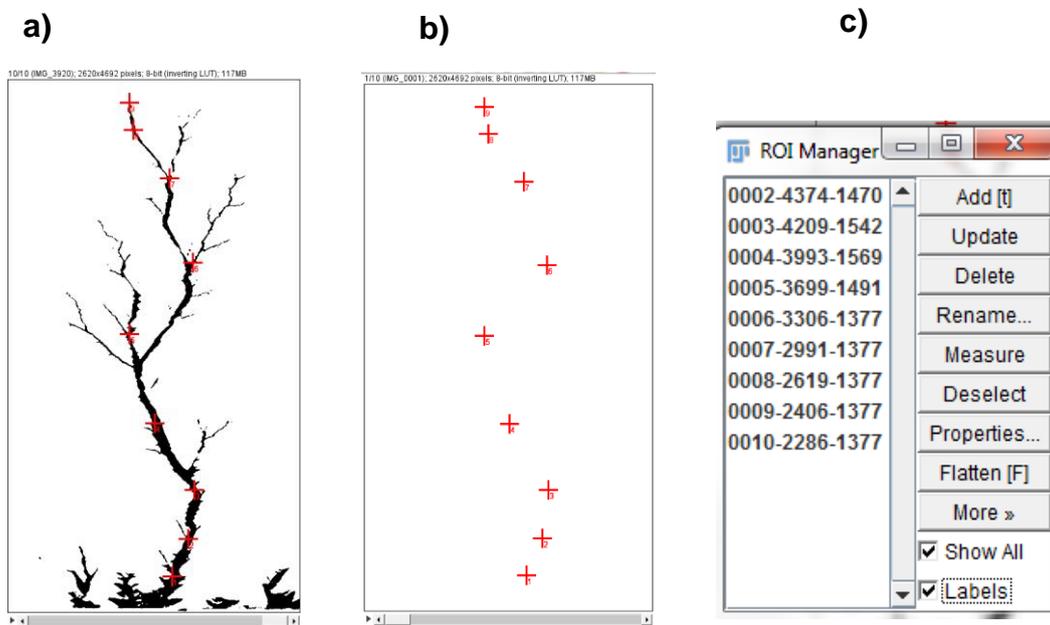


FIGURE 37. Illustration de la détermination de la vitesse de front de dissolution; a) Pile d'images avec identification de fronts de dissolutions à chaque pas de temps donné; b) Vue d'ensemble de tous les points de fronts; c) Coordonnées des fronts de dissolution obtenues à partir du ROI Manager

I.3.5.4- Tortuosité du wormhole principal

Afin d'effectuer les calculs de tortuosité, le wormhole, lorsqu'il existe, est sélectionné sur l'image au moment de la percée. La tortuosité correspond au rapport entre la longueur réelle du chemin « parcourue » par le wormhole (longueur curviligne) et la longueur rectiligne i.e, la longueur de la cellule. En d'autres termes, la tortuosité est estimée à partir du squelette du wormhole dominant généré par l'option 'skeleton' d'ImageJ, en mesurant la plus courte longueur des segments du squelette nécessaires pour joindre les faces d'injection et de sortie de la cellule (Figure 38).

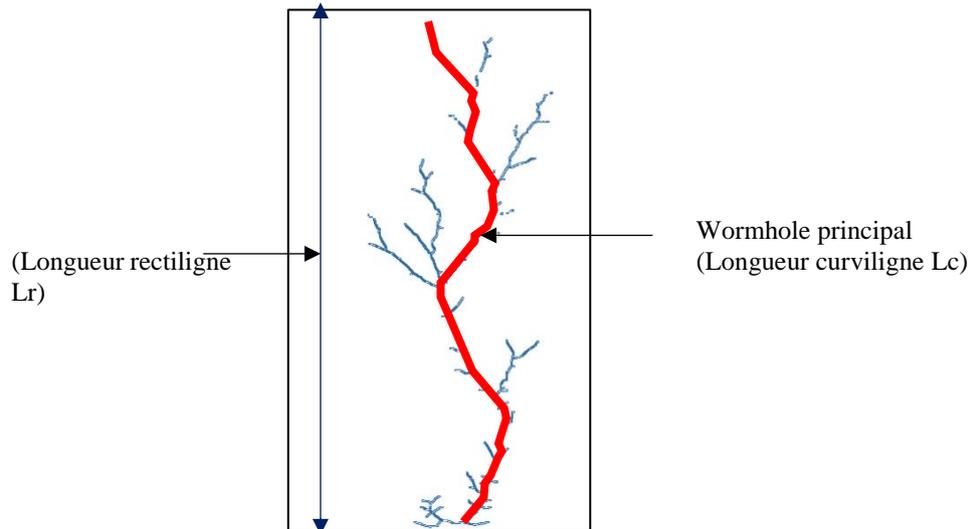


FIGURE 38. Illustration des longueurs curvilignes et rectilignes pour la détermination de la tortuosité à partir du squelette d'un wormhole [$\tau = Lc/Lr$].

I.3.5.5- Distribution de la taille de pores (Local thickness)

Une autre phase de quantification réalisée est la distribution de la taille de pores. Elle a été effectuée grâce à l'option 'local thickness' du logiciel ImageJ. En effet, il s'agit de rechercher le diamètre de la plus grande sphère (Figure 39-a) qui s'adapte au mieux à l'intérieur de l'objet qui le contient (Dougherty and Kunzelmann, 2007). Ici, les sphères de différentes couleurs à diamètres connus s'insèrent dans les zones dissoutes (Figure 39-b). Cette analyse permet d'avoir une idée sur la distribution de la taille de pores ainsi que de la largeur des ramifications de dissolutions. Le calcul est basé sur l'utilisation de l'équation (1) (Dougherty and Kunzelmann, 2007) donnant la taille du sphère $\vartheta(\vec{p})$ au point p où r est le rayon de la sphère et $\Omega \subseteq R^2$ la structure:

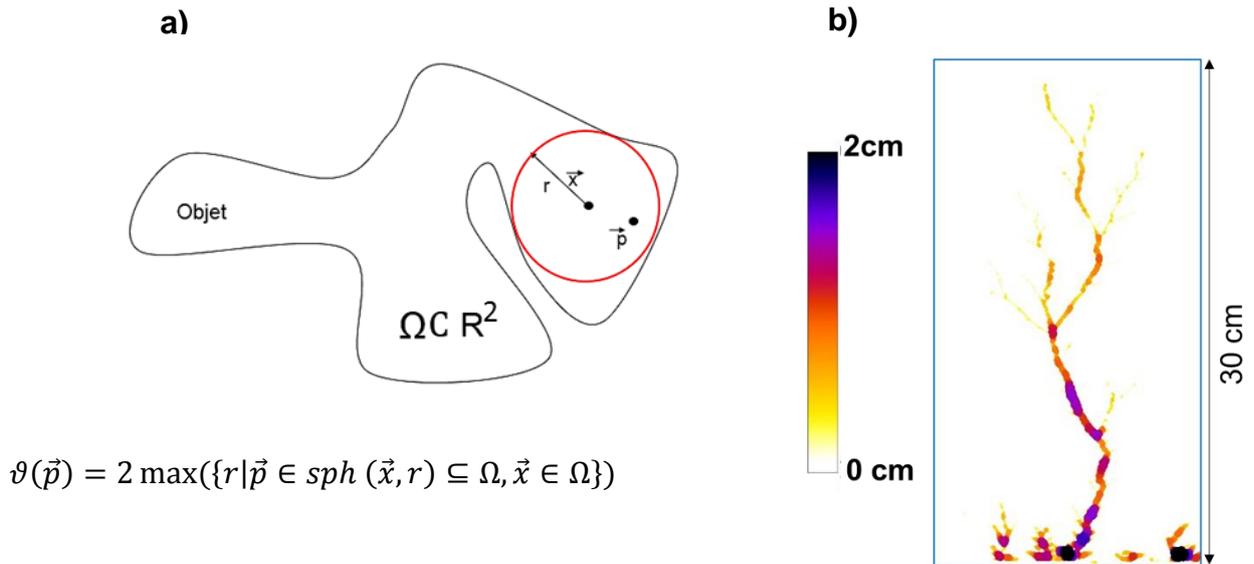


FIGURE 39. Local thickness (distribution de la taille de pores) ; a) Illustration de la formule avec une sphère de rayon r insérée dans un objet ; b) Image d'un exemple de local thickness généré. Il s'agit d'un wormhole dominant avec une répartition de la taille de pores dont la couleur blanche représente la matrice et les plus grands diamètres sont en couleur noire.

I.3.5.6- Estimation des angles des ramifications

Enfin, nous nous sommes intéressés à l'orientation des ramifications. L'orientation des branches des wormholes est caractérisée par l'angle α formé entre le plan de la ramification et le plan horizontal (axe Ox) (Figure 40). Cet angle α se situe entre 0° et 90° . Il convient de noter que l'évaluation est réalisée sur un maximum de branches et l'angle final considéré revient à la moyenne pondérée de l'ensemble des angles.

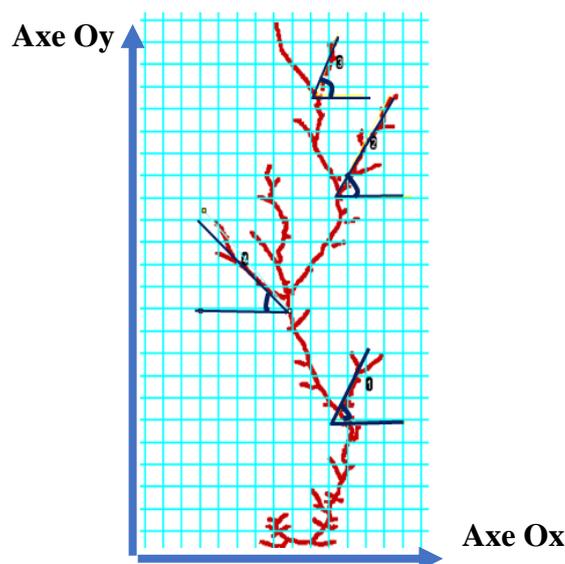


FIGURE 40. Illustration de la détermination des angles des différentes ramifications

II- Mise en œuvre expérimentale tridimensionnelle (3D)

II.1- Matériau utilisé

Le matériau utilisé est le sel (NaCl) consolidé provenant de la société néerlandaise KNZ. Ce sont des blocs de 10 kg, purifiés naturellement et constitués de sel pur (99.9% de NaCl) granulaires compactés sans aucun additif dont le taux d'humidité est inférieur à 0.05% et la densité sèche est de 2000 kg.m^{-3} . Le prélèvement des éprouvettes pour les différentes expériences est fait à partir de ces blocs à l'aide d'un outil de carottage de diamètre $\Phi = 50 \text{ mm}$ (Figure 41.a). Pour un bloc, une dizaine de carottes peuvent être prélevées. Elles ont une longueur moyenne $L = 10.2 \pm 1.1 \text{ cm}$ et un diamètre de $D = 4.8 \text{ cm}$ (Figure 41.b) ainsi qu'une masse moyenne de $370 \pm 14 \text{ g}$. Quant à leur perméabilité intrinsèque, elle est comprise entre 4.7×10^{-15} et $6 \times 10^{-15} \text{ m}^2$, mesurée en utilisant un perméamètre à charge variable qui consiste à mesurer dans le temps la hauteur de la lame de saumure infiltrant la carotte.

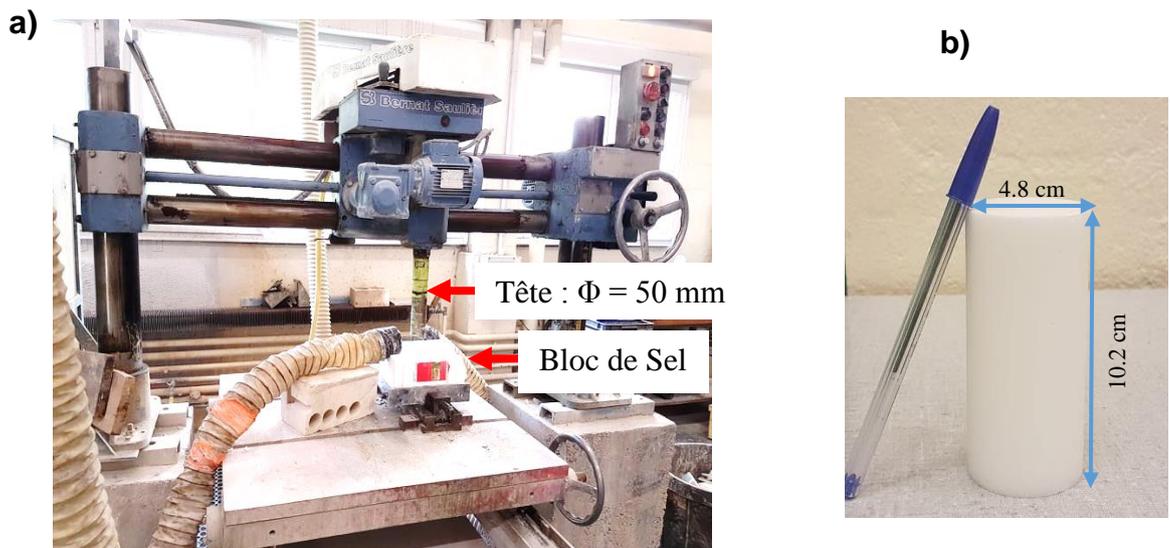


FIGURE 41. Échantillonnage des carottes de NaCl ; a) Dispositifs d'échantillonnage ; b) Éprouvette utilisée ($L=10.5\text{cm} \times l=4.8 \text{ cm}$)

Par ailleurs, à partir du microscope à balayage électronique (MEB), nous avons pu estimer la taille moyenne des grains qui se situe entre $200 \mu\text{m}$ et $300 \mu\text{m}$ (Figure 42).

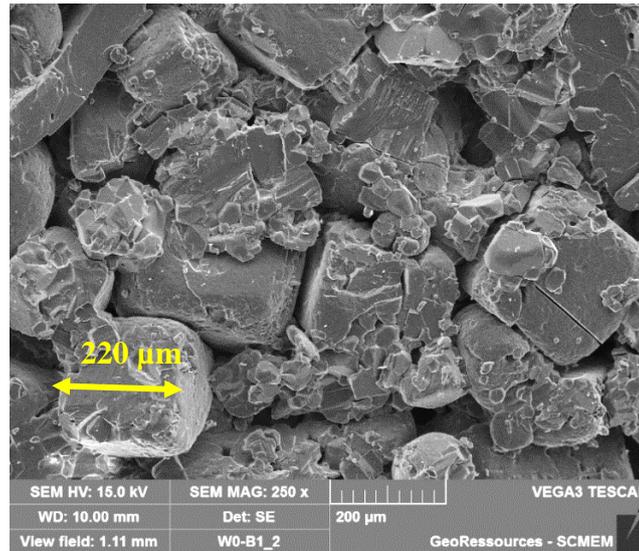


FIGURE 42. Matériau vu au MEB avec un agrandissement de 250x et une résolution de 200 μm – Observation des cristaux de sel ainsi que des pores.

La porosité du milieu a été déterminée à partir de la méthode de porosimétrie au mercure. Elle fournit une répartition des rayons de pores en fonction de la porosité (Figure 43). Ainsi pour notre échantillon, le diamètre moyen des pores est de 10 μm (voir la répartition des pores sur la Figure 44). La porosité libre obtenue est de 2.63% et la porosité piégée est de 6.18%. Ce qui permet d’avoir une porosité totale de notre matériau de 8.8%, valeur confirmée à partir des estimations faites sur les images tomographiques. De plus, la surface spécifique déterminée est de 1799 $\text{m}^2.\text{kg}^{-1}$.

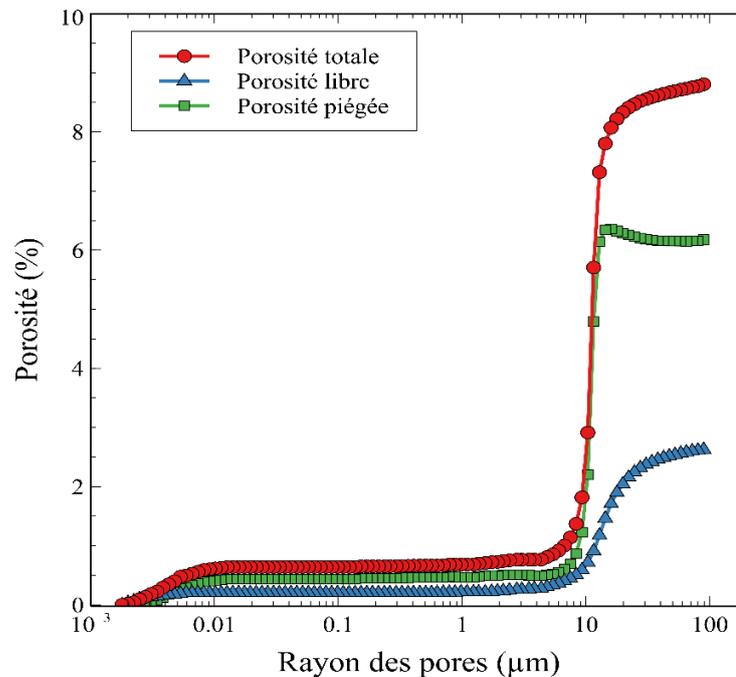


FIGURE 43. Répartition de la porosité en fonction du rayon de pores

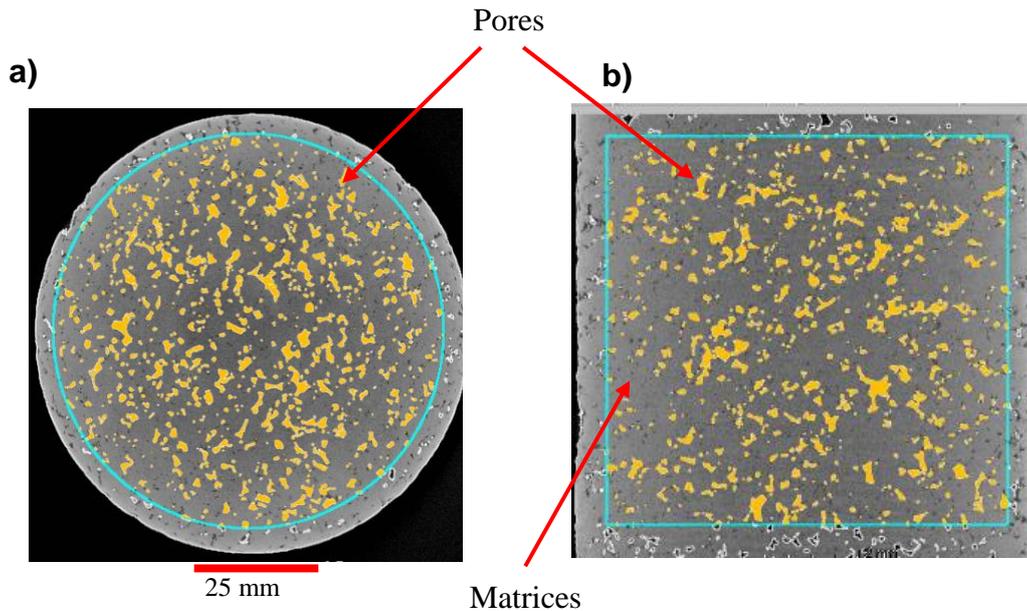


FIGURE 44. Mise en évidence de la répartition des pores au sein de la matrice de sel à partir d'images tomographiques; a) Vue radiale; b) Vue en coupe transversale

II.2- Dispositifs expérimentaux

Le dispositif expérimental utilisé pour la dissolution 3D est constitué d'une cellule triaxiale (Figure 45) placée dans une enceinte étanche avec embases supérieures et inférieures et avec un disque drainant. Le dispositif est muni de deux réservoirs cylindriques supérieurs et inférieurs d'un diamètre de 4.9 cm chacun. Dans sa partie supérieure, une presse (piston) maintient l'échantillon dans la position verticale (transversale). Par ailleurs, afin de limiter les fuites et les écoulements latéraux, la surface latérale de l'éprouvette est recouverte d'une membrane souple et imperméable en latex. Cette membrane est soumise à un champ de contrainte uniforme assuré par de l'air comprimé. La pression maximale de sécurité que peut supporter la cellule est de 1700 kPa. Des pierres poreuses sont placées en entrée et sortie de l'éprouvette, permettant une bonne répartition du fluide injecté. Toutefois, juste au-dessus de la pierre poreuse inférieure, un élastique sphérique à trou assure l'étanchéité de la base de l'éprouvette et canalise le fluide injecté en assurant une injection « ponctuelle » (diamètre du trou est de 2 mm). La cellule est composée de 5 robinets (circuits contrôlés par des vannes) utilisés comme conduits d'alimentation aux réservoirs en solution d'injection, mais également servant à mettre la cellule triaxiale en confinement et à la purger. L'éprouvette est quant à elle disposée et maintenue sur les deux réservoirs et sa transversalité/verticalité est parfois renforcée en la fixant avec de la mousse.

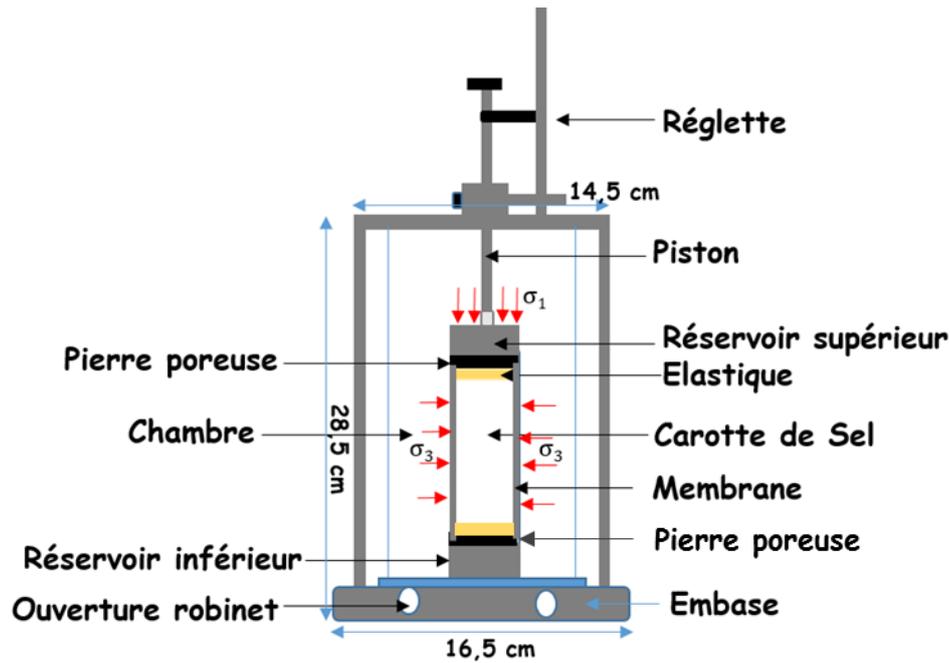


FIGURE 45. Vue schématique de la cellule triaxiale

Cette cellule triaxiale est reliée à un ensemble de composantes permettant d'assurer les conditions opératoires. L'un des réservoirs de sortie est connecté à un manomètre qui permet de suivre la pression dans la chambre de confinement de la cellule, pression maintenue constante tout au long de l'injection. Cette pression est fixée à 2 bars. Comme pour les expériences 2D, les injections ont été réalisées dans deux configurations différentes : verticale (Figure 46.a) et transversale (Figure 46.b). Pour les deux configurations, le fluide suit toujours le même sens d'écoulement, i.e., il est injecté, vis-à-vis de la position verticale de la cellule, à travers sa partie basse et ressort par le réservoir supérieur. Un suivi des données sur la pression en tête d'injection est réalisé à l'aide d'un capteur de type EPRB-2 dont la gamme de mesure s'étend jusqu'à 1000 kPa avec une précision de l'ordre de 10 kPa.

Dans cette étude tridimensionnelle, compte tenu des dimensions de l'éprouvette et notamment de son diamètre ($D = 4.8$ cm), le champ gravitationnel est considéré dans les deux configurations (verticale & transversale).

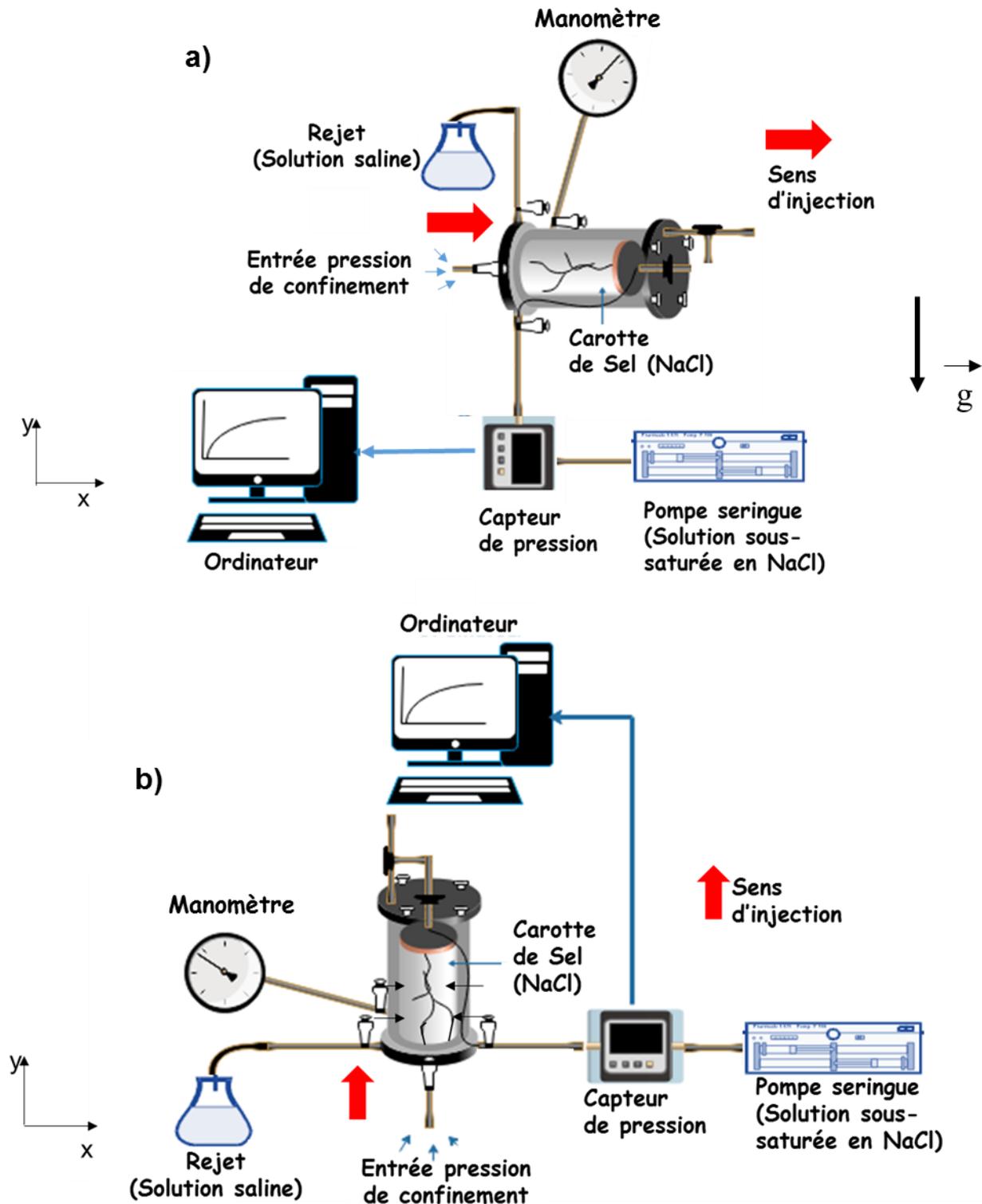


FIGURE 46. Dispositifs expérimentaux des essais tridimensionnels (3D); a) Configuration transversale; b) Configuration verticale

II.3- Déroulement d'un essai tridimensionnel (3D)

Un essai tridimensionnel se déroule en 4 étapes : une phase de saturation des éprouvettes, une phase d'injection et dissolution, une phase d'acquisition couplée à un traitement des données et enfin une phase d'analyse des données issues du traitement.

II.3.1- Saturation des éprouvettes de NaCl

Après l'échantillonnage, les éprouvettes sont pesées et mises à l'étuve pour une durée d'environ 24 heures. La différence de masse avant et après le séchage est estimée à 2g qui est pratiquement négligeable. Ensuite, les éprouvettes sont plongées et gardées pendant environ une semaine dans une cuve contenant de l'eau sursaturée en NaCl (358.5 g.l^{-1}). Durant cette période, une pompe à vide permet de faire le vide à la fois à l'intérieur de la cuve et au sein des carottes en aspirant l'air contenu dans la matrice poreuse (Figure 47). Il convient de noter que pour s'assurer de la saturation de la carotte, des pesées sont effectuées à différents temps. La stabilisation de la masse de la carotte confirme la saturation de la carotte.

Après la phase de saturation et avant la phase d'injection, de nouvelles pesées des échantillons sont réalisées.

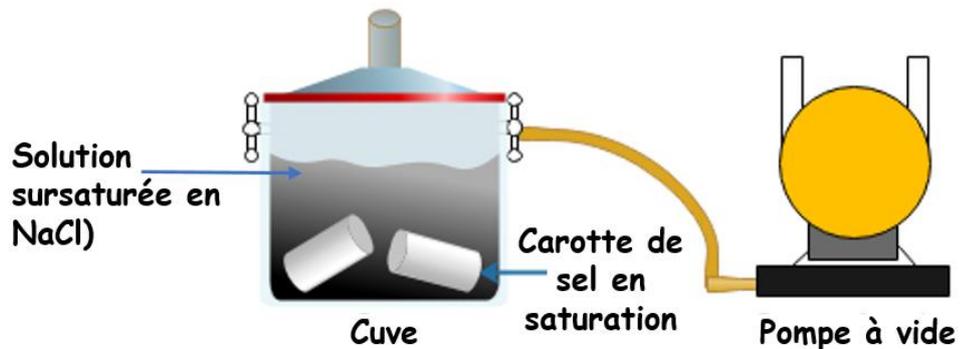


FIGURE 47. Illustration de la mise en saturation des carottes de NaCl

II.3.2- Phase d'injection et de dissolution

Avant l'injection, il faut s'assurer que la pression de confinement (notée σ_3 , Figure 45) assurée par l'air comprimé au sein de la cellule permet de maintenir la membrane autour de l'éprouvette. Quant à la contrainte verticale ou axiale (notée σ_1 , Figure 45), elle est assurée par le piston de la cellule et maintient la partie supérieure de l'éprouvette. Les différents réservoirs

assurent la gamme des débits injectés prévus, i.e., de 1 ml.h⁻¹ jusqu'à 1000 ml.h⁻¹. L'injection est faite en utilisant de l'eau pure ou sous-saturée, plus exactement de l'eau déminéralisée ($C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$ en NaCl) ou une solution saline de concentration $C_{inj} = 160 \text{ g.l}^{-1}$ en NaCl, par la partie basse de la carotte saturée disposée dans la cellule triaxiale. Par ailleurs, une chute brutale de la pression traduit la percée de l'éprouvette par le wormhole.

II.3.3- Acquisition et traitement des données

Après la phase de dissolution, les carottes sont passées à la tomographie. En effet, il s'agit d'une technique non-intrusive fournissant une observation interne à haute résolution des objets. La tomographie par rayons X nommée parfois tomodensimétrie utilise l'atténuation du faisceau incident d'un générateur X pour former sur le détecteur une image radiographique appelée projection. Cette relation énergie incidente (I) et énergie atténuée (I_0) par l'objet répond à la loi de Beer-Lambert, dans le cas d'un faisceau monochromatique parallèle et est décrit comme selon la relation suivante :

$$I_x = I_0 e^{-\mu x}$$

Avec I_0 : Intensité du faisceau incident et I_x : Intensité du faisceau transmis, μ le coefficient de proportionnalité ou coefficient d'absorption, x l'épaisseur de l'échantillon.

Dans le cadre de notre étude, ce procédé est basé sur une succession de radiographie produite au scanneur tomographe à faisceau conique. Lors de la phase d'acquisition, la carotte de sel est placée au sein d'un tomographe de type GE Phoenix Nanotom S CT scanner, équipé d'un tube à rayons X/générateur micro-focus de 180kV et d'un détecteur CMOS 5Mpx carré de 2300 x 2300 pixels (Figure 48.a). Le système micro-foyer du tube générateur de rayons X couplé au détecteur flat panel permet d'obtenir des images radiographiques haute définition à des fréquences d'acquisition allant de 500 ms à plusieurs dizaines de minutes et des résolutions spatiales de 0.8 μm à 32 μm par pixel dans une configuration non dégradé.

Le fichier brut issu de l'acquisition contient les coupes transversales (16 bits) à l'axe de rotation de l'échantillon (voir la structure sur les Figures 48.b et 49). La résolution spatiale donnée par la machine peut être également calculée par le rapport entre nombre de pixels par ligne sur le détecteur et la taille de l'objet.

Afin d'augmenter le contraste entre matrice et réseau de dissolution, le tomographe est placé en mode « Binning 2 », soit une division par deux du nombre de pixels par ligne et par

colonne. Pour le Nanotom Phoenix S le mode « Binning 2 » offre une image de 1150 x 1150 pixels. Ce paramètre permet d'obtenir un rapport contraste/résolution spatiale optimal des projections. Si l'on applique le rapport nombre de pixels sur taille de l'échantillon pour nos carottes de 50 x 100 mm, la plus grande dimension est de 100 mm que nous divisons par 1150 soit 87µm par pixel.

Après étude des premières tomographies du réseau de dissolution avec cette résolution de 87 µm/pixel, il semblait pertinent d'augmenter la résolution pour accéder aux dissolutions de plus petits diamètres. Le processus d'acquisition a été donc modifié en utilisant le diamètre de la carotte au lieu de sa hauteur soit $50\text{mm}/1150 = 43.5\mu\text{m}$. Cette résolution est ramenée à 45µm/pixel pour tenir compte des variations de positionnement de l'échantillon sur le porte objet du tomographe. En outre, pour obtenir la résolution maximale, nous procédons à 3 tomographies par échantillon, en utilisant l'option « multiscan- Scan/shift » à 30 mm sur l'axe perpendiculaire à la source. Dans cette configuration la résolution spatiale passe à 45µm/voxel. Les différents paramètres fixés lors de l'acquisition restent inchangés pour l'ensemble des essais et sont consignés dans le tableau 2:

TABLEAU 2. Paramètres fixes au cours de la phase d'acquisition

Distance source / échantillon (mm)	Distance source / détecteur (mm)	Résolution (µm)	kV	µA	Temps (ms)	Skip	Binning	Projections	Filtre
180	400	45	115	100	500	2	2	1500	Cu 0.1mm

Les images acquises montrent les différentes phases présentes dans l'échantillon et sont issues d'une rotation de l'échantillon qui est de 0.18°/rotation et tourne à 360° suivant son axe vertical.

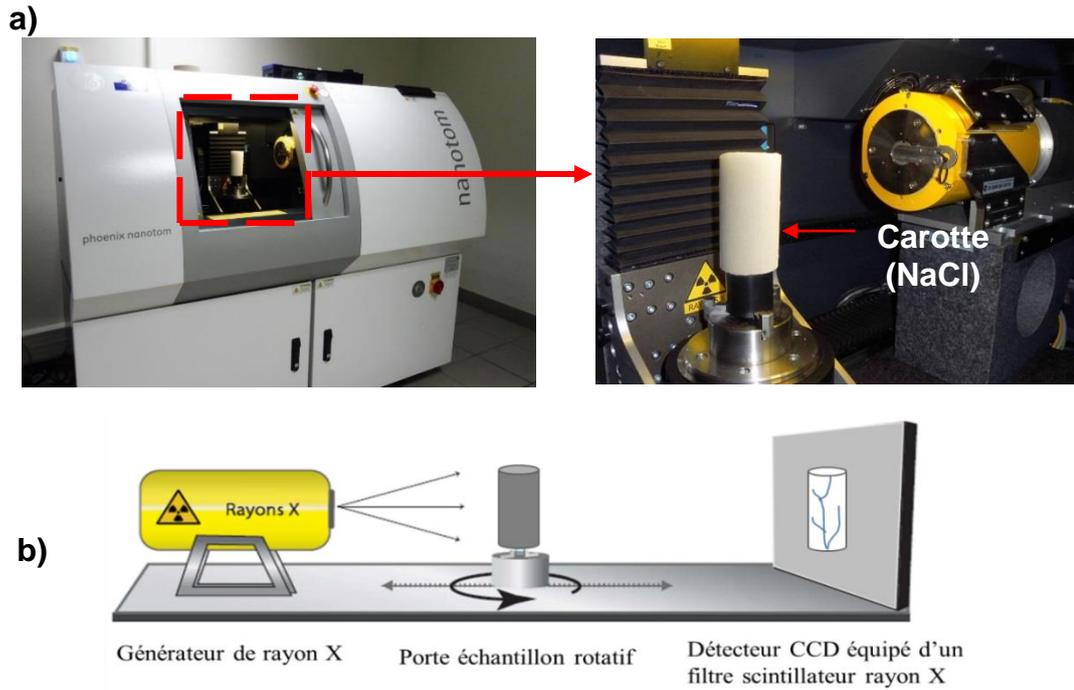


FIGURE 48. Phase d'acquisition tomographique ; a) Tomographe vue de l'intérieur b) Vue schématique des composantes du tomographe ainsi que leurs descriptions, tirées de (Morlot et al., 2016) et modifiée

Tout ce procédé d'acquisition se fait à partir d'algorithmes résolus dans des ordinateurs annexes où le profil atténué et la projection produite sont stockés (voir procédé de la figure 49).

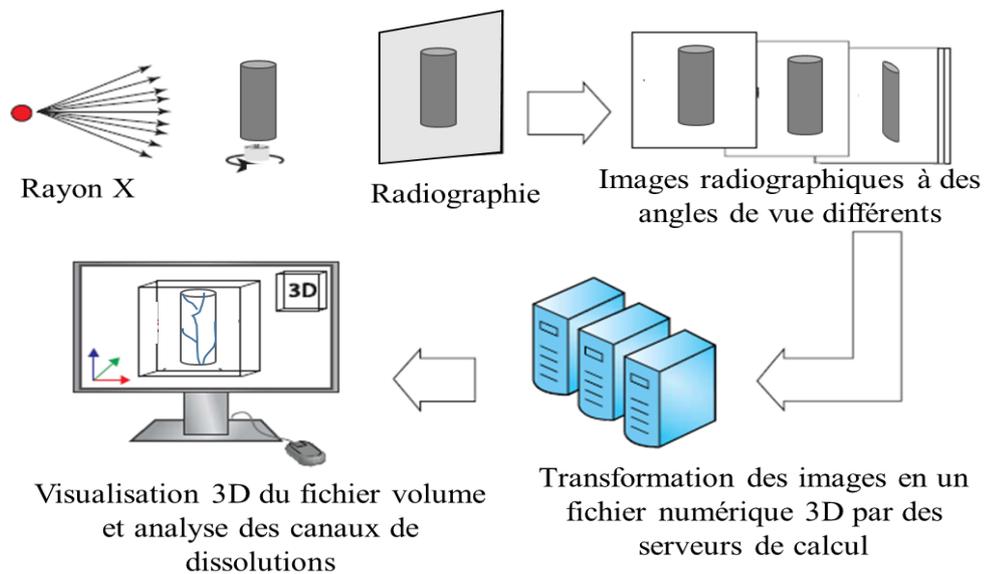


FIGURE 49. Procédé d'acquisition de données tomographiques, tiré de (Morlot et al., 2016) et modifié

Après la phase d'acquisition, nous procédons à la fusion des 3 tomographies sur l'axe perpendiculaire au diamètre et cette opération s'effectue à l'aide du logiciel Avizo 9 dans le module « Merge » option « blending » (voir image de la fusion sur la Figure 50). Il convient de noter que le recouvrement entre la tomographie centrale et les tomographies des extrémités de l'échantillon est de 25 mm. Le volume reconstitué est filtré par « anisotropie diffusion » dans le logiciel Avizo pour débruiter les images et augmenter le contraste vide/matière.

En fin de traitement, les carottes sont transformées en objet numérique tridimensionnel (3D) en niveaux de gris. Les éléments les plus denses possédant un numéro atomique élevé (matrice) sont en couleur « claire » tandis que les éléments les moins denses (porosité) sont couleur « foncé » (Figure 50). Les futures analyses porteront essentiellement sur ces données reconstruites dont la zone d'intérêt principale est la zone de dissolution générée au sein de la matrice solide.

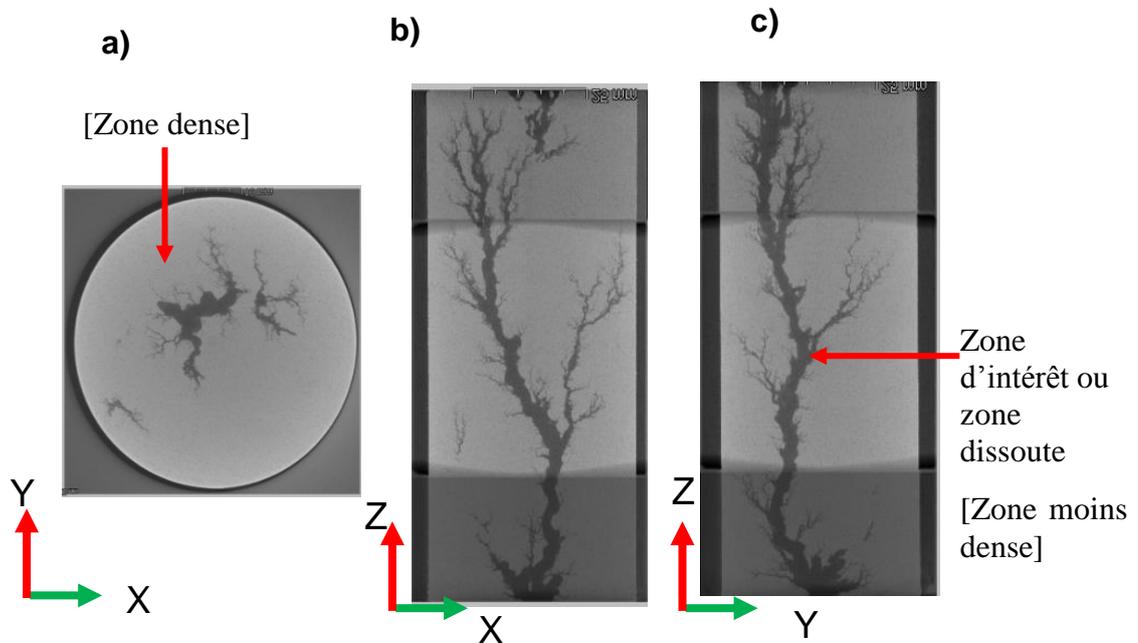


FIGURE 50. Données brutes de tomographie reconstruites à différentes vues. a) Vue radiale suivant l'axe Ox; b) Vue longitudinale première face suivant l'axe Oz; c) Vue longitudinale deuxième face suivant l'axe Oz

II.3.4- Analyse des données 3D

Les analyses de données sont faites à l'aide de deux principaux logiciels d'analyses d'images qui sont VGSTUDIO MAX 2.2 et AVIZO 9.0. Ce sont des logiciels développés pour la visualisation et l'analyse des données de volume 3D obtenues à partir de la tomographie. Ils comportent des modules qui permettent entre autres le traitement d'images (filtres, segmentation, morphologies mathématiques, etc.), la quantification et l'analyse des données (mesures statistiques, distribution). L'ensemble de nos analyses réalisées se déroule de la manière suivante :

II.3.4.1- Analyse et quantification avec VGSTUDIO MAX

Une fois les piles d'images tomographiques reconstruites et filtrées, la segmentation du réseau poreux est effectuée manuellement. Le fichier binaire obtenu est utilisé pour l'analyse du réseau à l'aide du module « defect analysis » de VGSTUDIO Max 2.2. Pour ce faire, une première opération est de sélectionner le ROI (Region Of Interest) cylindrique qui contient l'image de la carotte de sel. Par la suite, sur l'image tomographique, nous définissons une section dont les coordonnées sont définies suivant les 3 axes. En effet, c'est sur cette nouvelle zone définie que s'effectuera la segmentation (Figure 51.a). Le choix d'une section réduite permet une meilleure visualisation à taille zoomée des différentes zones dissoutes.

Ensuite, à l'aide du module « defect analysis », l'histogramme bimodal construit à partir des niveaux de gris de l'échantillon permet de choisir la valeur de seuillage à utiliser pour la segmentation (Figure 51.b). L'histogramme présente des valeurs de niveaux de gris différents dont la valeur de 0 représente la couleur noire et la valeur de 65535 correspondant à la couleur blanche (image en 16 bits). Le seuil pour l'ensemble des données se situe en moyenne à des niveaux de gris compris globalement entre 30 000 et 35 000.

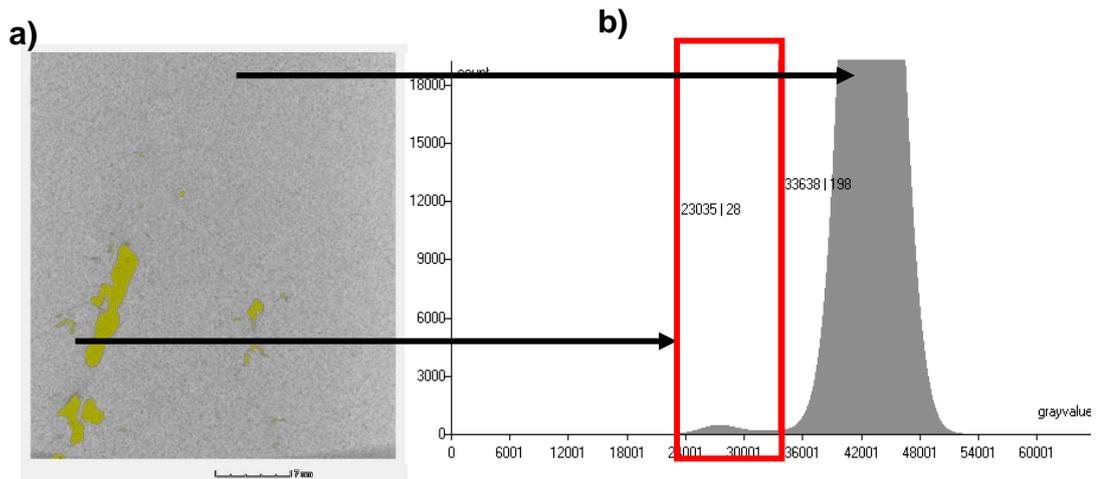


FIGURE 51. Segmentation de la zone d'intérêt ; a) zone d'intérêt extrait de l'image brute; b) Histogramme bimodal de l'image brute comportant une zone dissoute encadrée et la zone saine avec le plus grand pic. La valeur du seuillage pour cet exemple est de 33638 pixels.

Ce seuillage permet d'extraire la partie dissoute de l'échantillon (voir l'exemple de la Figure 52). Après cette phase de segmentation, la quantification morphologique est faite à l'aide de l'outil « analyse de volume » fournissant un ensemble de descripteurs géométriques des pores tels que, le diamètre de la sphère circonscrite à la zone poreuse, le volume total de la zone dissoute, les coordonnées de la zone poreuse projetée sur les différentes axes (X,Y,Z).

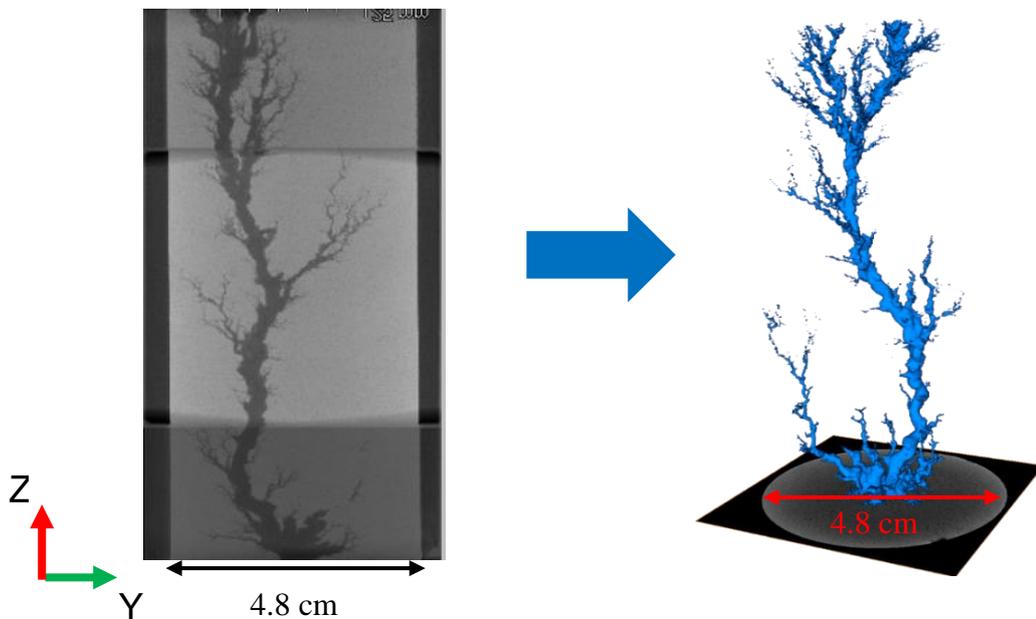


FIGURE 52. Segmentation d'image brute à image segmentée

II.3.4.2- Analyse et quantification sur AVIZO

L'analyse des images est par la suite poursuivie avec le logiciel AVIZO. Les données segmentées sur VGSTUDIO MAX sont réutilisées avec les mêmes dimensions. Les différentes opérations effectuées sont les suivantes (voir récapitulatif Figure 55) :

- **Séparation et opérations morphologiques** : La première opération morphologique a consisté à séparer la branche principale des différentes ramifications. En effet, cette séparation permettra une meilleure approche statistique des branches et une comparaison entre les différents régimes ainsi que leurs caractérisations. Pour ce faire, des opérations de morphologies mathématiques du type « Erosion » (d'un facteur $n=3$) suivie d'une « Dilatation » (d'un facteur $n=4$) ont permis d'isoler la branche principale du wormhole. Ces facteurs ont été définis en fonction de l'observation globale des réseaux. En effet, l'érosion est une opération qui consiste à maintenir la valeur minimale du voxel dans le voisinage défini par un élément structurant qui peut être un cercle, un disque, etc. (Figure 53-c). Quant à la dilatation, elle maintient la valeur maximale et permet de dilater l'image segmentée (Legland, and Arganda-Carreras 2016). (Figure 53.b).

Après cette étape, une opération de calcul d'image a permis de soustraire la branche principale de l'ensemble du volume de départ. Le résultat issu de ce calcul constitue l'ensemble des ramifications. Après avoir identifié la branche principale et les ramifications, s'en suit une opération de squelettisation (Figure 53)

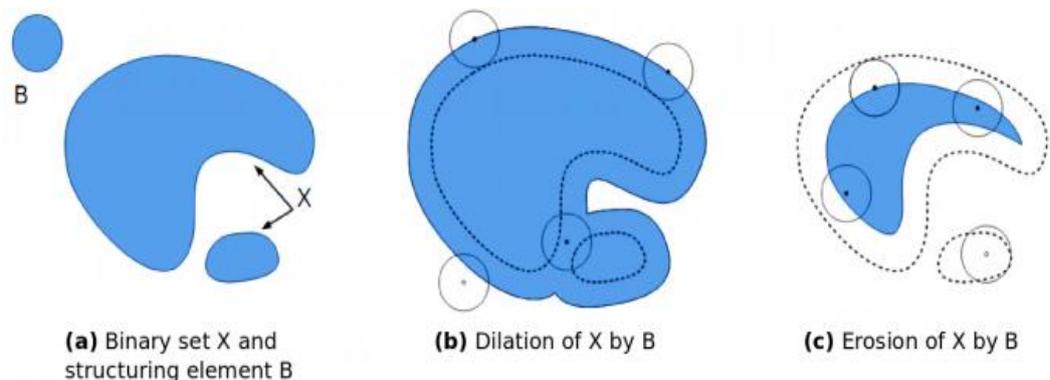


FIGURE 53. Principe de la morphologie de dilatation et d'érosion utilisant un disque B comme élément structurant tiré de <https://imagej.net/MorphoLibJ> d'après David Legland et Ignacio Arganda-Carrera. a) X est l'élément de base et B l'élément structurant ; b) Opération de dilatation ; c) Opération d'érosion

- **Squelettisation** : Pour la phase de squelettisation, nous avons réduit la taille des données en subdivisant la quantité totale de voxels par un facteur 4. Ce choix stratégique permet un traitement rapide des données avec une qualité raisonnable des voxels. L'option auto-squelette d'Avizo génère les squelettes des branches principales et des ramifications des zones dissoutes. La méthodologie s'applique essentiellement sur des images segmentées et produit un ensemble de voxels connectés.

Une visualisation en option « spatial graph » permet d'inspecter grâce aux nœuds le squelette produit. Les nœuds sont des points situés aux extrémités des ramifications et les segments sont les lignes courbes reliant les nœuds (Figure 54.b). L'identification des ramifications est basée sur la fixation des nœuds aux extrémités de chaque segment.

Le squelette généré permet d'une part une analyse géométrique simplifiée des structures (Figure 54.c) et d'autre part de connaître leurs distributions statistiques.

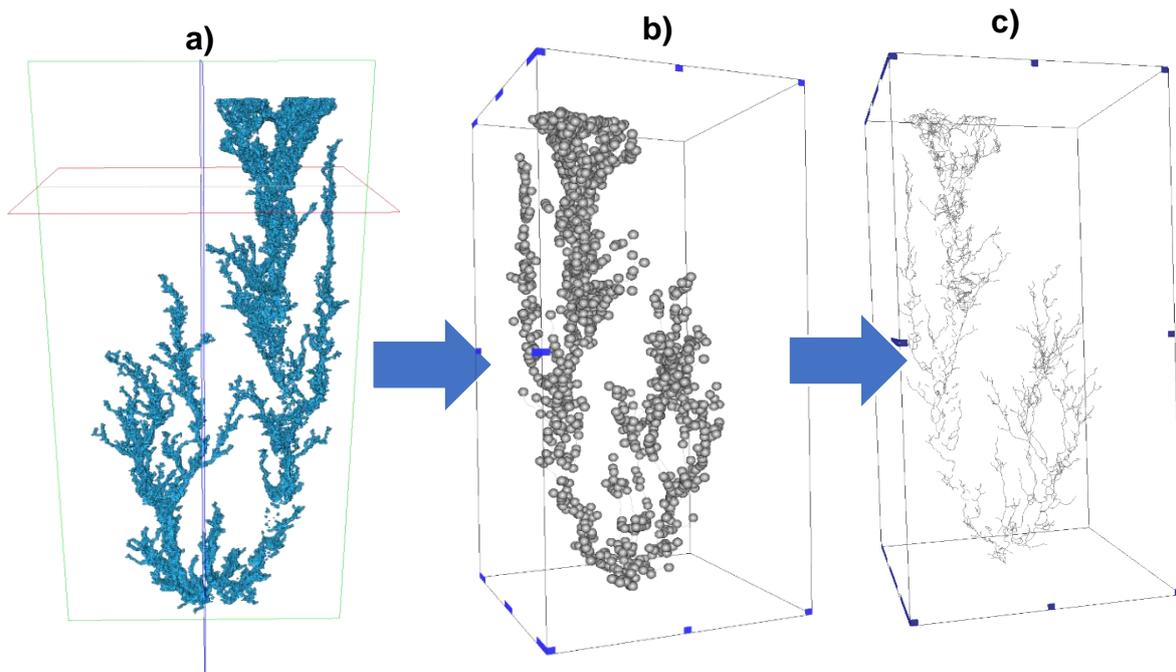


FIGURE 54. Exemple de squelettisation de ramifications. a) Image de base ramification b) Squelette avec 1433 nœuds au total avec 1118 nœuds de branches et 315 nœuds terminaux ; c) Squelettes produits

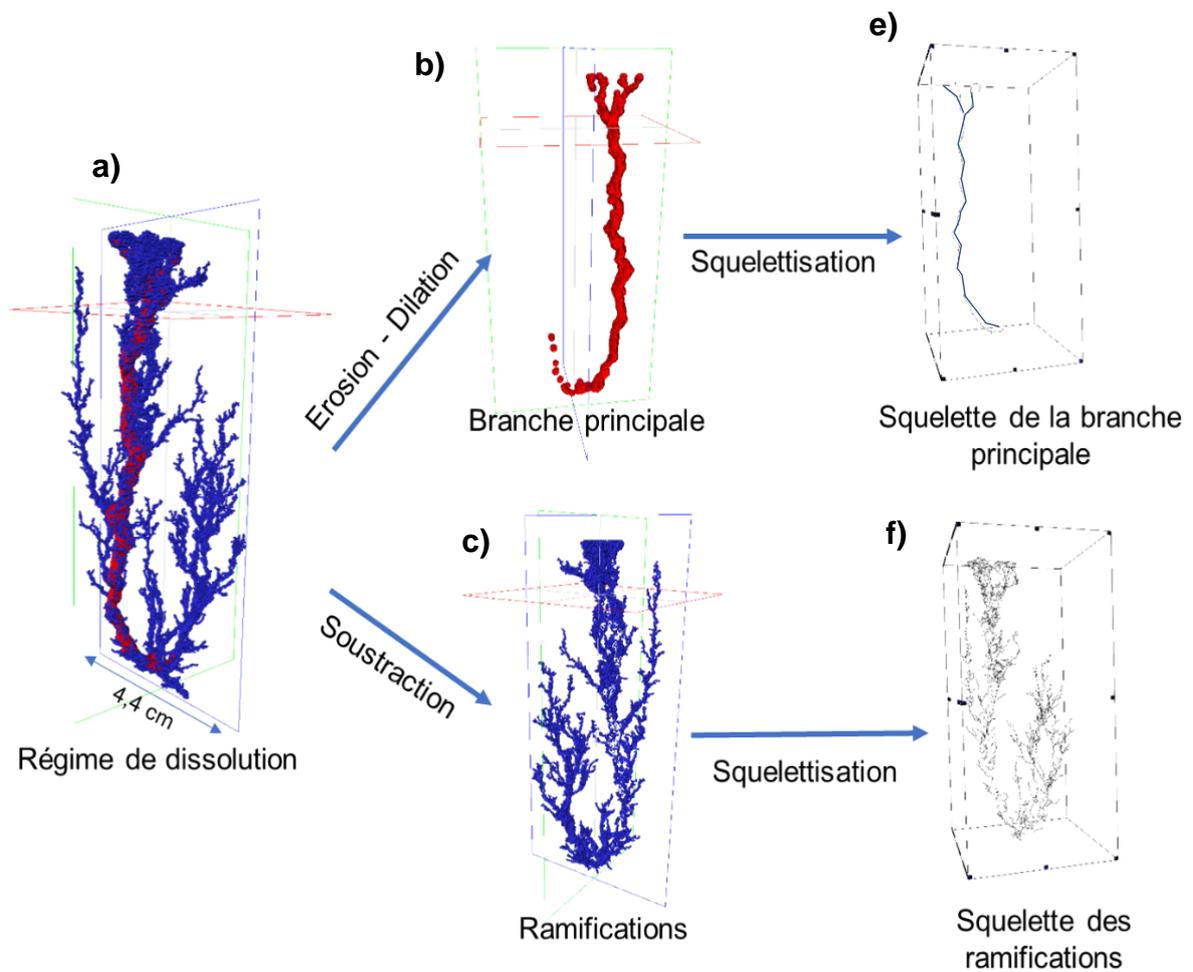


FIGURE 55. Différentes opérations de traitement. a) Régime de dissolution ; b) Opération d'érosion-dilatation permettant d'extraire la branche principale ; c) Résultat de l'opération de soustraction de l'image a et b permettant d'isoler les ramifications ; e) Résultat de l'opération de squelettisation de la branche principale ; f) Résultat de l'opération de squelettisation des ramifications



CHAPITRE III :

**RESULTATS ET DISCUSSIONS DES EFFETS DU
CONTRASTE DE MASSE VOLUME SUR LES
DIFFERENTS REGIMES DE DISSOLUTION
BIDIMENSIONNELS (2D)**

CHAPITRE III : RESULTATS ET DISCUSSIONS DES EFFETS DU
CONTRASTE DE MASSE VOLUMIQUE SUR LES DIFFERENTS
REGIMES DE DISSOLUTION BIDIMENSIONNELS (2D)

**I- Experimental insights into the interplay between buoyancy, convection
and dissolution reaction**

Cette première partie des résultats expérimentaux est un article rédigé en anglais, soumis et accepté au 'Journal of Geophysical Research – Solid Earth' dont le thème est « experimental insights into the interplay between buoyancy, convection and reaction ».

A.W.A. Ahoulou¹, A-J. Tinet¹, C. Oltéan¹, F. Golfier¹

¹ Université de Lorraine, CNRS, GeoRessources, F-54000 Nancy, France

Corresponding author: Assohoun Wilfried Arnaud Ahoulou (assohoun-wilfried.ahoulou@univ-lorraine.fr)

Key Points:

- Use of a laboratory physical model and morphological descriptors to study the influence of density contrast on dissolution regimes
- No additional pattern was observed but displacement of transition between patterns towards higher Péclet / lower Damköhler induced by buoyancy
- Modification of interface morphology, with larger roughness, for high Richardson number

Abstract

Predicting the instabilities that occur during the chemical reaction between a percolating fluid and a soluble rock leading to the development of macroscopic channels called wormholes is a key for understanding many geological processes. Their shape and their spatial distribution depend on two dimensionless numbers, namely Damköhler (Da) and Péclet (Pe) numbers. Although the dissolution phenomenon has been extensively studied both in the context of acid stimulation of oil wells in carbonate rocks and carbon capture and storage, few works have focused on the influence of the physical properties of fluids on wormhole patterns. Consequently, through interpretation of images acquired during the injection of pure water into a 2D reconstituted salt massif and considering different configurations of injection, we illustrate the buoyancy effects on wormhole formation. Contrarily to observation in fractures, experimental results suggest that dissolution regimes can still be described by the classical dimensionless numbers Da and Pe. As for the regime diagram, it remains practically unchanged for strong Péclet and weak Damköhler and undergoes a slow down of the propagation of the dissolution front when the number of Richardson's increases. Analysis of morphological descriptors such as area, interface and tortuosity shows that density contrast has an influence on intermediate to high-Richardson dissolution regimes that may be explained by the existence of buoyancy effects.

1. Introduction

Since the end of the 1990s, marked by experimental works carried out by (Daccord, 1987) or (Hoefner and Fogler, 1988), numerous experimental and numerical studies were performed in order to understand the behavior of a dissolution front in porous matrix (Golfier et al., 2002; Soulaire et al., 2017; Szymczak and Ladd, 2004, 2011b, 2011c). Considered as one fundamental mechanism in geological systems, *e.g.*, formation of the karst aquifers (Campana and Fidelibus, 2015; Johnson, 2008; Raines and Dewers, 1997) the chemical dissolution operates also in many geoenvironmental applications such as petroleum engineering (Izgec et al., 2010; Schechter and Gidley, 1969), CO₂ sequestration (Emami-Meybodi et al., 2015), solution mining cavities (Guo et al., 2016; Johnson, 2005; Luo et al., 2012) or hydrogeological systems (Mayer et al., 2002). Indeed, when a fluid phase flows into a porous rock containing soluble minerals (*e.g.*, carbonate or halite grains) not in equilibrium with the solution, it generally dissolves some of the porous matrix creating different types of dissolution patterns. (Snippe et al., 2020b) suppose that, at large length scale, for a given volume of dissolved calcite obtained by injecting a specified water flow rate and under CO₂-saturated

conditions, there are three potential idealized patterns around the injection well: compact, wormholing and uniform. A fourth possible pattern is derived from the work of (Menke et al., 2018b) the channeling, defined as “the erosion of pre-existing preferential flow paths”. These patterns are similar to those experimentally obtained at the core scale using limestone core samples and HCl injection (Fredd and Fogler, 1998b; Hoefner and Fogler, 1988). Moreover, according to (Bazin, 2000; Fredd and Fogler, 1998a; Fredd and Miller, 2000), these dissolution patterns are the result of a strong interplay between reaction, diffusion and advection. Using a numerical model developed at Darcy-scale, (Golfier et al., 2002) group these mechanisms and these patterns using two dimensionless numbers that are Péclet and Damköhler numbers. The first one is defined as the ratio between the advection and diffusion while the second one generally compares the strength of fluid/solid interface reaction rate to that of molecular diffusion. If Péclet number is very low, involving low advection, the reactive fluid is quickly consumed in the vicinity of the injection surface leading to a compact dissolution pattern. On the other hand, if Péclet number is high enough, the acid solution practically passes through the whole porous medium without being completely consumed leading to the development of a uniform dissolution pattern. Between these two extreme cases, the variation of Péclet/Damköhler numbers leads to the appearance and the development of high conductive channels known as wormholes. Taking into account their spatial morphology, they can be classified in conical, dominant and ramified wormholes. Nevertheless, the development of wormholes causes the alteration of the solid matrix and leads to an increase in local permeability and therefore, to an increase in mass transfer. For this reason, in last years, several experimental techniques including injection molding (Fredd and Fogler, 1998b), direct monitoring in 2D flow cells (Golfier et al., 2002; Oltéan et al., 2013), neutron radiography and X-ray tomography (Gray et al., 2018; Menke et al., 2015) have been developed in order to better characterize the alteration of the rock pore structure. A review of these techniques can be found in the work of (Luquot et al., 2016). The main goal of these studies was to establish some correlations between the permeability and porosity, essential parameters in continuum-scale models (Kang et al., 2007). In the same way, the dissolution process is also impacted by mineralogical heterogeneity of rocks (Liang et al., 2015; Liu et al., 2017b). It seems that in this case, proposing relationships for hydrological properties is a real challenge (Min et al., 2016b).

Reactions between the “injected acidic solutions”, the solid matrix and/or the fluid saturating the porous matrix can also change the physical properties (density, dynamic viscosity and diffusivity) of the fluids involved. The dissolution of CO₂ in brine is one of the most

common examples and it has received particular scientific attention in the last years (see the recent review of (Emami-Meybodi et al., 2015)). In fact, the trapped CO₂ in the upper part of the saline aquifer dissolves in the underlying brine creating a layer denser than the original brine. Under the action of both gravity and density contrast this layer may become gravitationally unstable leading to the apparition and the development of convective cells, labelled the convective regime. Moreover, according to (Slim et al., 2013), the temporal evolution of the CO₂ dissolution into an idealized system may be described via six regimes (diffusive, linear-growth, flux-growth, merging, re-initiation and convective shutdown). The convective mixing can also create an acidic solution that reacts with the solid matrix altering the porosity and the permeability fields of the rock. For a fast chemical dissolution reaction, (Hidalgo et al., 2013) show that the dissolution pattern does not exactly follow the propagation of concentration fingers. This phenomenon is particularly localized in the regions characterized by a maximal fluid mixing that corresponds to the flow stagnation points. A similar result, *i.e.* initiation of dissolution in regions of locally high mixing, was obtained by (Fu et al., 2015) who studied the dissolution patterns over time resulting from the dissolution of a carbonate rock. Numerical results indicate that these high mixing zones where dissolution occurs also appear far from the concentration front because of the onset of convective cells near the upper boundary.

Taking into account all these comments and discussions, one question remains: what is the impact of the change in the physical properties of the fluids involved on dissolution regimes and more specifically on the regimes mentioned at the beginning of this paragraph? In other words, what is impact of the buoyancy effects on the dissolution patterns when the carbonate rock is represented by a halite deposit? To our knowledge, works dealing with the effects of density driven on dissolution for a single phase flow are limited. Some studies explored this phenomenon, though considering vertical and/or horizontal fractures (Chaudhuri et al., 2009; Dijk et al., 2002; Luo et al., 2012; Oltéan et al., 2013). They show that, under buoyancy effect, the dissolution patterns depend, in addition to Pe and Da numbers, on the spatial orientation of the fracture relative to the gravity direction, expressed through the Rayleigh, Bond or Richardson numbers. For instance, using a diffusion interface model (DIM) applied to a channel constituted by two parallel salt blocks, (Luo et al., 2012) show that the solid-liquid dissolution process strongly depends of Péclet and Rayleigh number. Similarly, using an experimental and numerical study, (Oltéan et al., 2013) have constructed a 3-D behavior diagram by highlighting the existence of four dissolution patterns: kinetics, convection, mixed-convection and

buoyancy-dominated dissolution. Other studies such as (Snippe et al., 2017), used the buoyancy effects as the main hypothesis to explain some experimental observations from the work of (Ott and Oedai, 2015b). Indeed, in the two-phase CO₂-brine injection experiments carried out by the authors mentioned above, dissolution occurs preferentially in the lower part of the horizontally arranged rock sample. According to (Snippe et al., 2017) who used numerical simulations, this configuration can only be assigned to gravity effects.

In this paper, we propose to assess the influence of buoyancy on dissolution patterns via an experimental laboratory study. This study is carried out using a Hele-Shaw cell type in which the space between the plates is filled with a salt granular medium. The dissolution patterns are analyzed by interpreting the images based on the spatial and temporal evolutions of the dissolved zone obtained by the injection of the pure water. Discussions and conclusions focus on the impact of density contrast on dissolution regimes and the wormhole morphology.

2. Materials and Methods

2.1 Material

The material used in our experiments is constituted by a mixture of 90% salt grains (NaCl) and 10% of gypsum plaster (CaSO₄, ½ H₂O) to enforce its cohesion. Both materials are crushed and screened to a particle size of 80µm to 125µm ±1% before mixing. Direct shear test is carried out to determine the shear strength parameters of this two-component material, i.e., the cohesive strength c [Pa] and the internal angle of friction ϕ [°]. Under fully drained conditions, values of $c = 42$ kPa and $\phi = 32^\circ$ were measured. Within the range of injection flow rates of interest, a straightforward estimate of the maximal shear stress value reached in the wormhole suggests that mechanical effects can be discarded. Even if evidences of erosion by rolling and sliding of grains at the wormhole walls have been observed at the highest injection velocities, these ones are assumed to be negligible relative to dissolution mechanisms.

Salt and gypsum have similar reaction rate constants (2.4×10^{-6} m/s for salt and 4.5 to 9×10^{-6} m/s for gypsum) (Colombani, 2008; Dutka et al., 2020b; Weisbrod et al., 2012) even if addition of surfactant in commercial plaster may significantly reduce the reaction rate value. However, the solubility of salt and plaster is significantly different (358.5 g/l for salt and 2.5 g/l for gypsum) and may lead to a differentiated dissolution for both materials at low velocity.

2.2 Experimental set-up and protocol

The experimental device is presented in (Figure 1). It consists in a set of parallel transparent glass plates of size (10 cm x 22 cm) and thickness 1 cm, encased in an aluminum frame. This system ensures the rigidity of the cell as well as allows both horizontal and vertical placement of the device. The two glass plates are separated by a distance of $e = 0.05$ cm with separators of width 2 cm and laterally sealed with silicone. Therefore the useful volume of the cell is of 27 cm^3 . Top and bottom tanks are added to allow in and outflow in the apparatus. The tanks are filled with glass beads and a geotextile is added to ensure homogeneous fluid injection across the width of the cell.

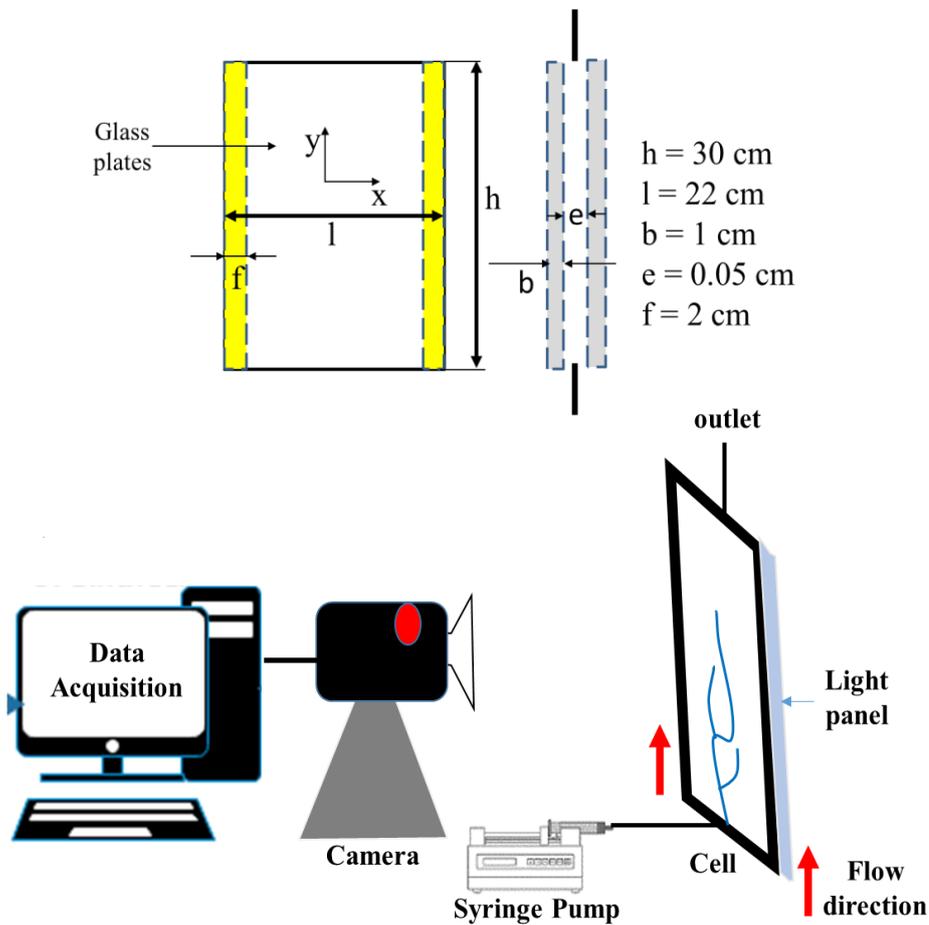


Figure 1- a) Hele-Shaw type cell; b) Experimental set-up illustrated in vertical configuration

The test protocol consists in:

- Filling of the cell with dry material up to a porosity of around 43%, leading to a permeability of around $5 \times 10^{-12} - 1.5 \times 10^{-11} \text{ m}^2$, as estimated using both Hazen empirical

formula and Kozeny-Carman equation. The wormhole permeability is limited by the spacing between plates and it is about $2.1 \times 10^{-8} \text{ m}^2$ as obtained from the cubic law ($e^2/12$). We note that, in order to assure a certain reproducibility of the cell filling, the salt grains were packed uniformly from the upper part of the cell and the porous medium thus obtained was compacted using a vibrating table.

- Saturation with water over-saturated with salt (at solubility 358.5 g/l) is performed vertically, from bottom to top, through application of a gradually increasing water head.
- Injection of under-saturated water with a given salt concentration and at a given constant flow rate using a syringe pump. In vertical configuration, injection is performed from bottom to top to ensure density-driven contrast.

The dissolution front was monitored using a digital camera allowing an image size of 4614 x 3744 pixels and with backlighting so as to improve the image quality (Figure 1). The rate of data acquisition (*i.e.* number of images / minutes) is adapted to the flow rate imposed. It varies between 40 and 1200 images for each test. A calibration of the images is carried out for each test leading to an average resolution value of 1 pixel / 68 μm .

2.3 Image treatment

Image acquired during dissolution tests are processed in order to allow for morphological qualitative and quantitative comparison. This processing was performed using the software ImageJ and aims at transforming the raw data into segmented images with two phases (dissolved and non-dissolved), eventually three (dissolved, partially dissolved and non-dissolved). To this end, the raw data for a given test is cropped in order to remove non-relevant sections such as reservoirs or lateral edges of the cell. The images are then filtered using a median filter with 10 pixels radius so as to limit noise appearing during acquisition. After transformation of the colored images to gray-scale, the image prior to injection is subtracted. Such an operation allows removing artifacts that are generated either by the filling process, such as layering, or by image acquisition, such a vertical gradient of the gray levels, as seen in Fig. Finally, images are segmented using a threshold based method. When only two phases (dissolved and non-dissolved) are considered, the threshold value is the same for all tests. For the sake of clarity and illustrations, recolored images will be used hereafter for contrast enhancement and to help visualize porosity gradients.

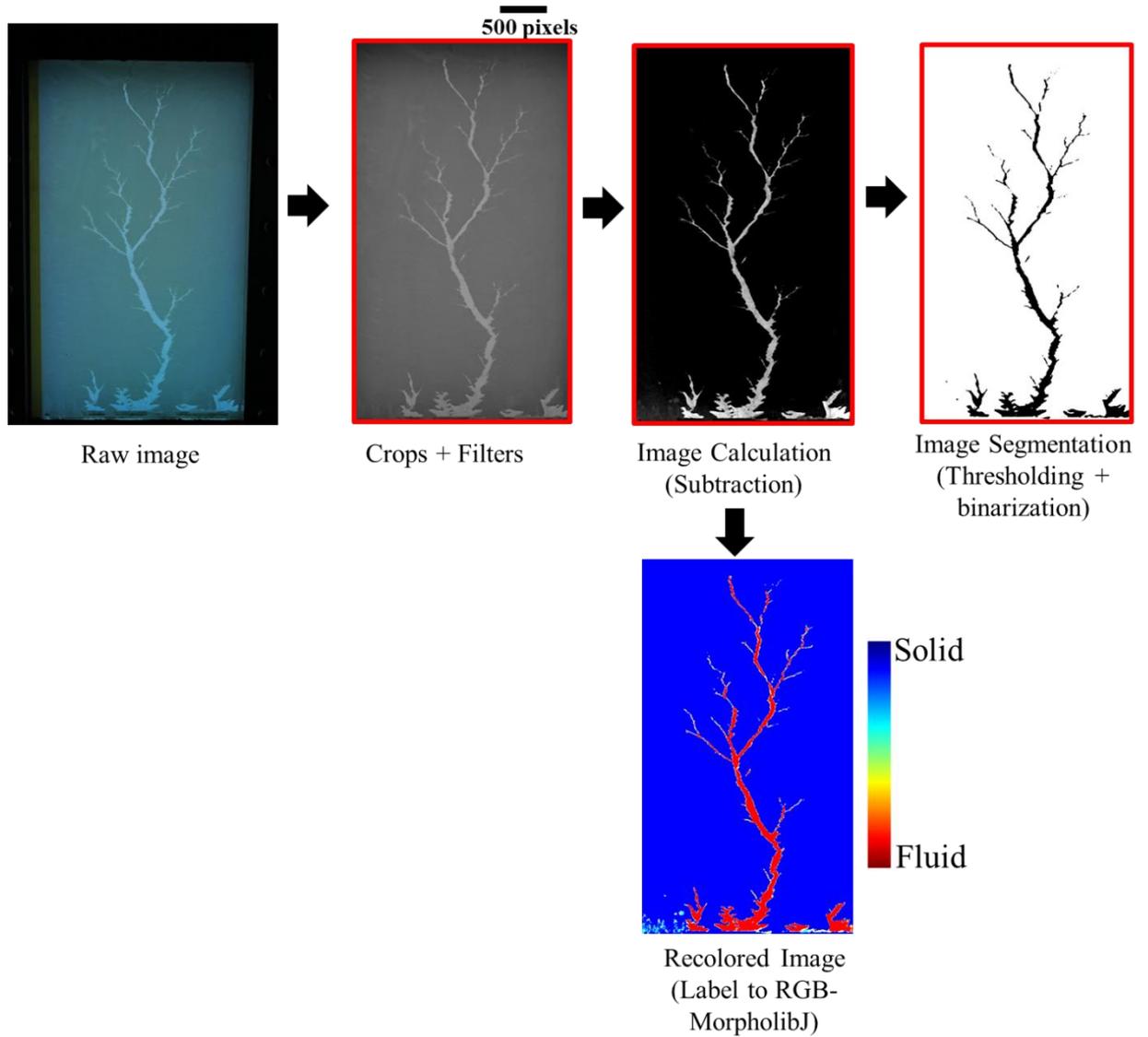


Figure 2- Image Treatment (Processing and Binarization) (top row). On the second row, illustration of recoloring of grayscale image used to visually enhance contrasting.

2.4 Dimensionless quantities

As described in the introduction, dimensionless numbers are often used to compare the influence of different phenomena. In the following, the local Péclet, Dämmkohler and Richardson numbers, defined in (Eq. 1) will be used.

$$Pe = \frac{UL}{D} ; Da = \frac{\alpha L}{U} ; Ri = \frac{L \Delta \rho g}{\rho_0 U^2} = \left(\frac{U_b}{U} \right)^2 \quad (\text{Eq. 1})$$

with L (m) the characteristic length represented by the square root of the initial permeability, U ($\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$) the pore velocity, D ($\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$) the molecular diffusion, α the effective

dissolution rate or mass transfer coefficient (s^{-1}), g ($m.s^{-2}$) the gravitational acceleration, $\Delta\rho = \rho - \rho_0$ ($kg.m^{-3}$) the maximum density variation and ρ_0 ($kg.m^{-3}$) the reference fluid density (pure water in the present case). As shown in (Eq.1), the Richardson number compares the buoyancy velocity U_b to the pore velocity. The latter is computed by dividing the injection rate by the pore cross-sectional area (in the present case 18 cm^2 multiplied by the porosity). It should be noted that the dimensionless quantities were computed considering the medium initial conditions and therefore do not take into consideration the properties evolution as the dissolution advances.

2.5 Morphological descriptors

To analyze the dissolution patterns several morphological descriptors are used (dissolved area and perimeter, front velocity as well as tortuosity). Their calculation is performed using ImageJ and ImageJ plug-in MorphoLibJ (Lehmann and Legland, 2012b). Thus, the dissolved area is computed straightforwardly as the amount of pixels in the dissolved phase. The interface between dissolved and non-dissolved phases, or perimeter, is computed using the Cauchy-Crofton algorithm (Lehmann and Legland, 2012b). The front of the dissolved area corresponds to the position of the dissolved phase pixel located the furthest from the injection face. It is tracked on a set of 10 to 20 images between the beginning of dissolution and the breakthrough. In order to perform tortuosity and ramification angles calculations, the dominant wormhole, when existing, is selected on the image at breakthrough. The tortuosity corresponds to the ratio of shortest length between the injection and the outlet faces through the dissolved phase to the length of the image. The former is computed by generating the skeleton of the dominant wormhole and by measuring the shortest length of the skeleton segments required to join the injection and outlet faces.

3. Results and Discussions

Dissolution is studied in both horizontal and vertical configurations under several different injected flow rates ranging from 0.1 ml/h to 500 ml/h (0.1 ml/h, 1 ml/h, 2 ml/h, 5ml/h, 10 ml/h, 13ml/h, 40ml/h, 100ml/h and 500ml/h). We have considered an injected solution of pure water so as to maximize the effect of density contrast. In order to assess the replicability of the results, each experiment is repeated several times. However, considering that the dissolution is triggered by local heterogeneity of the porous medium and that the phenomena studied are instable, there is a natural variability of the results due to the porous medium construction. As a consequence, two set of experiments cannot be directly superimposed.

Reproducibility will therefore be particularly taken into account with regard to the dissolution patterns and the significance of a parameter comparison between different test configurations will be made with consideration of the variability between the minimum and maximum values of said parameter for a given test condition.

A summary of the experiments are provided in Table 1. As specified in section 2.4, the Péclet, Damköhler and Richardson numbers are calculated locally, considering the pore velocity based on the injected flow rate Q_{inj} , cross-section (0.9 cm^2) and porosity ε , the characteristic length is the square root of the permeability K , the molecular diffusion of 10^{-9} m.s^{-2} , the relative variation of density ($\Delta\rho/\rho_0 = 0.2$) corresponding to the variation between pure water and over-saturated brine and the gravity acceleration of $9.8 \text{ m}^2.\text{s}^{-1}$. Measurement of the effective dissolution rate remains quite complex due to the competition between reaction kinetics and mass transfer limitations (Dutka et al., 2020b), especially considering the mixed nature of our medium. Since the Péclet numbers are relatively low, the dissolution rate is considered constant and taken equal to 10 s^{-1} using correlations provided in Appendix B of (Golfier et al., 2002). The permeability is computed using Kozeny-Carman equation ($K [\text{m}^2] = \frac{\varepsilon^3 D_{50}^2}{180(1-\varepsilon)^2}$ (Bear, 1972)) with D_{50} chosen as $100 \mu\text{m}$.

Table 1. Experimental case studies properties

Horizontal configuration						
Name	Q_{inj} [ml.h⁻¹]	ε [-]	K [x10⁻¹¹ m²]	Pe	Da	Ri
BH0.1	0.1	0.40	0.99	0.0024	41	-
BH1	1	0.44 ± 0.02	1.60 ± 0.29	0.03 ± 0.0012	5.74± 0.71	
BH2	2	0.42 ± 0.0	1.2 ± 0.0	0.0514 ± 0.0	2.38 ± 0.0	-
BH5	5	0.44 ± 0.04	1.53 ± 0.62	0.135 ± 0.015	1.11 ± 0.3	-
BH10	10	0.435 ± 0.015	1.35 ± 0.25	0.27 ± 0.01	0.54 ± 0.06	-
BH13	13	0.40 ± 0.0	0.99 ± 0.0	0.32 ± 0.0	0.31 ± 0.0	-
BH40	40	0.375 ± 0.015	0.76 ± 0.13	0.90 ± 0.04	0.0835 ± 0.0105	-

BH100	100	0.43 ± 0.01	1.35 ± 0.15	2.65 ± 0.05	0.0515 ± 0.0035	-
BH500	500	0.46	1.9	14	0.013	
Vertical configuration						
Name	Qinj [ml.h ⁻¹]	ε [-]	K [x10 ⁻¹¹ m ²]	Pe	Da	Ri
BV0.1	0.1	0.42 ± 0.03	1.345 ± 0.355	0.0026 ± 0.0002	49 ± 11	1.3 ± 0.4 x 10 ⁷
BV1	1	0.43 ± 0.03	1.45 ± 0.45	0.0275 ± 0.0035	5.26 ± 1.16	1.45 ± 0.45 x 10 ⁵
BV2	2	0.41 ± 0	1.1 ± 0	0.0499 ± 0	2.2029 ± 0	2.87 ± 0 x 10 ⁴
BV5	5	0.44 ± 0.03	1.6 ± 0.5	0.135 ± 0.015	1.63 ± 0.25	6.55 ± 1.75 x 10 ³
BV10	10	0.435 ± 0.015	1.45 ± 0.25	0.27 ± 0.01	0.54 ± 0.06	1.5 ± 0.2 x 10 ³
BV13	13	0.405 ± 0.035	1.1 ± 0.4	0.32 ± 0.03	0.34 ± 0.09	6.8 ± 2.4 x 10 ²
BV40	40	0.40 ± 0.01	0.995 ± 0.105	0.97 ± 0.03	0.102 ± 0.008	65.02 ± 6.75
BV100	100	0.43 ± 0.01	1.35 ± 0.15	2.65 ± 0.05	0.0515 ± 0.0035	14 ± 1
BV500	500	0.41	1.1	12	0.0088	0.46

The set of morphological parameters used to describe the dissolution patterns are summarized in Table 2.

The dissolved area and perimeter are provided at breakthrough when available during the experiment duration. The front velocity (or tip velocity) and the ‘compactness’ (ratio of dissolved area to parameter) are obtained through a linear regression along the experiment duration, with the regression coefficient R² being provided in Table 2. Overall, all regression coefficients remain high leading to good confidence in the choice of linear approximation and therefore in the obtained velocity and compactness values.

Table 2. Morphological properties. R^2 is the regression coefficient. Lack of value means that the breakthrough (BT) was not reached during the duration of the experiment.

Horizontal configuration						
Name	Front Velocity [cm.s ⁻¹]	R^2 (Velocity)	Dissolved Area S (BT) [cm ²]	Dissolved Perimeter P (BT) [cm]	Average S/P [cm]	R^2 (S/P)
BH0.1	1.0×10^{-5}	0.967	-	-	0.29	0.910
BH1	$2.0 \pm 1 \times 10^{-4}$	0.950 ± 0.036	-	-	0.44 ± 0.05	0.956 ± 0.033
BH2	$4.5 \pm 0.5 \times 10^{-4}$	0.985 ± 0.006	-	-	0.41 ± 0.12	0.808 ± 0.078
BH5	$2.65 \pm 0.33 \times 10^{-3}$	0.985 ± 0.014	25.23 ± 6.07	289.74 ± 14.7	0.088 ± 0.018	0.991 ± 0.004
BH10	$7.6 \pm 0.3 \times 10^{-3}$	0.995 ± 0.003	31.4 ± 0.5	384 ± 85	0.08 ± 0.02	0.9965 ± 0.0005
BH13	$6.55 \pm 0.45 \times 10^{-3}$	0.935 ± 0.042	22.3 ± 1.66	328 ± 26	0.065 ± 0.015	0.996 ± 0.002
BH40	$2.35 \pm 0.05 \times 10^{-2}$	0.9941 ± 0.0001	21.61 ± 0.41	281.5 ± 58.5	0.08 ± 0.02	0.998 ± 0
BH100	$5.65 \pm 0.45 \times 10^{-2}$	0.964 ± 0.022	29.7 ± 3.8	195 ± 15	0.17 ± 0.01	0.9875 ± 0.0065
BH500	2.4×10^{-1}	0.928	34.7	114	0.31	0.945
Vertical configuration						
Name	Front Velocity [cm.s ⁻¹]	R^2 (Velocity)	Dissolved Area S (BT) [cm ²]	Dissolved Perimeter P (BT) [cm]	Average S/P [cm]	R^2 (S/P)
BV0.1	$9.5 \pm 0.5 \times 10^{-6}$	0.989 ± 0.004	-	-	0.19 ± 0.05	0.9625 ± 0.0315
BV1	$1.35 \pm 0.65 \times 10^{-4}$	0.974 ± 0.044	-	-	0.16 ± 0.12	0.987 ± 0.007
BV2	$3.0 \pm 0 \times 10^{-4}$	0.973 ± 0.005	-	-	0.095 ± 0.005	0.9535 ± 0.0205
BV5	$2.4 \pm 0 \times 10^{-3}$	0.994 ± 0.001	20.84 ± 0.46	330.5 ± 12.5	0.06 ± 0	0.9865 ± 0.0085
BV10	$9.6 \pm 0.14 \times 10^{-3}$	0.995 ± 0.004	21.55 ± 2.85	220 ± 19	0.095 ± 0.005	0.993 ± 0.005

BV13	9.55 ± 0.45 $\times 10^{-3}$	$0.987 \pm$ 0.002	$21.49 \pm$ 0.66	$253.36 \pm$ 13.83	0.07 ± 0	$0.9455 \pm$ 0.0285
BV40	2.75 ± 0.15 $\times 10^{-2}$	$0.9905 \pm$ 0.0045	$19.245 \pm$ 3.615	$257.24 \pm$ 28.65	0.06 ± 0.01	$0.903 \pm$ 0.089
BV100	6.05 ± 0.35 $\times 10^{-2}$	$0.9795 \pm$ 0.0045	$27.65 \pm$ 0.05	163 ± 4	$0.185 \pm$ 0.015	$0.960 \pm$ 0.036
BV500	2.3×10^{-1}	0.723	33.6	170	0.17	0.875

The evolution of the volume of injected water to reach breakthrough normalized by the cell pore volume (or PVBT) versus injected flow rate (Figure 3) is an essential step in the interpretation of acid injection in laboratory and/or numerical experiments (Chen et al., 2018b; Cohen et al., 2008; Golfier et al., 2002; Panga et al., 2005).

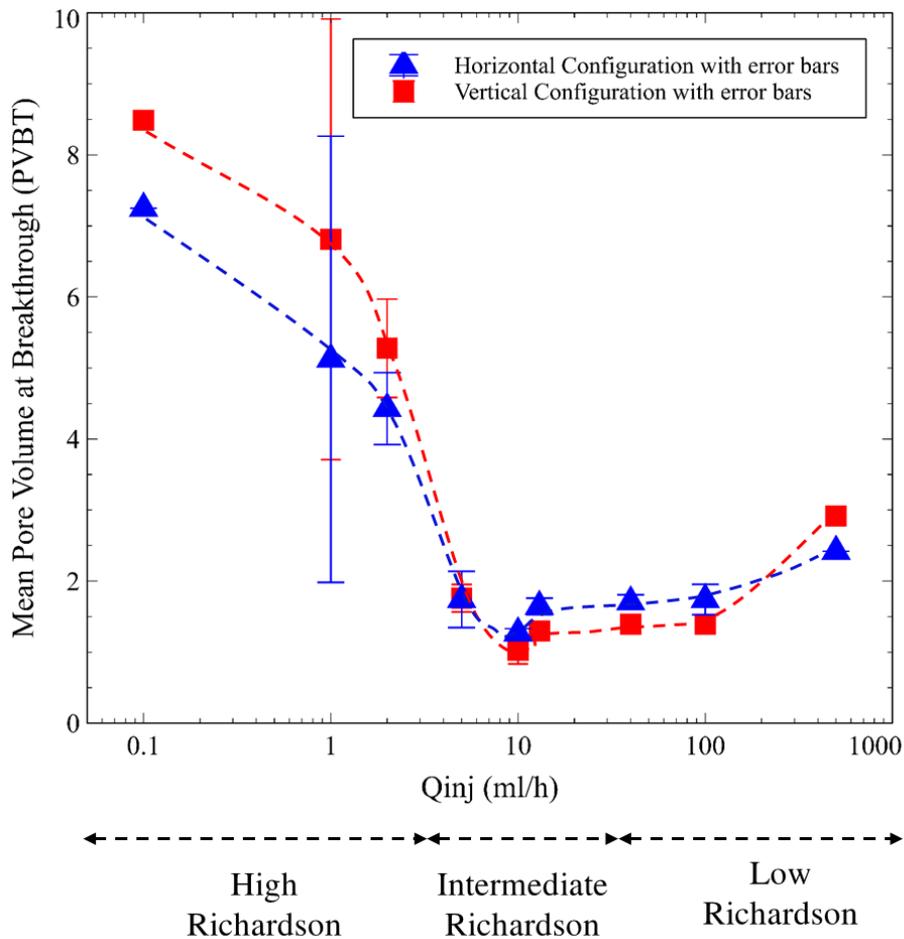


Figure 3. Mean Pore volume at breakthrough (PVBT) curve for both configurations

As shown in Figure 3, the PVBT for both configurations demonstrates classic behavior with the same optimal value, i.e., around 10 ml/h. However, it should be noted that, to the left of the minimum, the PVBT for the vertical configuration is located above the PVBT for the horizontal configuration (Figure 3) while to its right this trend is seemingly reversed and attenuated. In other words, the density contrast effects are mostly significant for the PVBT at low injection rates, i.e., high Richardson numbers. This behavior seems to be contradictory to our *a priori* expectations. Indeed, given the high values of Richardson number (Table 2) and assuming a 1D behavior, we would have thought that the buoyancy effect, that acts as an upward force as the forced convection, would “accelerate” the dissolution in the vertical direction resulting in a *downward* shift of the vertical configuration PVBT curve prior to the minimum. In order to better understand this unexpected result, we will investigate further the influence of cell orientation, and therefore buoyancy, on the dissolution patterns and dynamics and discuss the cause of the shift of PVBT using morphological descriptors as well as direct observations. This discussion will be organized according to the three different sections on the PVBT curve. At low Richardson ($Ri < 100$, i.e., $Q_{inj} \geq 40$ ml/h in the present experiment) where the PVBT increases with injected flow rate (Figure 3), at intermediate Richardson ($10^2 < Ri < 10^4$, i.e., Q_{inj} around 10 ml/h) when the PVBT is close to optimum and finally, at high Richardson ($Ri > 5 \cdot 10^4$, i.e., $Q_{inj} \leq 2$ ml/h) where the PVBT under horizontal configuration is above the PVBT under vertical configuration.

3.1 Low Richardson

In Figures 4, 5 and 6 are presented the dissolution patterns at breakthrough for a given experiment at flow rates of 500 ml/h, 100 ml/h and 40 ml/h respectively (Richardson below 100 for the latter and below unity for 500 ml/h flow rate), for both horizontal and vertical configurations. On the right side of these figures, a zoomed view of the dissolution process along dimensionless time t^* (volume of injected water at a given time normalized by the cell volume) is shown.

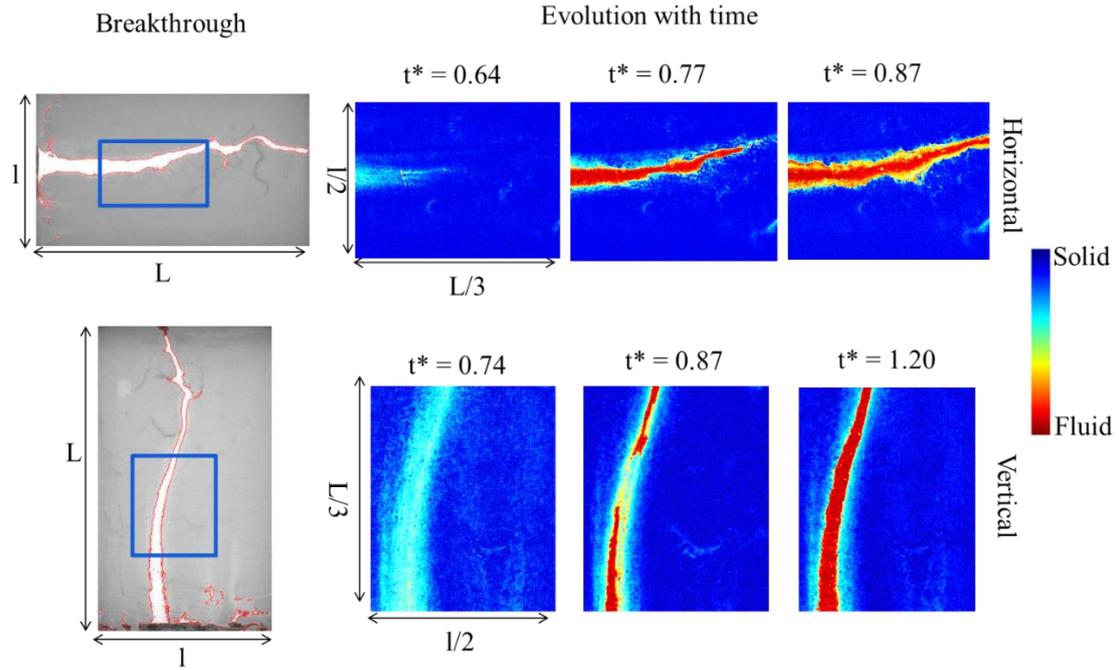


Figure 4. Dissolution pattern for the flow rate 500 ml/h in horizontal (BH500) (top) and vertical (BV500) (bottom) ($Ri = 4.6 \times 10^{-1}$) configurations. Left – Grayscale image at breakthrough, the red line represents the interface between dissolved area and non-dissolved area as obtained from the segmentation. Blue rectangle locates the zoomed area. Right – Recolored zoomed images of dissolution at different times relative to the initial image.

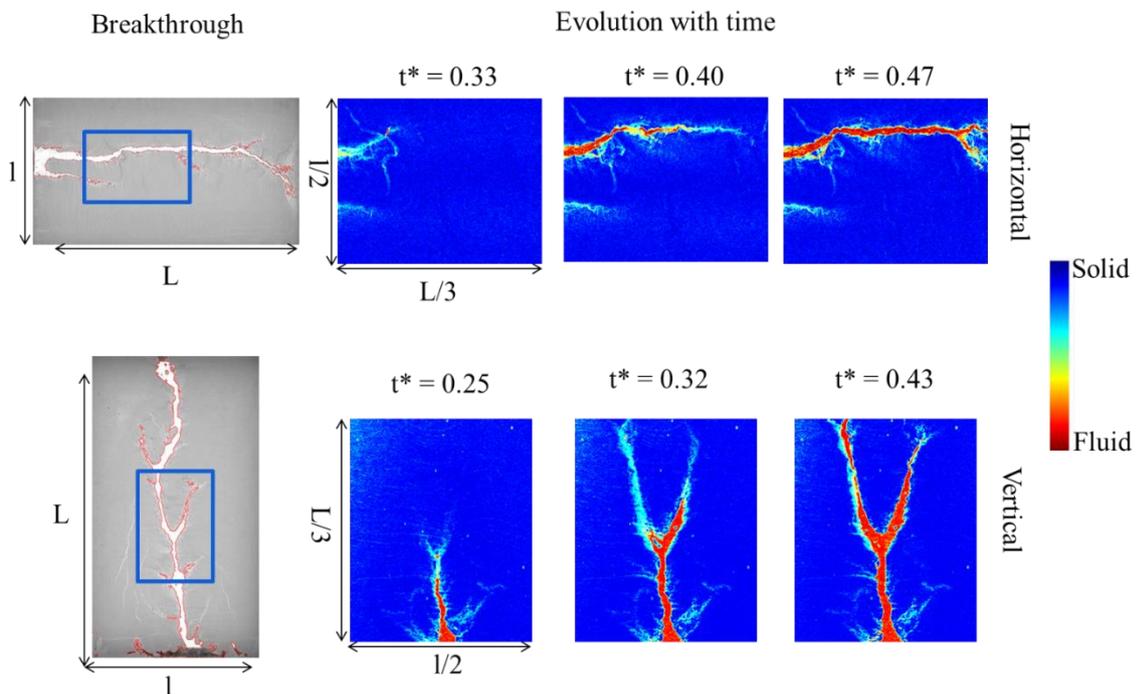


Figure 5. Dissolution pattern for the flow rate 100 ml/h in horizontal (BH100) (top) and vertical (BV100) (bottom) ($Ri = 1.3 \times 10^1$) configurations. Left – Grayscale image at breakthrough, the red line represents the interface between dissolved area and non-dissolved area as obtained from the

segmentation. Blue rectangle locates the zoomed area. Right – Recolored zoomed images of dissolution at different times relative to the initial image

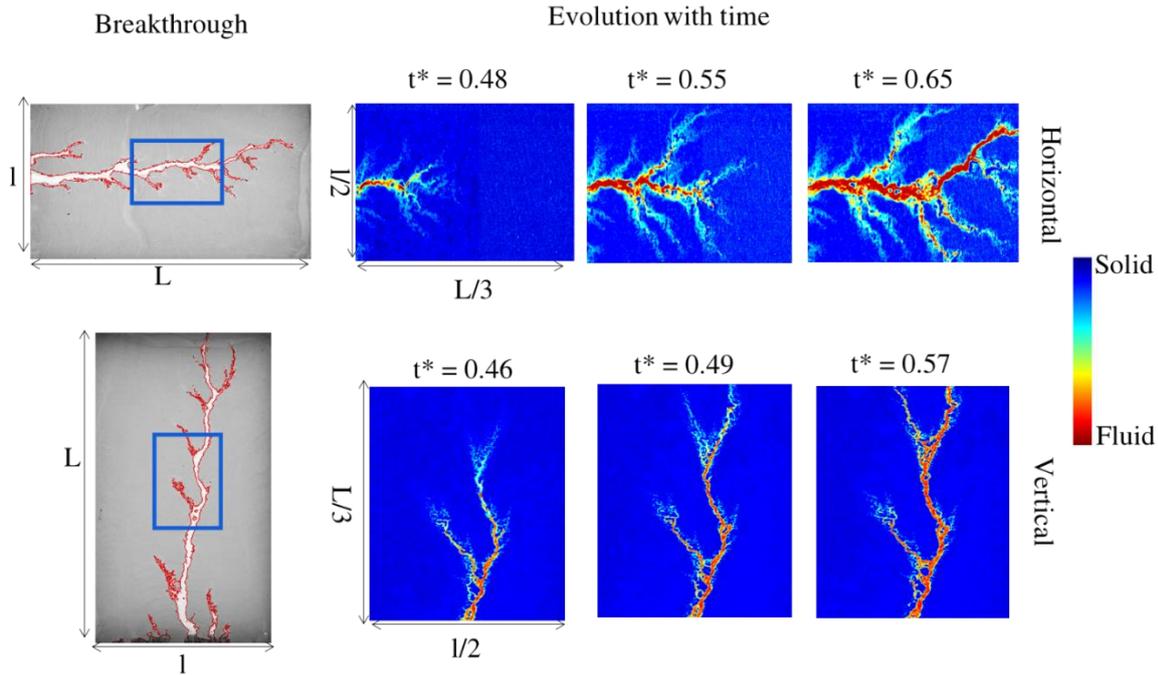


Figure 6. Dissolution pattern for the flow rate 40 ml/h in horizontal (BH40) (top) and vertical (BV40) (bottom) ($Ri = 7.1 \times 10^1$) configurations. Left – Grayscale image at breakthrough, the red line represents the interface between dissolved area and non-dissolved area as obtained from the segmentation. Blue rectangle locates the zoomed area. Right – Recolored zoomed images of dissolution at different times relative to the initial image

For all these flow rates, a principal wormhole develops in the medium presenting at its end a transition zone between the dissolved and non-dissolved area (blue sky area – figures 4 to 6) indicating the existence of a porosity gradient. At 40ml/h and 100 ml/h flow rate (figures 4 and 5), this principal wormhole presents some secondary branches of short lengths exhibiting the same property than the principal wormhole, i.e., transition zone between the dissolved and non-dissolved area. Taking into account this specificity and following previous works, these regimes will be called “ramified wormhole” by analogy with (Fredd and Fogler, 1998b; Fredd and Miller, 2000; Golfier et al., 2002). The analysis of quantitative data shows that the experimental results for all configurations remains very similar. Indeed, as the PVBT curves in horizontal and vertical configurations tend to converge towards one another, the front velocities are also rather similar with generally a mean velocity slightly higher for the vertical configuration compared to the horizontal configuration (maximum 15%). This observation is not valid for the highest flow rate where the two front velocities are rather identical. Concerning the mean dissolved areas at

breakthrough, we can consider that the results show good reproducibility. Indeed, with one exception concerning the vertical configuration for $Q_{inj} = 40$ ml/h, the variability in these surface values between the replicas is less than 10%. For the 100 ml/h flow rate, the similarity between the vertical configuration and the horizontal configuration is also maintained for the perimeters at breakthrough and for the average surface area-perimeter ratio. On the other hand, for the flow rate of 40 ml/h, the variability of this descriptor between replicates can reach differences close to 50% although the dissolved areas are relatively identical (e.g., horizontal configuration). This difference is certainly due to the length and width of the wormholes that, in the one experiment, are longer and less wide than in the other experiment (not represented in this paper). It means that the slightest variation of the permeability/porosity of the porous medium leads to change of the wormhole morphology. A similar observation was derived for the flow rate of 500 ml/h. Although the dissolved areas are practically the same, the perimeter of the dissolved phase in the vertical configuration is significantly higher than the one for the horizontal configuration. Actually, observation of the raw image (Figure 4) shows that, at the bottom of the cell, the dissolution is spread wider under vertical configuration, with smaller wormholes. This observation is also noted for two other flow rates, but less significantly. Such an observation suggests that at the beginning of the dissolution, there is more competition between different wormholes in the vertical configuration than in the horizontal configuration. Therefore, at the injection face, buoyancy may have an impact on the amount of wormholes initiated, however, as soon as the main wormholes develops the differences between the horizontal and vertical configuration become negligible. In other words, the influence of density contrast is quickly cancelled out by forced convection, as illustrated by the low Richardson's number, as soon as preferential flow paths develop.

3.2 Intermediate Richardson

Between 5 and 20 ml/h, the optimal value of the PVBT curve is reached for both horizontal and vertical configuration around 10 ml/h (Figure 3). The dissolution pattern is clearly a “dominant regime”, following the classification of (Fredd and Miller, 2000; Golfier et al., 2002; Hoefner and Fogler, 1988). In our case, this regime is characterized by the development of a main wormhole from which starts the formation of many branches of different lengths (figure 7). In the vertical configuration the interface between dissolved and non-dissolved zone is relatively sharp while in the horizontal configuration a transition zone is yet observed, represented by a partially dissolved zone enveloping the branches, highlighting the existence of a porosity

gradient. On top of that, in the vertical configuration, the dominant wormhole presents a larger tortuosity (about 1.10 for vertical configuration and compared to 1.04 for horizontal configuration) and a lower thickness (average diameter along the wormhole of 0.42 cm to 0.64 cm for BV10 compared to 0.82 cm to 0.91 cm for BH10). Moreover, the branches are more developed, longer and more numerous in the vertical case (Figure 7).

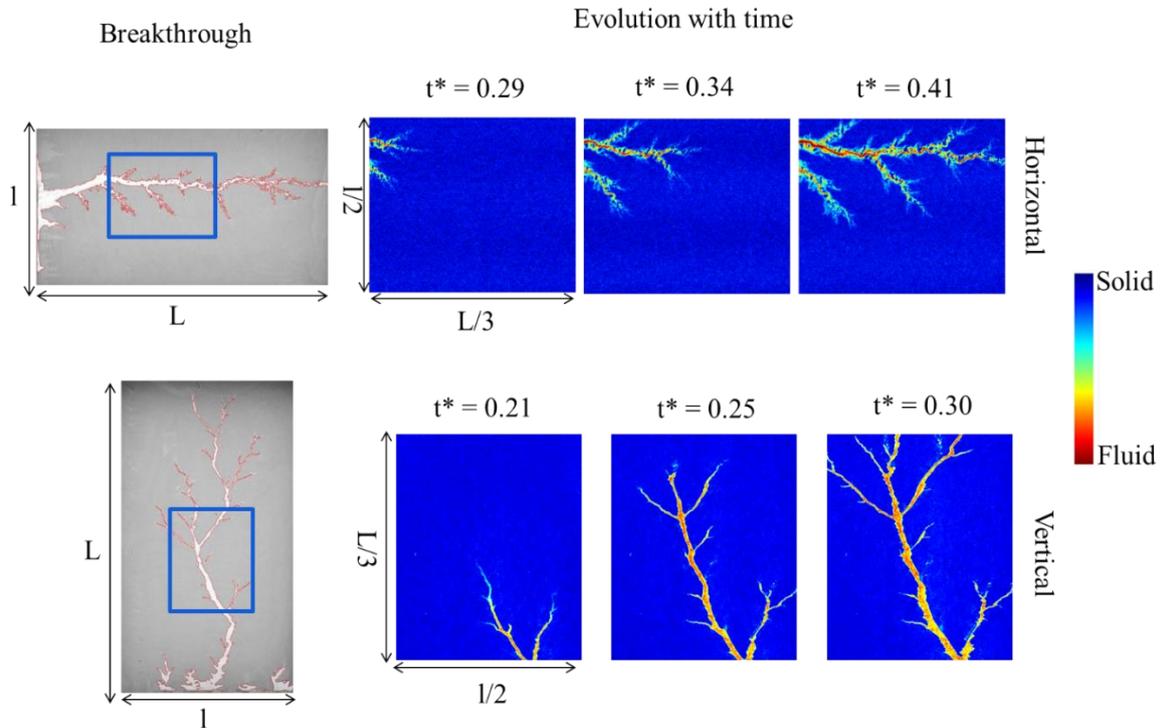


Figure 7. Dissolution pattern for the flow rate 10 ml/h in horizontal (BH10) (top) and vertical (BV10) ($Ri = 1.3 \times 10^3$) configurations. Left – Grayscale image at breakthrough, the red line represents the interface between dissolved area and non-dissolved area as obtained from the segmentation. Blue rectangle locates the zoomed area. Right – Recolored zoomed images of dissolution at different times relative to the initial image.

If our attention is focused on the configurations obtained for $Q_{inj} = 5$ ml/h, the observations and comments mentioned above cannot be made similarly. Firstly, the tortuosity values for the dominant finger in both configurations are practically the same (1.01 to 1.05). Secondly, the partially dissolved zone around the branches and therefore the porosity gradient exists for both configurations. Moreover, if we analyze the area close to the injection surface, we observe for the vertical configuration the apparition of small “wormholes” characterized by a strongly irregular interface between dissolved and non-dissolved areas. As this peculiarity was not captured for the horizontal configuration, it is certainly due to the density contrast.

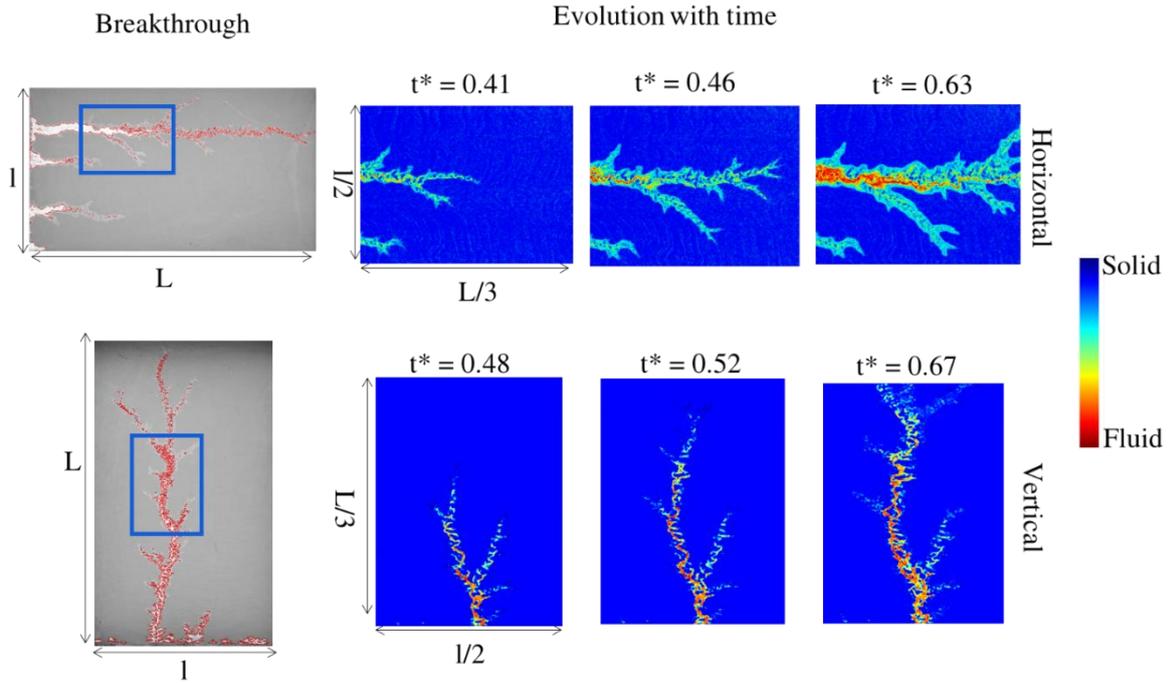


Figure 8. Dissolution pattern for the flow rate 5 ml/h in horizontal (BH5) (top) and vertical (BV5) (bottom) ($Ri = 8.3 \times 10^3$) configurations. Left – Grayscale image at breakthrough, the red line represents the interface between dissolved area and non-dissolved area as obtained from the segmentation. Blue rectangle locates the zoomed area. Right – Recolored zoomed images of dissolution at different times relative to the initial image.

Concerning the front velocity, for $Q_{inj} \geq 10$ ml/h it keeps the same characteristic as that observed for low Richardson numbers, i.e., it is higher in the vertical configuration. For some experiments, the difference between vertical and horizontal configurations can be relatively high (e.g. 46%) even if the porosities are the same (e.g., BH10 and BV10). On the other hand, for $Q_{inj} = 5$ ml/h, the mean velocity ratio is inverted (mean velocity vertical configuration / horizontal configuration ≈ 0.85). By taking into account these two particularities, i.e.,: (i) the apparition of the irregular interface between dissolved and non-dissolved areas and (ii) the reversal of the mean velocity ratio, it seems to us quite relevant to consider that the transition zone corresponding to the influence of the density contrast is located between $Q_{inj} = 5$ ml/h and $Q_{inj} = 10$ ml/h, i.e., $10^3 < Ri < 10^4$.

In regards to the other morphological parameters and taking into account the observations on velocity, we first analyze the experiments with $Q_{inj} = 10$ ml/h and $Q_{inj} = 13$ ml/h. Both the surface and perimeter at breakthrough presents the same variation with that mentioned for low Richardson numbers, i.e., smaller for vertical configurations (e.g., for BV10 compared to BH10

by 24% and 20% respectively). However, the ratio of surface to perimeter remains practically identical between vertical and horizontal configuration. Moreover, one of the BV10 experiments, that has a higher porosity, demonstrates lower velocity, surface and perimeter at breakthrough compared to another BV10 experiment. The lower velocity may be related to the higher porosity as, since the flow rate is identical, the pore velocity induced by this flow rate is inversely related to the porosity. Considering that the porosity of BH10 and BV10 are very similar, this previous explanation cannot be used to support the significant difference in front velocity between the two configurations. These differences may be related to structural changes in the porous medium after saturation. Similarly, it should be noted that, for these configurations, the repeatability of the experiments in term of perimeter at breakthrough is difficult to insure. Indeed, if the values of the surfaces show differences of less than 20%, for perimeters the differences can reach 50%.

For $Q_{inj} = 5$ ml/h, if the dissolved surfaces at breakthrough are practically identical for both configurations (less than 3%) the perimeters are smaller for horizontal configuration (table 2). In others words, in the same manner as the dissolution front velocity, we observe some shift in trend. Moreover, this result is in agreement with our comments related to the experimental observations concerning the appearance, for vertical configuration and in the area close to the injection section, of small “wormholes” characterized by a strongly irregular interface between dissolved and non-dissolved areas. As already mentioned, this roughness can only be due to the appearance and development of hydrodynamic instabilities generated by the density contrast. In our opinion, the interval between $Q_{inj} = 5$ ml/h and $Q_{inj} = 10$ ml/h, corresponds to a transition zone marked by the influence of hydrodynamic instabilities on the instabilities generated by dissolution. This hypothesis is also supported by the PVBT analysis (figure 3) which suggests, via the intersection of the curves at $Q_{inj} = 5$ ml/h, that the range from which density contrast plays an essential role on the dissolution regimes is around $Q_{inj} = 5$ ml/h. We will investigate in more detail the onset of the instabilities and of the solutal convection induced by dissolution in the following section.

3.3 High Richardson

At a flow rate of 1 ml/h and 2 ml/h the dissolution pattern corresponds to the “conical regime”. It is characterized by a wide base close to the injection cross-section, larger for 1ml/h than 2ml/h (Figure 9).

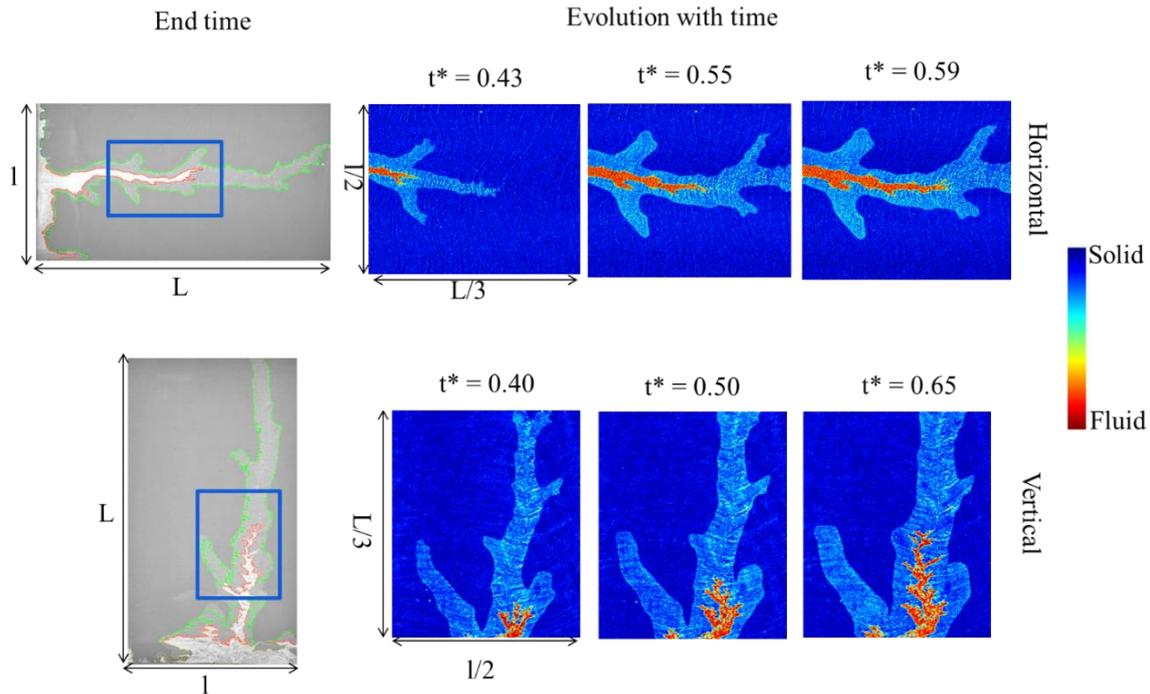


Figure 9. Dissolution pattern for the flow rate 1 ml/h in horizontal (BH1) (top) and vertical (BV1) (bottom) ($Ri = 1.0 \times 10^5$) configurations-. Left – Grayscale image at the final time of the experiment, the red (green) line represents the interface between dissolved area and partially-dissolved area (partially dissolved and non-dissolved areas) as obtained from the segmentation. Blue rectangle locates the zoomed area. Right – Recolored zoomed images of dissolution at different time relative to the initial image.

As shown in Figure 9, at 1 ml/h, two distinct dissolution zones may be observed. Unlike in the “ramified regime” where the transition from the wormhole to the porous media is rather smooth, the interfaces between the different zones are sharp. The inner wormhole is completely transparent, similarly to the wormholes observed under the other regimes, and thus corresponds to a total dissolution of the porous medium. The second one, which completely surrounds the inner wormhole, corresponds to a partially dissolved zone. Similar behavior has already been mentioned during the analysis of the dissolution pattern at intermediate Richardson ($Q_{inj} = 10$ ml/h – horizontal configuration and $Q_{inj} = 5$ ml/h for both configurations). This halo is also observed, albeit much less developed and mostly under horizontal conditions, at flow rate 0.1 ml/h (Figure 10). It should be noted that, as the injection rate decreases, this envelope thickens laterally with respect to the inner vortex for the vertical configuration, while for the horizontal configuration it develops mostly at the end of the inner vortex (e.g., $Q_{inj} = 1$ ml/h, Figure 9). As a consequence, the surface of the halo becomes larger under vertical configuration (57 cm² to

63 cm²) compared to horizontal one (40 cm² to 52 cm²) at the envelope breakthrough. The time-averaged envelope tip velocity as well as ratio between surface and perimeter are very close under horizontal and vertical configurations (between 4 and 5 μm/s for tip velocity and 0.04 cm for compacity) demonstrating an overall similar shape of this partially dissolved area. However, it should be mentioned that some variability in the envelope tip velocity data was observed. Thus, for the vertical configuration, the differences in the envelope tip velocity between the three experiments carried out with $Q_{inj} = 1\text{ml/h}$, can reach even 100%. For the horizontal configuration, the difference is about 25%. Since the porous medium between the horizontal and vertical configurations have practically the same porosity and permeability characteristics (Table 2), it is possible that these differences are induced by the density contrast via the unstable development of the completely dissolved zone.

It should be noted that as the apparition and the development of this envelope occurs under both configuration and it was not observed in experiments using pure salt (Golfier et al., 2002) or pure plaster (Daccord, 1987), the main hypothesis to explain such observation is that it is linked with the mixed nature of the porous media (salt and plaster) and the subsequent differences in solubility.

Considering now the inner wormhole, we observe that, for the considered flow rates (0.1 ml/h, 1ml/h and 2ml/h), the fluid-solid interface demonstrates clear discrepancy between the horizontal and vertical configuration (Figures 9 and 10). Indeed, in the former, the interface remains smooth while in the latter, it has more roughness. This observation is further supported by comparing the surface to perimeter ratio. Indeed, if attention is paid to the dynamics of the dissolved surface we observe that, for a given surface, the perimeter is about 2.0 times larger (or more for the $Q_{inj} = 2\text{ml/h}$) in vertical configuration. In the conical regime, the time-averaged front velocity is seemingly lower in vertical configuration in average. However, it should be noted that, similarly to the envelope, there is a strong variability with tip velocity ranges mostly overlapping between horizontal and vertical configurations at $Q_{inj} = 1\text{ ml/h}$. Variability is much smaller for $Q_{inj} = 2\text{ ml/h}$, yet, the differences in velocity front can reach 50%. This trend is in agreement with that already observed for $Q_{inj} = 5\text{ ml/h}$ where the difference in velocity front is about 20%. As the flow rate injected decreases, the difference between the velocities of the horizontal/vertical dissolution front increases (Table 2). In fact, in horizontal configuration, the dissolution occurs mostly forward to the tip, in the direction of the flow. Under vertical configuration, however, the dissolution develops both forward to the tip and on the wormhole lateral sides leading to the observed roughness. Under the flow rate of 0.1 ml/h, the dissolution

is widely spread over the whole cross-section of the cell, corresponding to the “compact regime” (Figure 10).

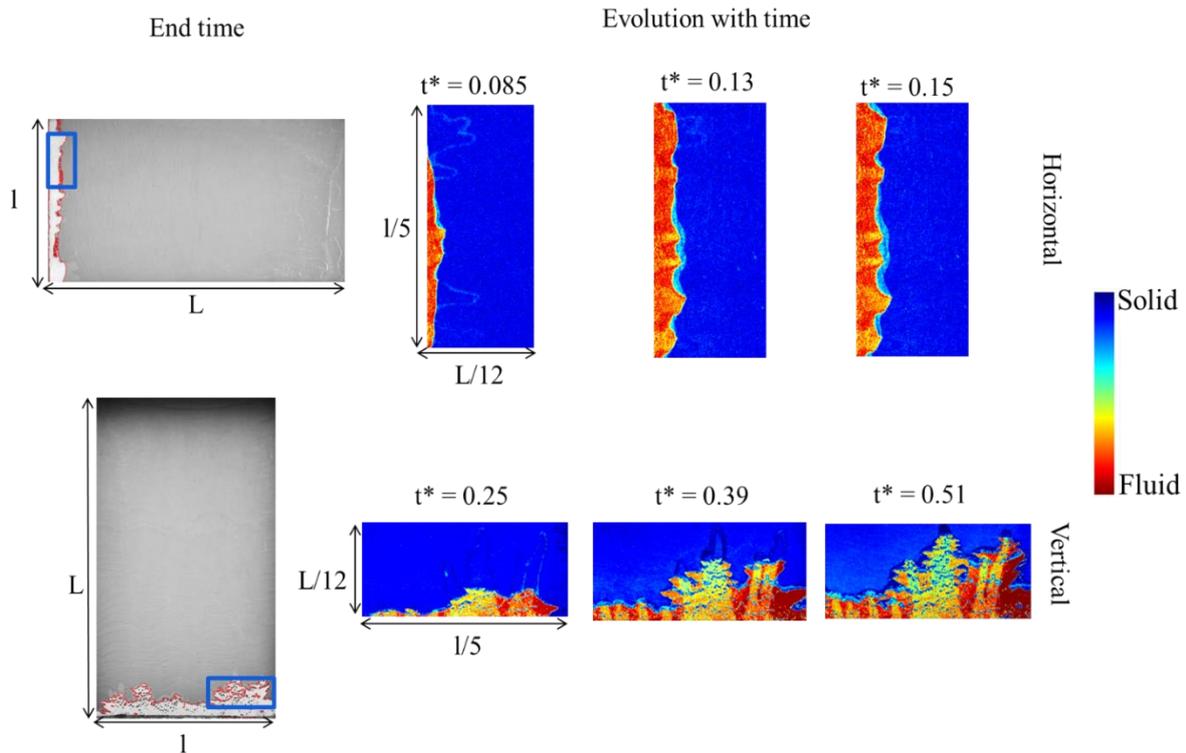


Figure 10. Dissolution pattern for the flow rate 0.1 ml/h in horizontal (BH0.1) (top) and vertical (BV0.1_2) (bottom) ($Ri = 1.7 \times 10^7$) configurations. Left – Grayscale image at final time of the experiment, the red line represents the interface between dissolved area and non-dissolved area as obtained from the segmentation. Blue rectangle locates the zoomed area. Right – Recolored zoomed images of dissolution at different time relative to the initial image.

These comments are fully consistent with the evolution of the PVBT (Figure 3) where the vertical configuration (low mean front velocity) is found above the horizontal configuration. However, the more the injected flow rate decreases, the more the values of certain parameters used in our analysis vary. This variation could lead us to a certain reserve concerning the reproducibility of the experiments. Indeed, if we take into account the experiments carried out for $Q_{inj} = 1$ ml/h we observe that the PVBT values for the vertical configuration vary between 3.46 to 9.58 with a standard deviation about 3.1 while for the horizontal configuration the same values vary between 2.28 and 8.5 with a standard deviation of about 4.4. If for the vertical configuration this difference could be attributed to instabilities induced by both dissolution and density contrast resulting in non-reproducible configurations, for the horizontal configuration this difference could only be attributed to instabilities induced by the dissolution. This result signifies that at low injection rates the slightest local variation in permeability and/or porosity

can lead to a large variation in breakthrough time although the dissolution regime remains unchanged. An experiment in vertical configuration could thus have a breakthrough time greater than an experiment in horizontal configuration.

A similar observation than for the conical regime concerning the fluid-solid interface roughness can be made (Figure 8), albeit with the vertical configurations surface to perimeter ratios being significantly smaller than the horizontal one (Table 2). Despite the variability of the compacity parameter, there is a clear discrepancy between horizontal and vertical values with no overlapping of the range of values.

In order to further investigate the roughness, let us focus our attention on the one of the injected flow rate discussed above, that is $Q_{inj} = 1$ ml/h via the evolution of the estimated perimeter at the geometrical interface between the dissolved zone and the partially dissolved zone and the dissolved surface with dimensionless time (Figure 11). As shown in Figure 11-left, it results that for a given quantity of pure water injected, and therefore for a given time, the dissolved surface (i.e., the dissolved mass) shows two distinct "trends" regardless of considered configuration. Thus, the experiments noted by BH1_2 are grouped together with BV1_2 and BV1_3 while BH1_1 presents values close to BV1_1 (BH = horizontal configuration, BV = vertical configuration, _1 = the index of the experiment). As for BH1_3, it covers both "trends". At the beginning of the experiment, its dynamics rather follows that of the first grouping, while at the end of the experiment it is relatively close to the second one. This difference in behaviour is certainly due to what can be called an "experimental artifact" translated by the appearance, close to the lateral edge of the cell, of an additional wormhole (Figure 12). This observation is also present on the PVBT curve, with BV1_3, BH1_2 and BV1_2 being the higher values and BH1, BV1 and BH1_3 the lower values. On the other hand, the geometrical interface area (or perimeter – Figure 11-right), which can be assimilated to a reactive interface, demonstrate a clear separation between vertical and horizontal configurations with the former being clearly greater than the latter. This difference reinforces our experimental observation concerning the development of roughness in the vertical configuration. Besides, it should be noted that the variability is significantly lower for the perimeter than for the dissolved surface.

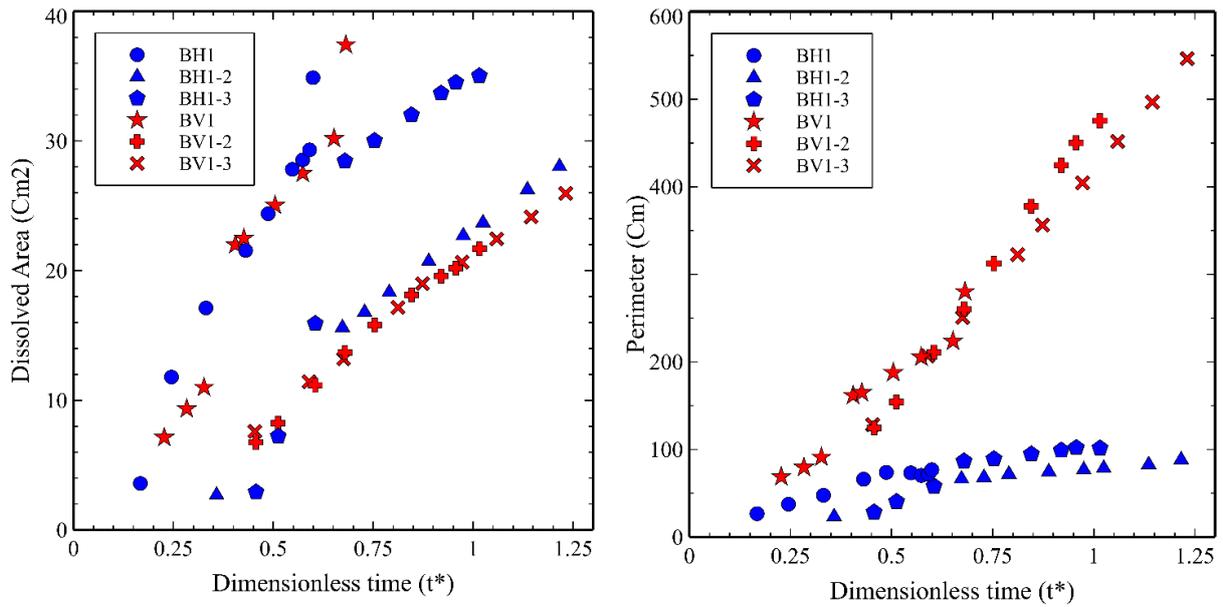


Figure 11. Evolution of interface between dissolved and non-dissolved area (or perimeter) (left) and dissolved area (right) against dimensionless time at 1ml/h for both configurations.

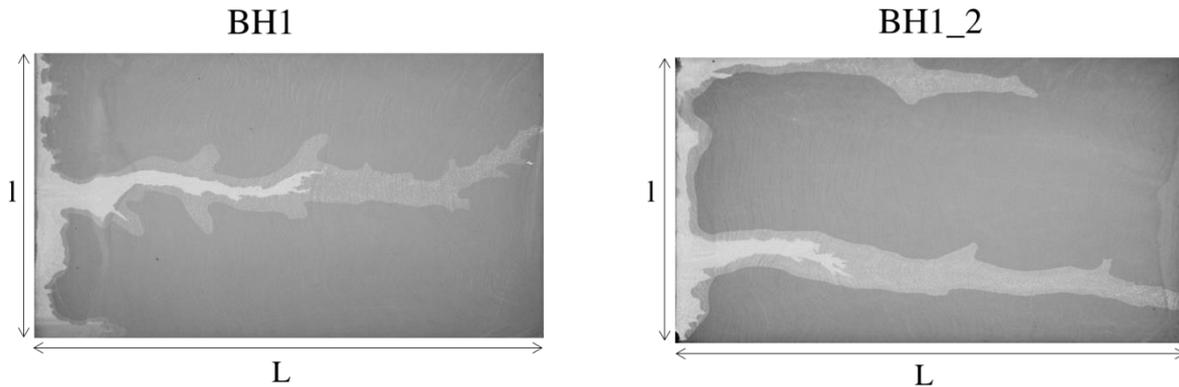


Figure 12. Dissolution pattern for BH1 (without lateral wormhole) and BH1_2 (with lateral wormhole)

Considering the development of interface roughness as a clear discrepancy between vertical and horizontal configuration, it is very likely the consequence of buoyancy-driven instabilities. Indeed, the high Richardson number of the conical and compact regimes ($10^5 - 10^7$) suggests that, in vertical configuration, the free convection becomes preponderant and this behavior can be assimilated with the one described for supercritical CO₂ storage in brine aquifers (Babaei and Islam, 2018; Fu et al., 2015; Sainz-Garcia et al., 2017) for which the formation of convective cells was found numerically. In essence, since the injection velocity is very low, our configuration is reminiscent of the Rayleigh-Benard-Darcy type problem. Classically, a critical solutal Rayleigh number $Ra_c = \frac{\Delta\rho g l^3}{\mu D}$ with μ the fluid dynamic viscosity [Pa.s] and l a characteristic length [m], is used to identify the onset of convection instability but this value

may vary significantly depending on boundary conditions and geometry. Since our boundary conditions are potentially time-variable, it is not fully equivalent to the classical Rayleigh-Bénard problem and it is more appealing to make a parallel with the behavior of a salt block immersed in water investigated by (Philippi et al., 2019b) in which an estimate of Ra_c between 600 and 1300 (due to the uncertainty on the boundary layer thickness l) is found. Based on this study also, the dissolved flux should tend towards a constant value which, can be related to the experimental Rayleigh number Ra , via the following relationship:

$$F = (Ra)^{-1/3} C_m \left(\frac{D g \Delta \rho^{eff}}{\mu} \right)^{1/3}$$

In the vertical configuration, a quasi-steady dissolved flux is also observed (see Figure 11) which supports the comparison with the study of (Philippi et al., 2019b). Using a similar approach with that proposed by (Slim et al., 2013), the dissolution mass flux per unit area (defined in our case by $A = e \times (l - 2 \times f)$) for each experiment can be determined as $F = (dM/dt)/A$ where M is the dissolved mass estimated through the dissolved areas. We obtain dissolved fluxes which vary between $6.0 \times 10^{-5} \text{ kg/m}^2\text{s}$ for $Q_{inj} = 0.1 \text{ ml/h}$ and $3.0 \times 10^{-4} \text{ kg/m}^2\text{s}$ for $Q_{inj} = 2 \text{ ml/h}$. For these dissolved fluxes, Ra values are relatively large ($> 10^4$), in any case, much higher than the critical value proposed by (Philippi et al., 2019b) corresponding to the onset of instabilities. If we extend this analysis for the higher flow rates, the experimental values of Rayleigh number fall below Ra_c for flow rates between 5 and 10 ml/h which is consistent with our previous observations.

Therefore, we may suppose that the injected fluid causes the appearance and development of gravitational instabilities resulting in concentration finger-like structures of different amplitudes that migrate upwards. In the compact regime, where the dissolution is spread over the whole width of the domain, these convective cells transport the high-concentration solution, *i.e.*, salt saturated water, towards the injection surface and, conversely, the injected fresh water towards the dissolution front. As a result, a mixing zone develops with perturbations in concentration located at the dissolved/undissolved zone interface. These concentration instabilities drive the observed surface roughness as illustrated conceptually in (Figure 13). And the higher Ra is, the higher is the surface roughness. In the conical regime, a similar phenomenon could be envisioned, though localized in the inner wormhole and causing the increased roughness and lateral extension.

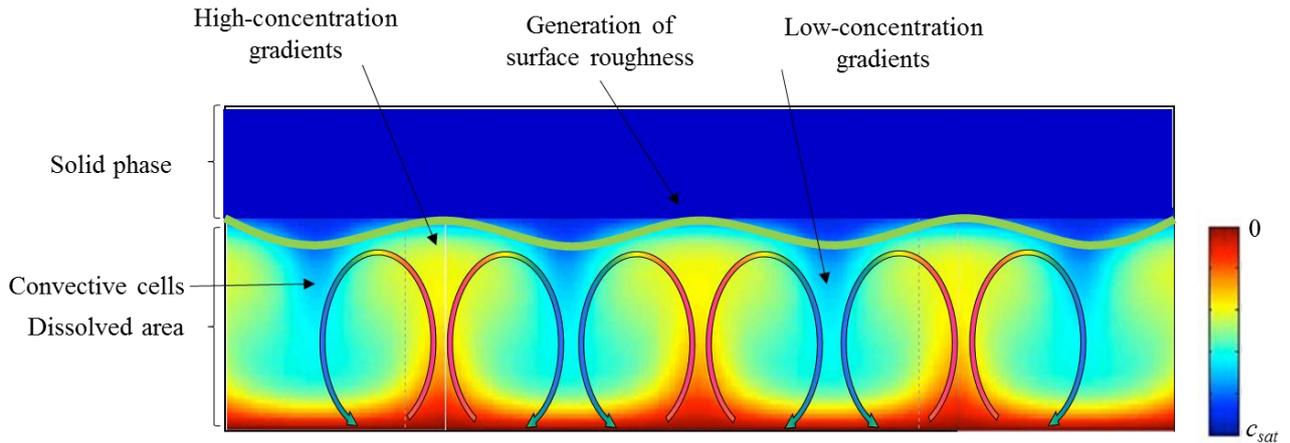


Figure 13. Conceptual description of the interface roughness generation

4. Conclusions

In the present work, experimental results of the dissolution of a salt-plaster material considering two configurations (vertical and horizontal) and multiple flow rates were discussed with the aim to evaluate the impact of density driven flow on dissolution patterns. The following results were obtained:

- (i) In contrast to the changes generated by the density contrast in the dissolution patterns of a vertical fracture (Oltéan et al., 2013), the overall dissolution regimes were preserved independently of the cell orientation and no other regime was obtained. These regimes may be summarized in a diagram following the work of (Golfier et al., 2002) (Figure 14, right).
- (ii) Although the PVBT curves show a classic behavior with an optimal value closed to the dominant regime, they are not superimposed especially for the low flow rates. Therefore, the PVBT for the vertical configuration is seemingly shifted upward compared to the horizontal configuration suggesting that, for high Richardson numbers, the forward velocity of the dissolution front is slowed down by the density contrast (Figure 14, left). This unexpected behavior was explained by using the morphological parameters of the dissolved zone (surface, perimeter, roughness and tortuosity) derived from a careful interpretation of the experimental images. Therefore, in the compact and conical regimes, the buoyancy effects interpreted through the apparition and the development of the convective cells and/or chaotic mixture lead to an increase in the roughness at the interface between dissolved/undissolved or dissolved/partially dissolved zones (Figure 14, left). Note that, for intermediate and low Richardson numbers, both PVBT curves are converging

towards one another which means that from the dominant pattern the influence of the density contrast is negligible (Figure 14, right).

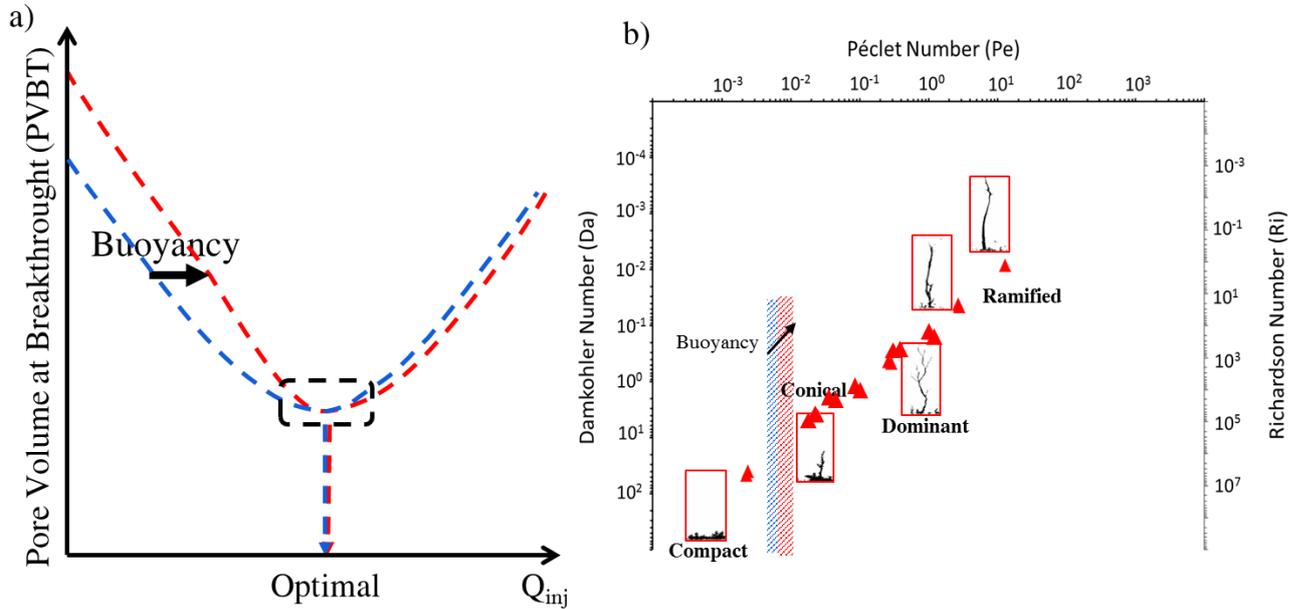


Figure 14. Impact of buoyancy (black arrows) on the PVBT curves (a) and on the transition between dissolution patterns as illustrated on the regime diagram (b). Data points and images correspond to the results in vertical configuration.

On top of these remarks, another phenomenon was observed in link with the nature of the medium used; the salt-plaster mixture likely causes the apparition of two different dissolution zones (one partial and one total) especially developed in the conical regime. The hypothesis used to explain such an observation has been linked to the differences in solubility between plaster and salt.

In order to further precise the regimes' transitions as well as to evaluate our proposed physical explanation, a numerical study would be necessary. Numerical study allows the testing of a wide range of parameters and / or couplings not always easily available experimentally. However, it should be noted that simulating instability propagation under high reaction rate and buoyancy coupling remains complex and is a highly challenging goal for future works.

Acknowledgements

This work has been partially supported by the French National Research Agency through the national program "Investissements d'avenir" with the reference ANR-10-LABX-21-10 / LABEX RESSOURCES21. The data presented in this manuscript are provided through Figshare

(https://figshare.com/projects/Experimental_insights_into_the_interplay_between_buoyancy_convection_and_dissolution_reaction/76041)

References

Babaei, M., & Islam, A. (2018). Convective-Reactive CO₂ Dissolution in aquifers with mass transfer with immobile water. *Water Resources Research*, 54(11), 9585–9604. <https://doi.org/10.1029/2018WR023150>

Bazin, B. (2000). From matrix acidizing to acid fracturing: A laboratory evaluation of acid/rock interactions, *SPE Prod. and Facilities*15(4), 1–8.

Bear, J. (1972). Dynamics of fluids in porous media. Elsevier, New York. Dynamics of fluids in porous media. Elsevier, New York.

Campana, C., & Fidelibus, M. D. (2015). Reactive-transport modelling of gypsum dissolution in a coastal karst aquifer in Puglia, southern Italy. *Hydrogeology Journal*, 23(7), 1381–1398. <https://doi.org/10.1007/s10040-015-1290-x>

Chaudhuri, A., Rajaram, H., Viswanathan, H., Zyvoloski, G., & Stauffer, P. (2009). Buoyant convection resulting from dissolution and permeability growth in vertical limestone fractures: Buoyant convection from aperture growth. *Geophysical Research Letters*, 36(3). <https://doi.org/10.1029/2008GL036533>

Chen, Y., Ma, G., Li, T., Wang, Y., & Ren, F. (2018). Simulation of wormhole propagation in fractured carbonate rocks with unified pipe-network method. *Computers and Geotechnics*, 98, 58–68. <https://doi.org/10.1016/j.compgeo.2017.11.009>

Cohen, C. E., Ding, D., Quintard, M., & Bazin, B. (2008). From pore scale to wellbore scale: Impact of geometry on wormhole growth in carbonate acidization. *Chemical Engineering Science*, 63(12), 3088–3099. <https://doi.org/10.1016/j.ces.2008.03.021>

Colombani, J. (2008). Measurement of the pure dissolution rate constant of a mineral in water. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 72(23), 5634–5640. <https://doi.org/10.1016/j.gca.2008.09.007>

Daccord, G. (1987). Chemical dissolution of a porous medium by a reactive fluid. *Physical Review Letters*, 58(5), 479–482. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.58.479>

Dijk, P. E., Berkowitz, B., & Yechieli, Y. (2002). Measurement and analysis of dissolution patterns in rock fractures: Measurement and analysis of dissolution in rock fractures. *Water Resources Research*, 38(2), 5-1-5–12. <https://doi.org/10.1029/2001WR000246>

- Dutka, F., Starchenko, V., Osselin, F., Magni, S., Szymczak, P., & Ladd, A. J. C. (2020). Time-dependent shapes of a dissolving mineral grain: comparisons of simulations with microfluidic experiments. *Chemical Geology*, 119459. <https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2019.119459>
- Emami-Meybodi, H., Hassanzadeh, H., Green, C. P., & Ennis-King, J. (2015). Convective dissolution of CO₂ in saline aquifers: Progress in modeling and experiments. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 40, 238–266. <https://doi.org/10.1016/j.ijggc.2015.04.003>
- Fredd, C. N., & Fogler, H. (1998a). The kinetics of calcite dissolution in acetic acid solutions. *Chemical Engineering Science*, 53(22), 3863–3874. [https://doi.org/10.1016/S0009-2509\(98\)00192-4](https://doi.org/10.1016/S0009-2509(98)00192-4)
- Fredd, C. N., & Fogler, H. S. (1998b). Influence of transport and reaction on wormhole formation in porous media. *AIChE Journal*, 44(9), 1933–1949. <https://doi.org/10.1002/aic.690440902>
- Fredd, C. N., & Miller, M. J. (2000). Validation of carbonate matrix stimulation models. Presented at the SPE International Symposium on Formation Damage Control, Society of Petroleum Engineers. <https://doi.org/10.2118/58713-MS>
- Fu, X., Cueto-Felgueroso, L., Bolster, D., & Juanes, R. (2015). Rock dissolution patterns and geochemical shutdown of –brine–carbonate reactions during convective mixing in porous media. *Journal of Fluid Mechanics*, 764, 296–315. <https://doi.org/10.1017/jfm.2014.647>
- Golfier, F., Zarcone, C., Bazin, B., Lenormand, R., Lasseux, D., & Quintard, M. (2002). 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. <https://doi.org/10.1017/S0022112002007735>
- Gray, F., Anabaraonye, B., Shah, S., Boek, E., & Crawshaw, J. (2018). Chemical mechanisms of dissolution of calcite by HCl in porous media: Simulations and experiment. *Advances in Water Resources*, 121, 369–387. <https://doi.org/10.1016/j.advwatres.2018.09.007>
- Guo, J., Laouafa, F., & Quintard, M. (2016). A theoretical and numerical framework for modeling gypsum cavity dissolution. *International Journal for Numerical and Analytical Methods in Geomechanics*, 40(12), 1662–1689. <https://doi.org/10.1002/nag.2504>
- Hidalgo, J. J., MacMinn, C. W., & Juanes, R. (2013). Dynamics of convective dissolution from a migrating current of carbon dioxide. *Advances in Water Resources*, 62, 511–519. <https://doi.org/10.1016/j.advwatres.2013.06.013>
- Hoefner, M. L., & Fogler, H. S. (1988). Pore evolution and channel formation during flow and reaction in porous media. *AIChE Journal*, 34(1), 45–54. <https://doi.org/10.1002/aic.690340107>

- Izgec, O., Zhu, D., & Hill, A. D. (2010). Numerical and experimental investigation of acid wormholing during acidization of vuggy carbonate rocks. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 74(1–2), 51–66. <https://doi.org/10.1016/j.petrol.2010.08.006>
- Johnson, K. S. (2005). Subsidence hazards due to evaporite dissolution in the United States. *Environmental Geology*, 48(3), 395–409. <https://doi.org/10.1007/s00254-005-1283-5>
- Johnson, K. S. (2008). Evaporite-karst problems and studies in the USA. *Environmental Geology*, 53(5), 937–943. <https://doi.org/10.1007/s00254-007-0716-8>
- Kang, Q., Lichtner, P. C., & Zhang, D. (2007). An improved lattice Boltzmann model for multicomponent reactive transport in porous media at the pore scale: Multicomponent reactive transport. *Water Resources Research*, 43(12). <https://doi.org/10.1029/2006WR005551>
- Lehmann, G., & Legland, D. (2012). Efficient N-Dimensional surface estimation using Crofton formula and run-length encoding, 11.
- Liang, C., Cui, M., Xue, H., Zou, H., Jiang, W., & Liu, P. (2015). Simulation and Analysis of Wormhole Structure Affected by Mineralogy Heterogeneity in Carbonate Rocks, 20, 21.
- Liu, M., Shabaninejad, M., & Mostaghimi, P. (2017). Impact of mineralogical heterogeneity on reactive transport modelling. *Computers & Geosciences*, 104, 12–19. <https://doi.org/10.1016/j.cageo.2017.03.020>
- Luo, H., Quintard, M., Debenest, G., & Laouafa, F. (2012). Properties of a diffuse interface model based on a porous medium theory for solid–liquid dissolution problems. *Computational Geosciences*, 16(4), 913–932. <https://doi.org/10.1007/s10596-012-9295-1>
- Luquot, L., Hebert, V., & Rodriguez, O. (2016). Calculating structural and geometrical parameters by laboratory measurements and X-ray microtomography: a comparative study applied to a limestone sample before and after a dissolution experiment. *Solid Earth*, 7(2), 441–456. <https://doi.org/10.5194/se-7-441-2016>
- Mayer, K. U., Frind, E. O., & Blowes, D. W. (2002). Multicomponent reactive transport modeling in variably saturated porous media using a generalized formulation for kinetically controlled reactions. *Water Resources Research*, 38(9), 13-1-13–21. <https://doi.org/10.1029/2001WR000862>
- Menke, H. P., Bijeljic, B., Andrew, M. G., & Blunt, M. J. (2015). Dynamic three-dimensional pore-scale imaging of reaction in a carbonate at reservoir conditions. *Environmental Science & Technology*, 49(7), 4407–4414. <https://doi.org/10.1021/es505789f>
- Menke, H. P., Reynolds, C. A., Andrew, M. G., Pereira Nunes, J. P., Bijeljic, B., & Blunt, M. J. (2018). 4D multi-scale imaging of reactive flow in carbonates: Assessing the impact of heterogeneity on dissolution regimes using streamlines at multiple length scales. *Chemical Geology*, 481, 27–37. <https://doi.org/10.1016/j.chemgeo.2018.01.016>

- Min, T., Gao, Y., Chen, L., Kang, Q., & Tao, W. (2016). Changes in porosity, permeability and surface area during rock dissolution: Effects of mineralogical heterogeneity. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, *103*, 900–913. <https://doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2016.07.043>
- Oltéan, C., Golfier, F., & Buès, M. A. (2013). Numerical and experimental investigation of buoyancy-driven dissolution in vertical fracture. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, *118*(5), 2038–2048. <https://doi.org/10.1002/jgrb.50188>
- Ott, H., & Oedai, S. (2015). Wormhole formation and compact dissolution in single- and two-phase CO₂-brine injections. *Geophysical Research Letters*, *42*(7), 2270–2276. <https://doi.org/10.1002/2015GL063582>
- Panga, M. K. R., Ziauddin, M., & Balakotaiah, V. (2005). Two-scale continuum model for simulation of wormholes in carbonate acidization. *AIChE Journal*, *51*(12), 3231–3248. <https://doi.org/10.1002/aic.10574>
- Philippi, J., Berhanu, M., Derr, J., & Courrech du Pont, S. (2019). Solutal convection induced by dissolution. *Physical Review Fluids*, *4*(10), 103801. <https://doi.org/10.1103/PhysRevFluids.4.103801>
- Raines, M. A., & Dewers, T. A. (1997). Mixed transport reaction control of gypsum dissolution kinetics in aqueous solutions and initiation of gypsum karst, 20.
- Sainz-Garcia, A., Abarca, E., Nardi, A., Grandia, F., & Oelkers, E. H. (2017). Convective mixing fingers and chemistry interaction in carbon storage. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, *58*, 52–61. <https://doi.org/10.1016/j.ijggc.2016.12.005>
- Schechter, R. S., & Gidley, J. L. (1969). The change in pore size distribution from surface reactions in porous media. *AIChE Journal*, *15*(3), 339–350. <https://doi.org/10.1002/aic.690150309>
- Slim, A. C., Bandi, M. M., Miller, J. C., & Mahadevan, L. (2013). Dissolution-driven convection in a Hele–Shaw cell. *Physics of Fluids*, *25*(2), 024101. <https://doi.org/10.1063/1.4790511>
- Snippe, J., Gdanski, R., & Ott, H. (2017). Multiphase modelling of wormhole formation in carbonates by the injection of CO₂. *Energy Procedia*, *114*, 2972–2984. <https://doi.org/10.1016/j.egypro.2017.03.1426>
- Snippe, J., Berg, S., Ganga, K., Brussee, N., & Gdanski, R. (2020). Experimental and numerical investigation of wormholing during CO₂ storage and water alternating gas injection. *International Journal of Greenhouse Gas Control*, *94*, 102901. <https://doi.org/10.1016/j.ijggc.2019.102901>

Soulaine, C., Roman, S., Kavscek, A., & Tchelepi, H. A. (2017). Mineral dissolution and wormholing from a pore-scale perspective. *Journal of Fluid Mechanics*, p. 827.

Szymczak, P., & Ladd, A. J. C. (2004). Microscopic simulations of fracture dissolution: Microscopic simulations of dissolution. *Geophysical Research Letters*, 31(23). <https://doi.org/10.1029/2004GL021297>

Szymczak, P., & Ladd, A. J. C. (2011). Instabilities in the dissolution of a porous matrix: Dissolutional instabilities. *Geophysical Research Letters*, 38(7), n/a-n/a. <https://doi.org/10.1029/2011GL046720>

Szymczak, Piotr, & Ladd, A. J. C. (2011). The initial stages of cave formation: Beyond the one-dimensional paradigm. *Earth and Planetary Science Letters*, 301(3–4), 424–432. <https://doi.org/10.1016/j.epsl.2010.10.026>

Weisbrod, N., Alon-Mordish, C., Konen, E., & Yechieli, Y. (2012). Dynamic dissolution of halite rock during flow of diluted saline solutions: Dynamic dissolution of salt rock. *Geophysical Research Letters*, 39(9), n/a-n/a. <https://doi.org/10.1029/2012GL051306>

II- Compléments d'analyses et discussions du couplage réaction chimique et instabilités hydrodynamiques

Les discussions dans cette partie seront un complément aux réflexions menées dans le papier soumis au Journal of Geophysical Research – Solid Earth. Elles porteront sur l'évolution de la structure solide du milieu poreux lors de la phase de dissolution, le rôle du contraste de masse volumique sur l'orientation des ramifications des wormholes et la distribution de la taille des pores.

II.1- Orientation des ramifications en fonction du débit

L'orientation des ramifications des wormholes pourrait constituer un autre indicateur permettant de mettre en évidence l'influence du contraste de masse volumique sur les différents régimes de dissolutions et notamment sur les régimes convectifs, i.e., dominants & ramifiés. En effet, sur ces régimes, les branches sont beaucoup plus développées et leurs propagations pourraient être influencées aussi bien par les hétérogénéités locales que par les mécanismes de dissolutions et les effets du contraste de masse volumique. L'orientation des branches a été déterminée à travers l'angle α compris entre 0° et 90° et défini comme étant l'angle entre la branche étudiée et l'axe perpendiculaire au wormhole principal, i.e. l'axe Ox.

Il faut cependant noter que, sur une série de données correspondant à un régime de dissolution donné, nous ne retiendrons que l'angle moyenné sur l'ensemble de ces valeurs. À cet effet, les données brutes évaluées ont présenté dans l'ensemble une déviation standard de $\pm 13^\circ$ pour la configuration verticale et de $\pm 10^\circ$ pour la configuration horizontale. Une fois moyennée sur l'ensemble des essais, les différents écart-types se situent entre 0.70 et 5.65 pour les deux configurations. Globalement, les angles des ramifications se situent entre 45° et 65° pour les deux configurations (Figure 56). Notons que les barres d'erreurs sur la Figure 56 précisent l'incertitude des mesures présentées pour une configuration donnée.

Pour les régimes obtenus à partir des débits $Q_{inj} = (5 \text{ ml.h}^{-1} ; 10 \text{ ml.h}^{-1})$ en configuration verticale, les orientations des angles augmentent globalement avec le débit d'injection contrairement à la configuration horizontale où l'on observe une diminution. On pourrait donc supposer que les orientations des ramifications sont influencées par les effets des cellules convectives qui pourront se développer à l'intérieur des wormholes ou à l'interface zone dissoute/zone non dissoute. Cependant, aucune trace de ce développement n'a pas pu être mise en évidence et donc cette hypothèse n'a pas pu être vérifiée expérimentalement.

En ce qui concerne les régimes ramifiés (40 ml.h^{-1} ; 100 ml.h^{-1}), nous observons une augmentation en fonction du débit de l'angle α des ramifications en configuration horizontale et une baisse en configuration verticale. Comme selon la PVBT ou encore les autres descripteurs, les effets du contraste de masse volumique sont pratiquement négligeables au niveau de ce régime, cette tendance ne peut être attribuée qu'aux gradients de porosité qui vont favoriser la circulation du fluide à travers la zone partiellement dissoute.

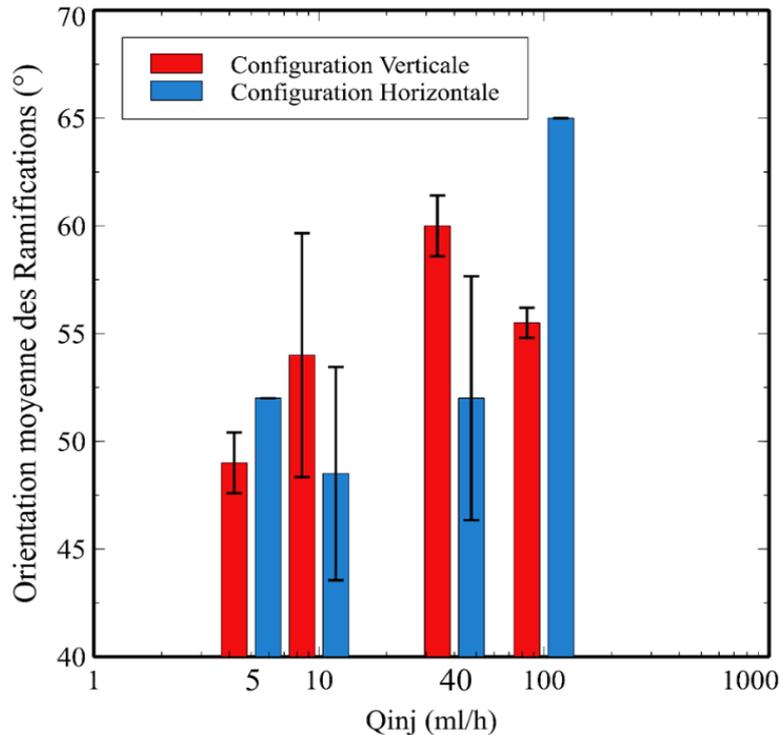


FIGURE 56. Orientation des ramifications en fonction du débit (configuration verticale & horizontale)

II.2- Distribution de la taille des pores par régimes

L'analyse de la distribution de la taille de pores à partir de l'option ImageJ « local thickness » (ou épaisseur locale) permet de compléter notre étude sur la description morphologique des différents régimes de dissolution. Le principe est basé sur l'occupation d'une sphère de diamètre maximum qui s'adapterait au volume de pores attribués, définie par des pixels. En d'autres termes, cette analyse des régimes de dissolution permettra d'identifier les « irrégularités » de la zone dissoute et par la même occasion de les quantifier. Il convient de souligner ici que, cette distribution pour l'ensemble des régimes dans les deux configurations sera présentée en pourcentage cumulé en fonction du diamètre de sphères (cm).

Bien que le cumul de la distribution de la taille des pores suit la distribution des surfaces dissoutes, ce que permet de valider notre démarche, il faut cependant noter que l'influence des ramifications et/ou des microrugosités peuvent fortement impacter la courbe de répartition des pores.

II.2.1- Distribution de la taille de pores des régimes diffusifs (compacts et coniques)

Pour ces régimes diffusifs (compacts & coniques), nous observons une forte disparité de la distribution de pores entre les deux configurations (Figure 57.a- pour le régime compact & Figure 58.a-58.c- pour le régime conique). Le régime compact présente environ 70% de pores d'un diamètre inférieur à 1 cm pour la configuration verticale contre 35% pour la configuration horizontale. Le diamètre le plus élevé est observé pour la configuration horizontale (1.66 cm) contre 0.97 cm et 1.53 cm pour la configuration verticale. Le fait que cette distribution soit beaucoup plus étendue en configuration horizontale semble, à la première vue, surprenant et contradictoire d'autant plus que sa surface dissoute « à la percée » est inférieure à celle de la configuration verticale (Figure 57.a). L'explication de cet aspect réside dans la faible interconnexion des sphères de même diamètre de la zone dissoute correspondant à la configuration verticale (Figure 57.b) et qui est forcément due aux irrégularités (rugosités) induites par le contraste de masse volumique.

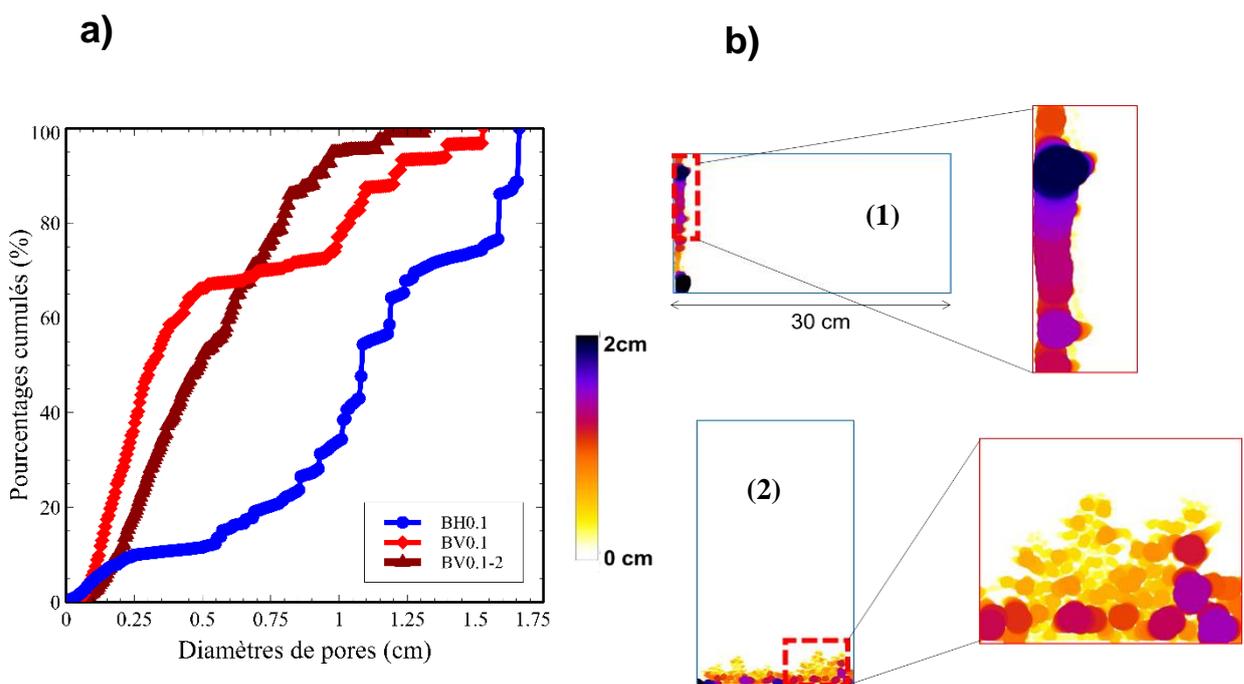
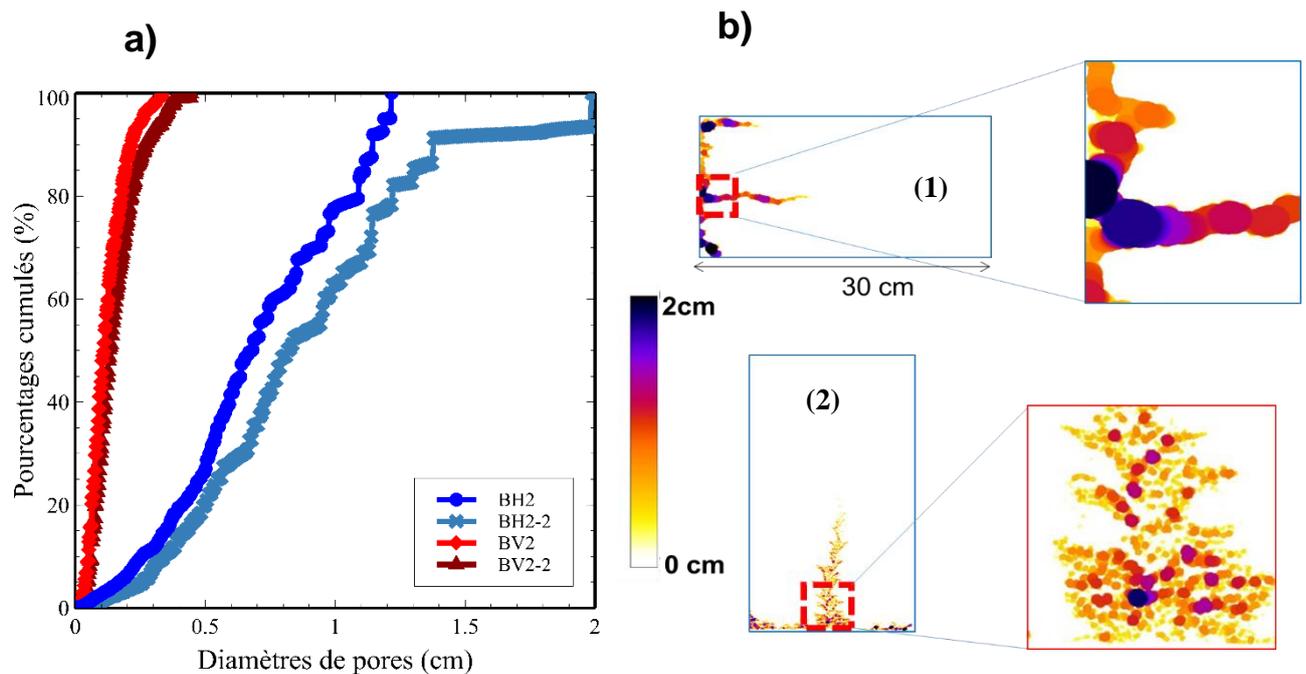


FIGURE 57.a) Distribution de la taille de pores pour le régime compact $Q_{inj} = 0.1 \text{ ml.h}^{-1}$; b) Représentation visuelle de l'ensemble de la structure poreuse avec zoom - (1) Configuration horizontale (BH0.1) et (2) Configuration verticale (BV0.1-2)

Quant au régime conique, le local thickness a été appliqué uniquement sur la partie totalement dissoute. Ainsi, la configuration verticale présente une faible répartition de la taille de pores contrairement à la configuration horizontale avec des distributions beaucoup plus étendues (Figure 58.a-58.c). En effet, nous observons que le mode, le diamètre moyen et le diamètre minimum en configuration horizontale sont doublés par rapport à la configuration verticale malgré le fait que la surface dissoute correspondant à la percée de la configuration verticale soit plus importante (cf. article dans la première partie). Par ailleurs, pour $Q_{inj} = 1 \text{ ml.h}^{-1}$, le pourcentage de pores ayant un diamètre inférieur à 1 cm est autour de 65% en configuration horizontale mais est supérieur à 90% en configuration verticale. Pour le débit $Q_{inj} = 2 \text{ ml.h}^{-1}$, tous les pores de la configuration verticale ont des diamètres inférieurs à 1 cm tandis que pour la configuration horizontale, on retrouve pratiquement un pourcentage du même ordre (entre 60% et 75%). Ce comportement indique, comme pour le régime compact, des fortes irrégularités de la surface dissoute pour la configuration verticale, irrégularités induites par le développement des cellules convectives sous l'effet du contraste de masse volumique. Il est intéressant de noter que si nous limitons la comparaison des expériences uniquement à ce descripteur, la répétabilité des expériences peut être considérée comme acceptable.



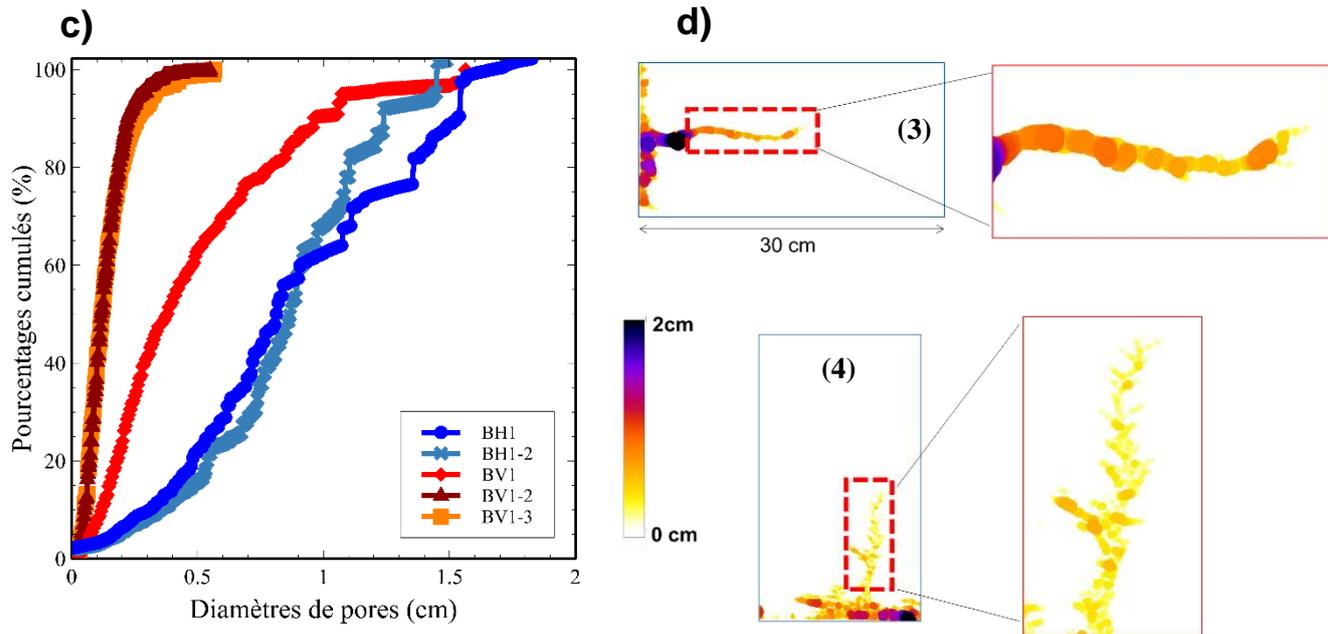


FIGURE 58. Distribution de la taille de pores pour le régime conique ; a) Graphe de distribution de la taille de pores pour le débit $Q_{inj} = 2 \text{ ml.h}^{-1}$; b) Images local thickness en configuration horizontale (1) (BH2) et verticale (2) (BV2) avec zoom $Q_{inj} = 2 \text{ ml.h}^{-1}$; c) Graphe de distribution de la taille de pores pour le débit $Q_{inj} = 1 \text{ ml.h}^{-1}$; d) Images local thickness en configuration horizontale (3) (BH1) et verticale (4) (BV1) avec zoom pour $Q_{inj} = 1 \text{ ml.h}^{-1}$

II.2.2- Distribution de la taille de pores des régimes convectifs (dominants, ramifiés)

La distribution de la taille de pores des régimes convectifs est particulièrement marquée par une faible disparité entre la configuration verticale et horizontale, de la même manière que les autres marqueurs morphologiques déjà présentés.

En effet, pour le régime dominant (Figure 59.a), malgré l'apparition et le développement des wormholes, nous observons une certaine homogénéité entre les deux configurations. Toutefois, si notre attention est portée sur BH10, sa distribution est légèrement décalée par rapport aux autres expériences. Ce décalage est dû, d'une part aux ramifications des wormholes qui présentent des tailles différentes mais également à l'influence induite par le gradient de porosité. Pour ce régime, les ramifications aussi bien en configuration verticale que horizontale se situent à un pourcentage cumulé de 80% et elles ont une épaisseur moyenne d'environ 0.7

cm. Par ailleurs, notons que l'écrasement des courbes de distribution dans leur partie supérieure bien visible pour la configuration horizontale BH10, témoigne d'une forte base dissoute. L'analyse de la distribution de la taille de pores pour ce régime ne révèle aucune différence pertinente pouvant témoigner d'un effet du contraste de masse volumique. Ces données fournissent plutôt des informations sur les similitudes des structures dans les deux configurations.

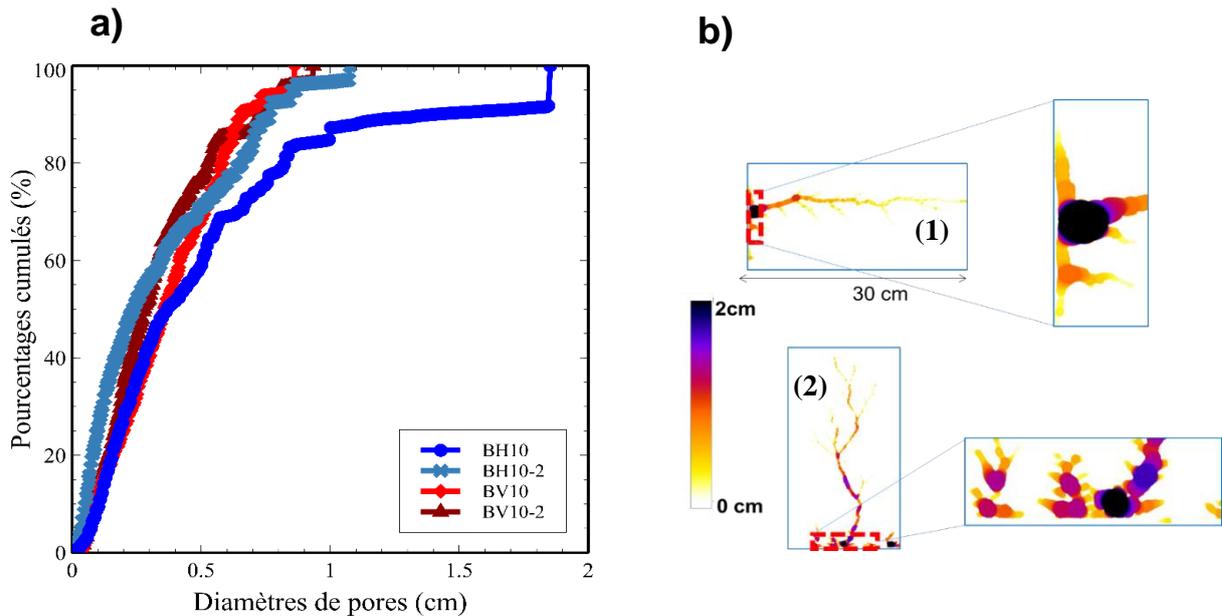


FIGURE 59. a) Distribution de la taille de pores pour le régime ramifié $Q_{inj} = 10 \text{ ml.h}^{-1}$; b) Représentation visuelle de l'ensemble de la structure poreuse avec zoom – Configuration horizontale (1) (BH10) et (2) Configuration verticale (2) (BV10)

Bien que le régime reste le même, l'augmentation du débit, e.g., $Q_{inj} = 40 \text{ ml.h}^{-1}$, entraîne une légère disparité de la distribution de la taille de pores entre 2 essais d'une même configuration (Figure 60.a). Cette disparité se retrouve de manière analogue à la fois en configuration horizontale et verticale. On notera par ailleurs, pour l'ensemble des essais, une rupture de pente de la distribution des tailles de pores. La distribution de taille de pores reflète donc deux la coexistence de deux modes, l'un autour de 0.15 cm associé à un écart-type plutôt resserré et représentant environ 80% des pores et le second intégrant les pores de diamètres plus importants, entre 0.4 et 0.6 cm, et plus étalé. Ces deux modes peuvent représenter le wormhole et sa base, plus étendue. Cependant, l'ensemble des observations décrites ici semblent relever

de la variabilité structurelle du milieu poreux et aucun effet du contraste de masse volumique n'est à signaler sur la distribution de la taille de pores.

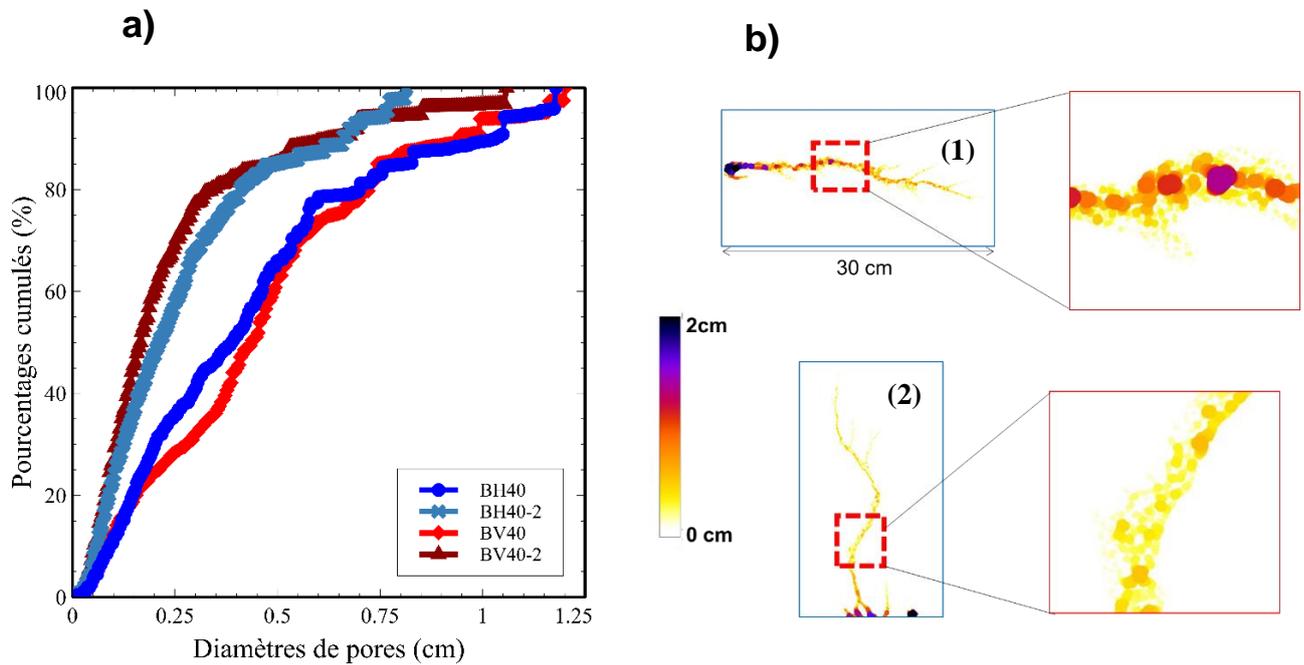


FIGURE 60. a) Distribution de la taille de pores pour le régime ramifié $Q_{inj} = 40 \text{ ml.h}^{-1}$; b) représentation visuelle de l'ensemble de la structure poreuse avec zoom – Configuration horizontale (BH40_2) (1) et Configuration verticale (BV40_2) (2)

Pour un débit d'injection plus élevé, i.e., $Q_{inj} = 100 \text{ ml.h}^{-1}$, les structures de dissolution sont quasi-similaires avec des distributions de tailles des pores relativement identiques (Figure 61). Toutefois, une des expériences appartenant à la configuration horizontale présente 10% des pores d'un diamètre supérieur à 1.65 cm. L'analyse plus poussée de cette expérience montre que ces forts diamètres correspondent aux diamètres des sphères générés à la base des wormholes. Autrement dit, les faibles différences entre les expériences sont localisées dans les zones proches de la surface d'injection et qui n'affectent pas réellement la distribution spatiale des wormholes.

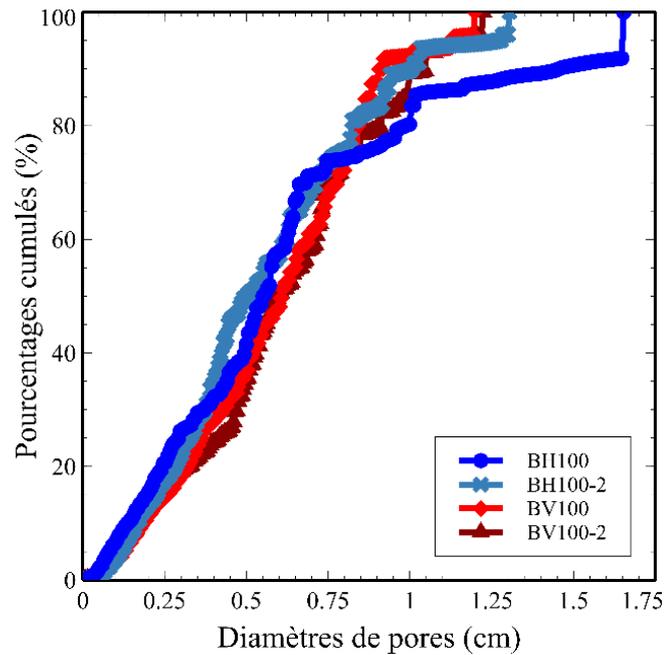


FIGURE 61. Distribution de la taille de pores pour le régime ramifié $Q_{inj} = 100 \text{ ml.h}^{-1}$

III- Simulations numériques de la dissolution couplée aux instabilités hydrodynamiques – Cas de la configuration 2D

III.1- Introduction

Afin de : (i) vérifier, d'une manière simplifiée, les conclusions expérimentales et (ii) mieux comprendre l'influence du contraste de masse volumique sur le développement des régimes de dissolution, des simulations numériques ont été effectuées. Ces simulations ont été menées en utilisant le logiciel COMSOL Multiphysics®. Il faut cependant noter que « vérifier les conclusions expérimentales » ne signifie pas reproduire les expériences menées sur notre modèle physique. L'objectif affiché porte particulièrement sur la pertinence des descripteurs morphologiques utilisés pour l'estimation du volume de pores à la percée (PVBT), et en particulier sur la surface et le périmètre. Les résultats des simulations exprimés en porosité seront analysés en utilisant la même méthodologie d'imagerie que pour les expériences. Ces résultats seront complétés par une analyse spatio-temporelle du champ des concentrations et/ou des vitesses.

Compte tenu de la difficulté rencontrée par les méthodes numériques existantes dans COMSOL pour résoudre le couplage dissolution/contraste de masse volumique, notre travail a été mené sur un domaine réduit, semblable à celui utilisé par (Golfier et al., 2002). En outre, nous avons utilisé pratiquement les mêmes paramètres hydrodynamiques, hydrodispersifs et chimiques que ces mêmes auteurs. Nous reviendrons sur ces aspects lors de la présentation des résultats.

III.2- Modèle numérique

Afin de simuler la dissolution du massif de sel, nous avons utilisé un modèle simplifié constitué par une phase solide notée conventionnellement par σ , et une phase fluide, la solution saline, percolant la matrice poreuse et notée par β . Nous supposons également que la réaction chimique sel/eau suit une cinétique du premier ordre. En outre, nous considérons que les fluctuations locales des concentrations de solutés dans la phase fluide peuvent être relativement importantes, de sorte que le transport de l'espèce dissoute dans le fluide environnant puisse modifier sa masse volumique. En revanche, les variations de viscosité sont ignorées. Sous ces hypothèses, la vitesse d'écoulement ne peut plus être résolue indépendamment du problème de transport et l'ensemble des équations d'équilibre pour la masse, la quantité de mouvement et les espèces dans la phase β peuvent être exprimées sous la forme :

$$\frac{\partial(\rho_\beta \varepsilon_\beta)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_\beta \varepsilon_\beta \mathbf{v}_\beta) = 0 \quad (1)$$

$$\frac{\mu_\beta}{\varepsilon_\beta} \nabla^2 \mathbf{v}_\beta - \nabla p_\beta + \rho_\beta \mathbf{g} - \mu_\beta \bar{\mathbf{K}}^{-1} \mathbf{v}_\beta = 0 \quad (2)$$

$$\frac{\partial(\rho_\beta \varepsilon_\beta \omega_{A\beta})}{\partial t} + \nabla \cdot (\mathbf{v}_\beta \rho_\beta \varepsilon_\beta \omega_{A\beta}) - \nabla \cdot [\rho_\beta \varepsilon_\beta D_m \nabla(\omega_{A\beta})] = \rho_\beta \alpha (\omega_{eq} - \omega_{A\beta}) \quad (3)$$

avec ρ_β la masse volumique du fluide, \mathbf{v}_β le vecteur vitesse du fluide, μ_β la viscosité dynamique, ε_β la fraction volumique de la phase β , i.e., la porosité, p_β la pression dans la phase β , $\bar{\mathbf{K}}$ le tenseur de perméabilité intrinsèque (tenseur diagonal), $\omega_{A\beta}$ la fraction massique de l'espèce dissoute A, i.e., ω_{NaCl} dans notre cas, ω_{eq} la fraction massique de l'espèce dissoute A à saturation, D_m le coefficient de diffusion moléculaire et α le coefficient de transfert de masse. Quant à la phase solide, l'équation du bilan de masse peut s'exprimer sous la forme (Luo et al., 2012) :

$$\frac{\partial \rho_\sigma}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho_\sigma \mathbf{v}_\sigma) = 0 \quad (4)$$

avec ρ_σ la masse volumique du solide, i.e., du sel, \mathbf{v}_σ le vecteur vitesse de la phase solide considéré souvent comme nul.

Compte tenu des objectifs affichés, nous proposons de diminuer le degré de complexité de notre problème en utilisant l'approximation dite de Boussinesq qui suppose que les fluctuations locales de masse volumique peuvent être négligées partout à l'exception du terme gravitaire. Bien que cette hypothèse soit souvent limitée pour des variations de masses volumiques inférieures à 1% (Bouquain et al., 2011; Oltéan et al., 2013) et donc critiquable dans ce cas, certaines études (e.g., Kolditz et al., 1998; Leijnse, 1989) ont cependant montré que les contrastes plus élevés n'entraînaient pas nécessairement des erreurs significatives (e.g., le problème d'Elder) sur la distribution spatiale des cellules contrarotatives. En outre, comme il s'agit d'un exercice numérique et afin de se rapprocher des simulations réalisées par (Golfier et al., 2002), nous avons utilisé une concentration de sel à saturation deux fois inférieure à la concentration réelle. Dans ces conditions et en considérant que : (i) le processus de dissolution est suffisamment lent et (ii) en utilisant, pour l'équation 4, les hypothèses et le développement proposés par (Golfier et al., 2002) ou (Luo et al., 2012), les équations (1) – (4) peuvent être réécrites sous la forme :

$$\nabla \cdot \mathbf{v}_\beta = 0 \quad (5)$$

$$\frac{\mu_\beta}{\varepsilon_\beta} \nabla^2 \mathbf{v}_\beta - \nabla p_\beta + \rho_\beta \mathbf{g} - \mu_\beta \bar{\mathbf{K}}^{-1} \mathbf{v}_\beta = 0 \quad (6)$$

$$\varepsilon_\beta \frac{\partial \omega_{A\beta}}{\partial t} + (\mathbf{v}_\beta \varepsilon_\beta) \nabla (\omega_{A\beta}) - \nabla \cdot [\varepsilon_\beta D_m \nabla (\omega_{A\beta})] = \alpha (\omega_{eq} - \omega_{A\beta}) \quad (7)$$

$$\frac{\partial \varepsilon_\beta}{\partial t} = \frac{\alpha \gamma \rho_\beta (\omega_{eq} - \omega_{A\beta})}{\rho_\sigma} \quad (8)$$

Il s'agit d'équations identiques, à un terme près, avec celles proposées et utilisées par (Golfier et al. 2002). γ représente le coefficient stoechiométrique. Nous rappelons que l'équation (8) est obtenue en utilisant également la relation $\varepsilon_\beta + \varepsilon_\sigma = 1$. La variation de la masse volumique est exprimée à travers l'équation d'état :

$$\rho_\beta = \rho_\beta^0 + \frac{\rho_{eq} - \rho_\beta^0}{\omega_{eq} - \omega_{A\beta}^0} (\omega_{A\beta} - \omega_{A\beta}^0) \quad (9)$$

avec ρ_{eq} la masse volumique de la phase β à saturation (avec nos hypothèses $\rho_{eq} = 1100 \text{ kg m}^{-3}$) et ρ_β^0 la masse volumique de la phase fluide à concentration $\omega_{A\beta}^0$.

Quant au domaine d'étude, les conditions aux limites et les paramètres utilisés, ils sont représentés dans la Figure 62 et le tableau 3.

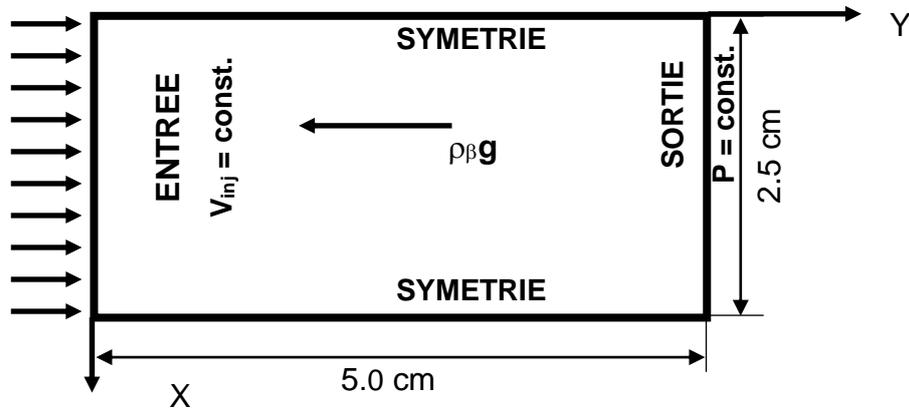


FIGURE 62. Représentation schématique du domaine d'étude

TABLEAU 3. Données numériques

$\omega_{e,q} = 0.14 [-]$	$D_m = 1.0 \cdot 10^{-09} [\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}]$
$\omega_{A\beta, inj} = 0 [-]$	$\mu = 1.0 \cdot 10^{-3} [\text{Pa} \cdot \text{s}]$
$\omega_{A\beta}^0 = 0 [-]$	$\alpha = 10 [\text{s}^{-1}]$
$\rho_\sigma = 2700 [\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}]$	$\gamma = 1.37 [-]$
$\rho_\beta^0 = 998.23 [\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}]$	$K_{xx} = K_{yy} = 1.0 \cdot 10^{-11} \pm \delta [\text{m}^2]$
$\varepsilon_\beta = 0.38 [-]$	$g = 9.81 [\text{m} \cdot \text{s}^{-2}]$

Il convient de préciser que le maillage généré est un maillage extrêmement fin de forme triangulaire dont les dimensions sont comprises entre 10^{-5} et $4 \cdot 10^{-4}$ m. Au total, 129 497 éléments sont générés dans le domaine dont 2 655 éléments de frontière. Pour la résolution, les pas de temps sont inférieurs à 1 seconde.

III.3- Résultats et discussions

Dans une première approche, notre objectif était de reproduire les régimes de dissolution sans prendre en compte le contraste de masse volumique. Par conséquent le terme $\rho_\beta g$ de l'équation de Darcy-Brinkman a été négligé. Les résultats, sous la forme des distributions spatiales des iso-concentrations réduites et porosités sont présentés sur la figure 63. Bien que le

domaine d'étude numérique soit relativement réduit (6 à 7 fois plus petit que le domaine expérimental), les résultats obtenus sont, à une exception près, en bon accord avec les résultats expérimentaux obtenus en configuration horizontale. L'exception porte sur l'expérience réalisée à fort Péclet pour laquelle la configuration expérimentale tend vers un régime plutôt ramifié tandis que d'un point de vue numérique nos résultats montrent un régime uniforme. D'ailleurs, les régimes simulés sont en bon accord avec ceux publiés par (Golfier et al., 2002) en respectant le diagramme de comportement $Pe - Da$.

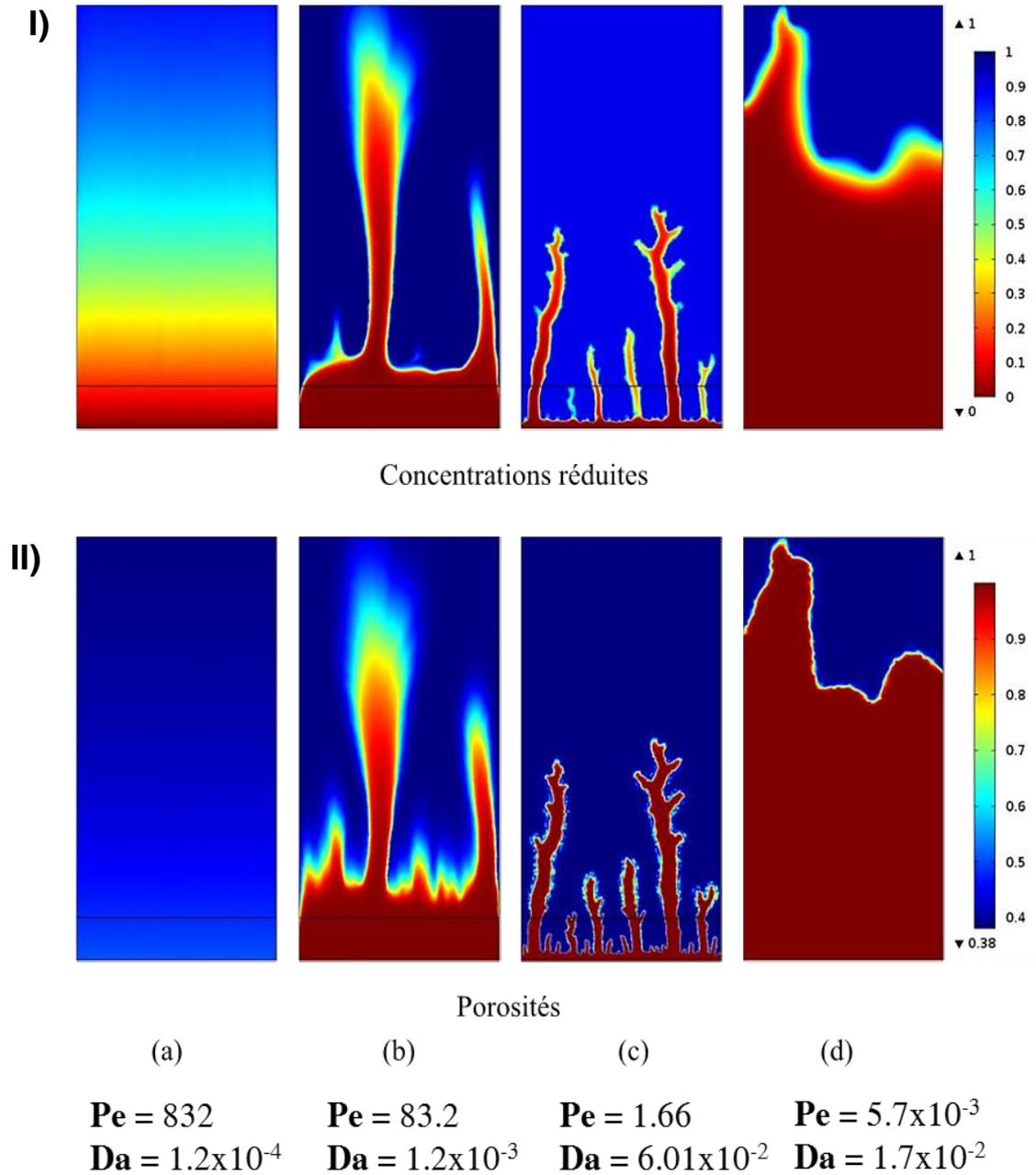


FIGURE 63. Régimes de dissolution – configuration horizontale – I) Concentrations réduites des différents régimes ; II) Porosité des différents régimes ; a) Uniforme ; b) Ramifié ; c) Dominant ; d) Conique)

Quant aux résultats numériques obtenus en tenant compte du contraste de masse volumique, ils sont représentés dans la Figure 64. Il faut cependant noter que, compte tenu des difficultés rencontrées lors de la simulation sous COMSOL Multiphysics® (pas de temps d'un dixième voire centième de seconde afin d'assurer la convergence pour une durée de plusieurs dizaines de milliers de secondes), pour le régime conique, uniquement le début de l'injection a pu être simulé et représenté. Dans ces conditions, le début du régime conique pourrait être assimilé au développement du régime compact et la comparaison pourrait être menée sur les premiers temps de la dissolution.

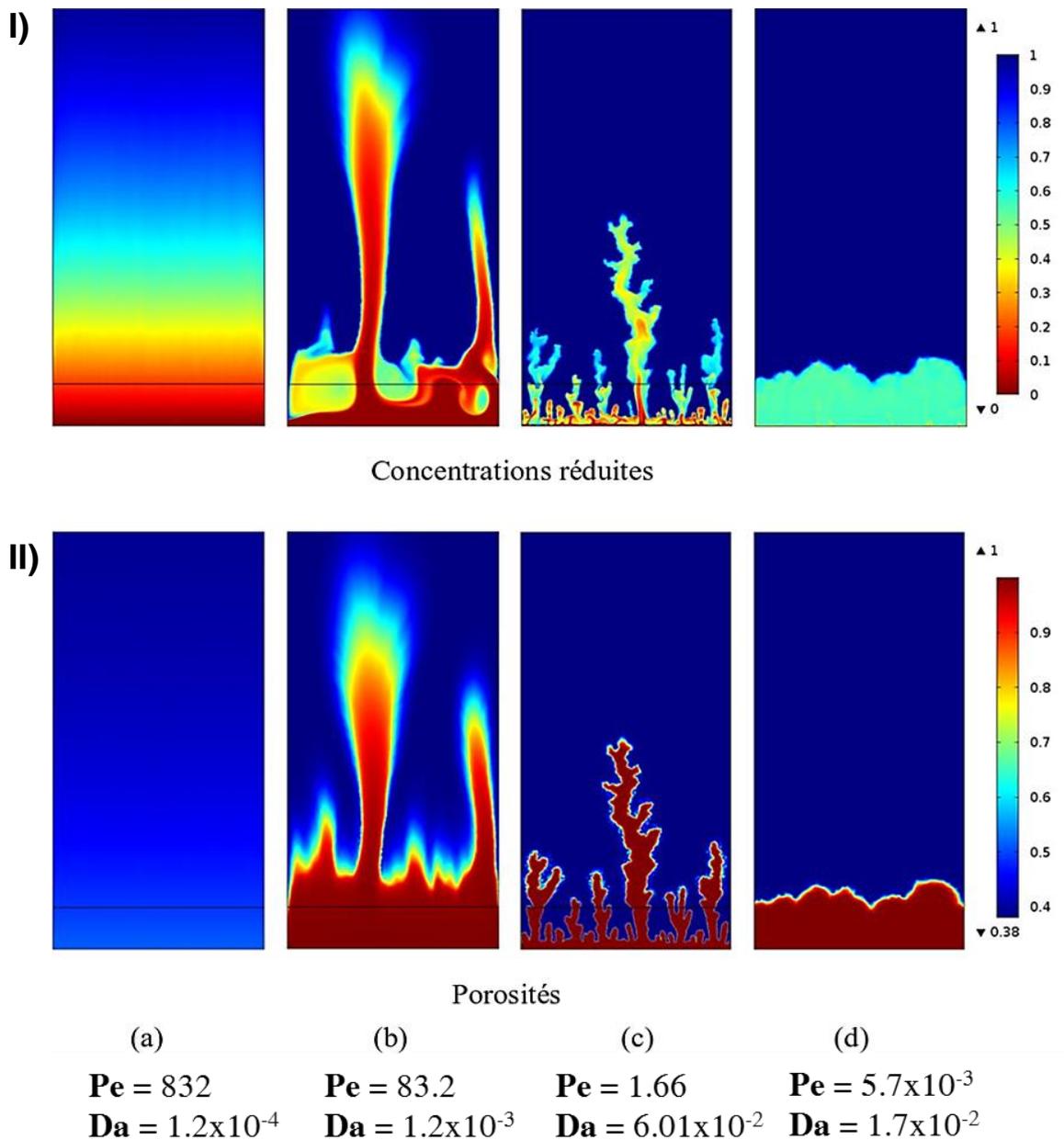


FIGURE 64. Régimes de dissolution – configuration verticale- I) Concentrations réduites des différents régimes ; II) Porosité des différents régimes - a) Uniforme ; b) Ramifié ; c) Dominant ; d) Compact

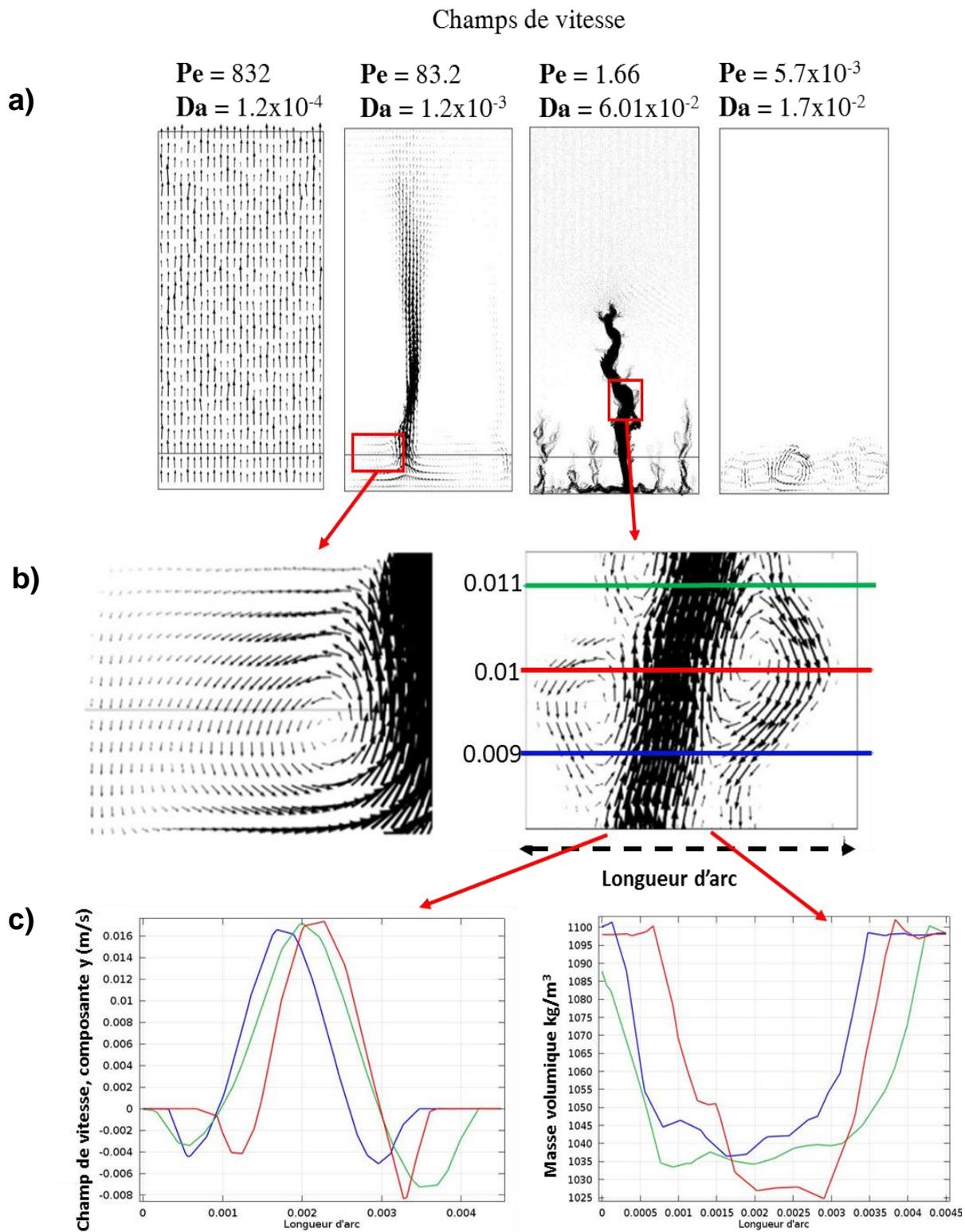


FIGURE 65. Champs de vitesses ; a) Champs de vitesses des différents régimes de dissolution ; b) Zoom montrant les cellules contrarotatives formées pour le régime ramifié à gauche et le régime

dominant à droite ; c) Sections montrant l'évolution des champs de vitesses à gauche et de la masse volumique à droite

Si notre analyse est portée uniquement sur la distribution spatiale de la porosité (Figures 63.I et 64.I), on constate que les conclusions expérimentales sont en accord avec les solutions numériques. Le contraste de masse volumique n'a aucun effet sur les régimes ramifié et uniforme. En revanche, si l'analyse est portée sur le champ des concentrations (Figures 63. II et 64.II), il ressort que ces conclusions resteraient valables uniquement pour le régime uniforme. Pour le régime ramifié, nous constatons dans la partie inférieure du domaine, i.e., dans la zone complètement dissoute, l'apparition et le développement de formes de type « têtes de champignons », figures caractéristiques d'un régime d'écoulement dominé par un contraste de masse volumique. Cette observation est d'ailleurs confirmée par la distribution spatiale du champ de vitesse qui met en évidence l'apparition et le développement des cellules contrarotatives dans ces zones (Figure 65-b, zoom).

Dans ces conditions, une question demeure : existe-t-il une influence des instabilités hydrodynamiques sur l'évolution spatio-temporelle de la zone dissoute ? La réponse à cette question peut être retrouvée à travers l'analyse de la Figure 66 où nous avons représenté l'évolution de la dynamique des deux descripteurs morphologiques utilisés pour l'interprétation des résultats expérimentaux, à savoir la surface dissoute et son périmètre. Notons que ces descripteurs morphologiques ont été déterminés en utilisant le même protocole que celui développé pour le programme expérimental, i.e., traitement des images simulées avec le logiciel ImageJ (Fiji). Ainsi, pour les surfaces dissoutes (Figure 66.a) les deux courbes sont pratiquement superposées tandis que pour les périmètres (Figure 66.b), la configuration verticale présente des valeurs légèrement supérieures. Cette différence pourrait être attribuée aux instabilités numériques développées à l'interface zone dissoute/zone non-dissoute. Dans ces conditions, nous pouvons conclure que les instabilités hydrodynamiques développées dans la partie inférieure du domaine n'affectent pas substantiellement l'évolution spatio-temporelle de la zone dissoute. Les conclusions expérimentales sont donc bien confirmées par les simulations numériques.

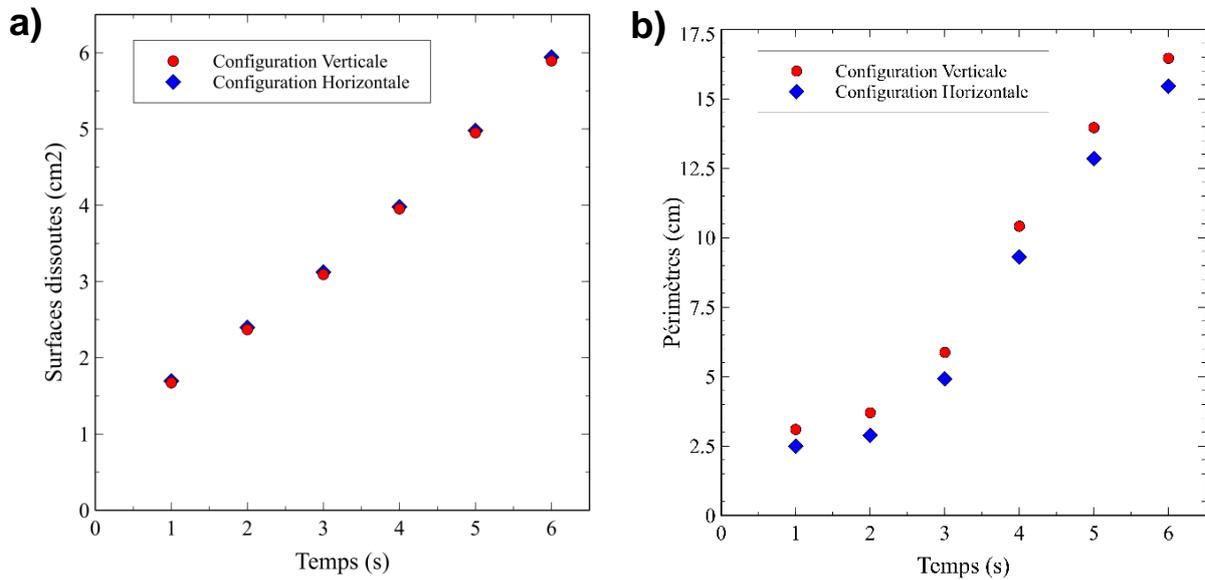


FIGURE 66. Descripteurs morphologiques – Régime ramifié – a) Surfaces dissoutes en fonction du temps ; b) Périmètres en fonction du temps

Quant à l'apparition et le développement des cellules convectives-contrarotatives, elles sont le résultat de la nouvelle distribution spatiale du champ des vitesses générée par la dissolution. Dans un premier temps, le front de dissolution reste relativement uniforme, autrement dit les wormholes sont peu ou pas développés. Dans ce cas, le champ de vitesse est globalement homogène avec des valeurs proches de la vitesse d'injection. En revanche, dès la mise en place du régime de dissolution et le développement des wormholes, la distribution spatiale du champ de vitesse est fortement perturbée. En effet, elle est caractérisée par des vitesses relativement élevées à l'intérieur des wormholes (presque 10 fois plus que la vitesse d'injection) et plus faibles dans les zones avoisinantes (25%, voire moins, de la vitesse d'injection) (Figure 67). Cette nouvelle répartition du champ des vitesses combinée avec la variation de la concentration et donc de la masse volumique à l'intérieur de la zone dissoute favorisent l'apparition d'un écoulement gravitaire et donc des cellules convectives contrarotatives.

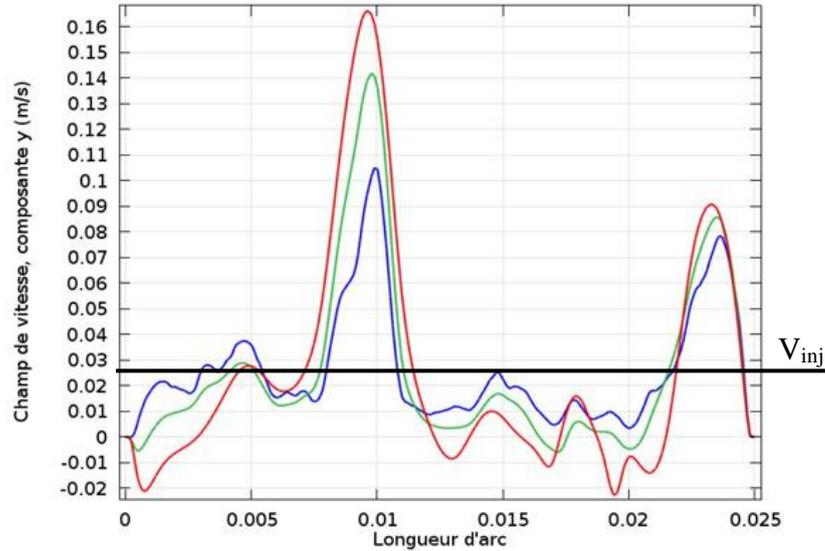


FIGURE 67. Distribution temporelle $t = 3.5s$ (couleur bleue), $t = 4.0s$ (couleur verte) et $t = 4.5 s$ (couleur rouge) de la vitesse verticale à la base des wormholes ($y = 0.006 m$)

Concernant le régime dominant, l'analyse de la distribution spatiale des porosités montre une nette différence entre la distribution spatiale des wormholes entre les deux configurations. Cette différence ne peut être attribuée qu'à l'influence du contraste de masse volumique sur le processus de dissolution (Figures 63.c et 64.c). Pour des temps relativement élevés, la configuration verticale est caractérisée par un seul doigt dominant tandis que la configuration horizontale présente deux doigts dominants. On notera par ailleurs, qu'alors que les deux milieux étaient identiques à l'état initial, ce n'est pas le même wormhole qui se développe dans les deux configurations. Plus précisément, en configuration verticale, c'est le wormhole le plus au centre qui se développe, alors qu'en configuration horizontale, les wormholes qui se développent sont plus excentrés. En revanche, la tortuosité, l'épaisseur et l'orientation des petites branches associées aux wormholes principaux diffèrent peu d'une configuration à l'autre. La seule différence plus visible réside dans la rugosité des wormholes, plus prononcée pour la configuration verticale. Cette particularité est forcément due à l'apparition et au développement des cellules convectives à l'intérieur des wormholes. En effet, comme pour le régime ramifié, l'apparition des wormholes entraîne un changement de distribution du champ des vitesses avec des vitesses relativement fortes à l'intérieur des wormholes principaux et relativement faibles au niveau des branches (Figure 65.c). Ce changement des vitesses entrainera une diminution de la concentration à l'intérieur du doigt et donc une augmentation locale du gradient de concentration et donc de masse volumique (Figure 65.c), favorable au déclenchement de l'écoulement gravitaire et donc des cellules convectives

contrarotatives. En prenant en compte une largeur moyenne des doigts d'environ 1 mm et une variation de masse volumique d'environ 70 kg.m^{-3} (Figures 64.c et 65.c) le nombre de Rayleigh local dépasse largement la valeur critique afférente à l'apparition et le développement des instabilités hydrodynamiques ($Ra_{\text{local}} > 10^{+6}$).

En revanche, malgré le développement dans les sections proches de la section d'injection de ces mêmes phénomènes et donc de l'apparition des figures caractéristiques aux écoulements de convection libre, la rugosité à l'interface zone dissoute/non-dissoute semble peu influencée par le contraste de masse volumique. Il est intéressant de noter que, si nous adaptons un traitement de données identiques à celui proposé pour le programme expérimental permettant de déterminer la surface dissoute et le périmètre (Figure 68), les résultats montrent que le contraste de masse volumique n'a pratiquement aucune influence sur la surface dissoute. En revanche, il réduit le périmètre ce qui évoque que la rugosité de la configuration horizontale soit supérieure à celle obtenue pour la configuration verticale, résultat en contradiction avec l'observation présentée ci-dessus et celle issue de l'analyse expérimentale. Cette incohérence pourrait être attribuée aux instabilités numériques dues aussi bien à la qualité du maillage qu'aux critères de convergence utilisés sous COMSOL Multiphysics® avec des conséquences sur la segmentation des images sous ImageJ.

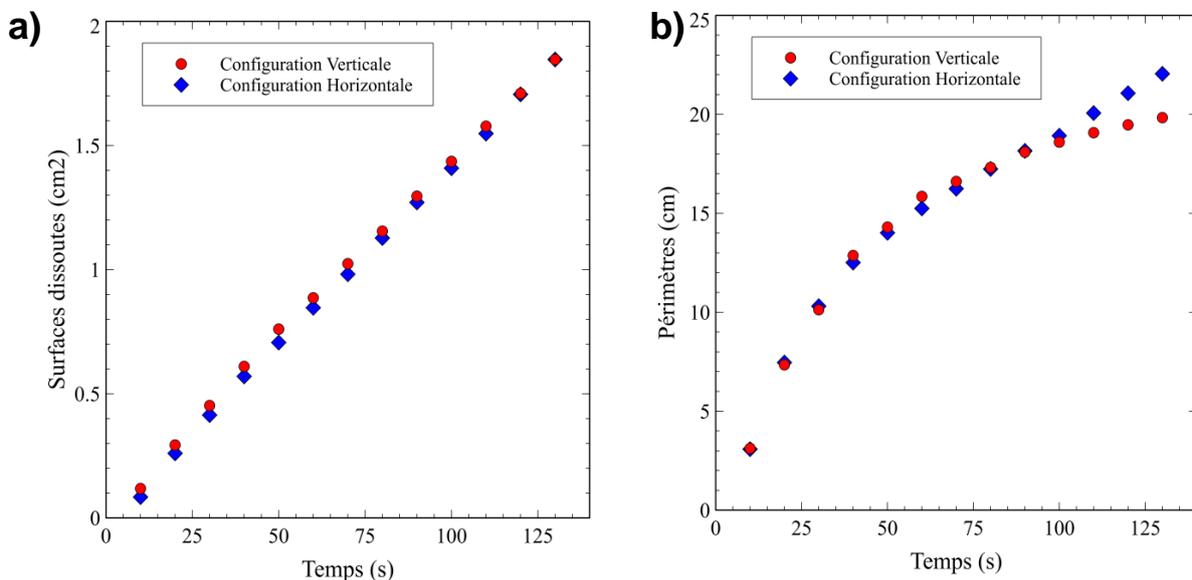


FIGURE 68. Descripteurs morphologiques – Régime dominant – a) Surfaces dissoutes en fonction du temps ; b) périmètres en fonction du temps

Finalement, la dernière simulation devait porter sur le régime conique, régime que nous avons simulé avec une valeur de α inférieure à celle utilisée pour les autres simulations.

Néanmoins, la simulation prenant en compte le contraste de masse volumique n'a pas pu être menée à son terme. Les différentes solutions étudiées et proposées sous COMSOL n'ont pas permis d'augmenter le pas de temps (environ 0.04 s) et de simuler ce régime plus de 10000 secondes (le temps de percée pour la configuration sans contraste de masse volumique est de 240000 s). Dans ces conditions les discussions seront portées sur la première partie de la simulation, partie analogue au régime compact.

Ainsi, dans la figure 69, nous avons présenté les résultats numériques en porosités obtenus pour la configuration « conique » pour les premières 10000 s, i.e., 5000 s et 10000 s. Selon cette figure, il ressort clairement que le contraste de masse volumique « accélère » l'avancée du front dissout. Cette observation est en désaccord avec l'observation expérimentale. En revanche, concernant la rugosité, les résultats numériques sont parfaitement en accord avec les résultats expérimentaux. La rugosité de la configuration verticale est nettement supérieure à celle de la configuration horizontale. Comme nous l'avons déjà mentionné dans la partie expérimentale, cette différence ne peut être attribuée qu'au contraste de masse volumique et donc aux instabilités hydrodynamiques. Cette hypothèse est d'ailleurs confirmée par l'analyse portée sur la distribution spatiale des concentrations. Ainsi, dès le début de la simulation (après environ 230 s, figure 70) dans la zone partiellement dissoute localisée proche de la section d'injection, nous pouvons constater une « déformation » du front traduite par l'apparition de « petites vagues » marquant l'apparition des instabilités hydrodynamiques. Leur longueur d'onde est pratiquement constante et vaut environ 0.5 mm. Sous l'effet de l'injection, la dynamique des vagues va évoluer vers des formes du type « têtes de champignons » avec des conséquences sur l'interface zone dissoute/zone non-dissoute. Une étude plus poussée sur cette configuration impliquant, entre autres, l'utilisation d'un maillage extrêmement fin aurait peut-être permis de déterminer, comme dans les travaux de Philippi et al (2019), la valeur de Rayleigh afférente à l'apparition des instabilités hydrodynamiques induites par le phénomène de dissolution.

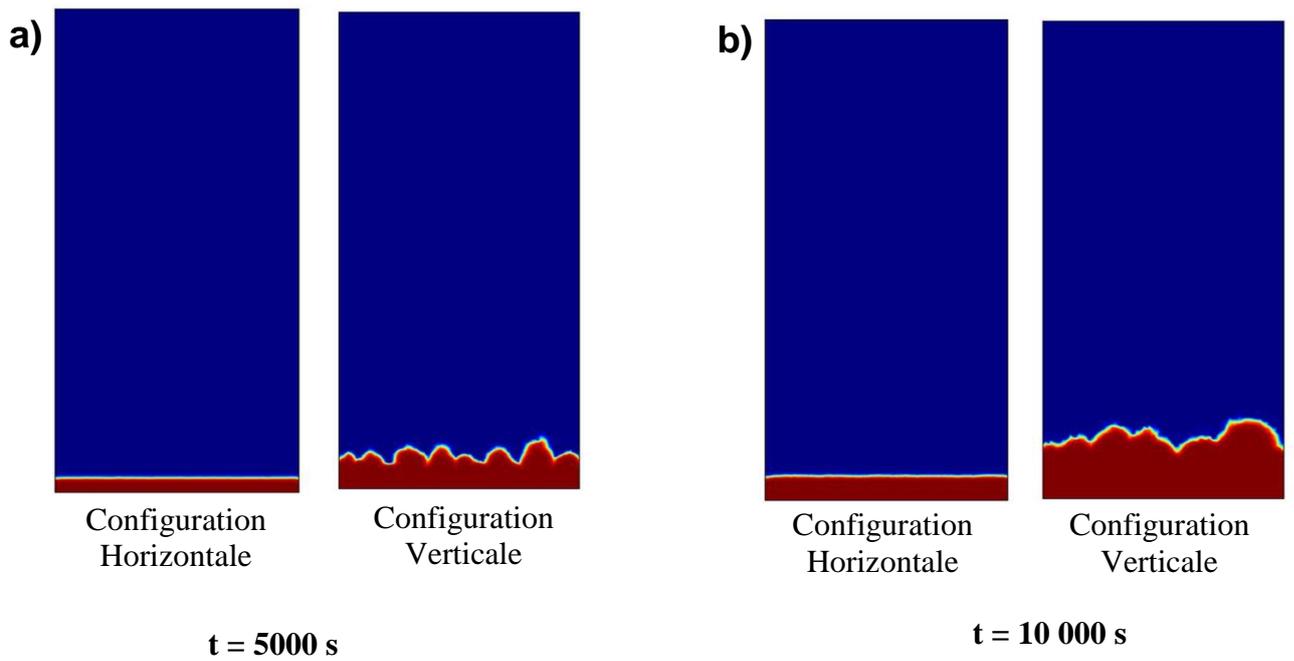


FIGURE 69. Résultats numériques des porosités des régimes compacts avec et sans contrastes de masse volumiques ; a) $t = 5000$ s ; b) $t = 10\ 000$ s

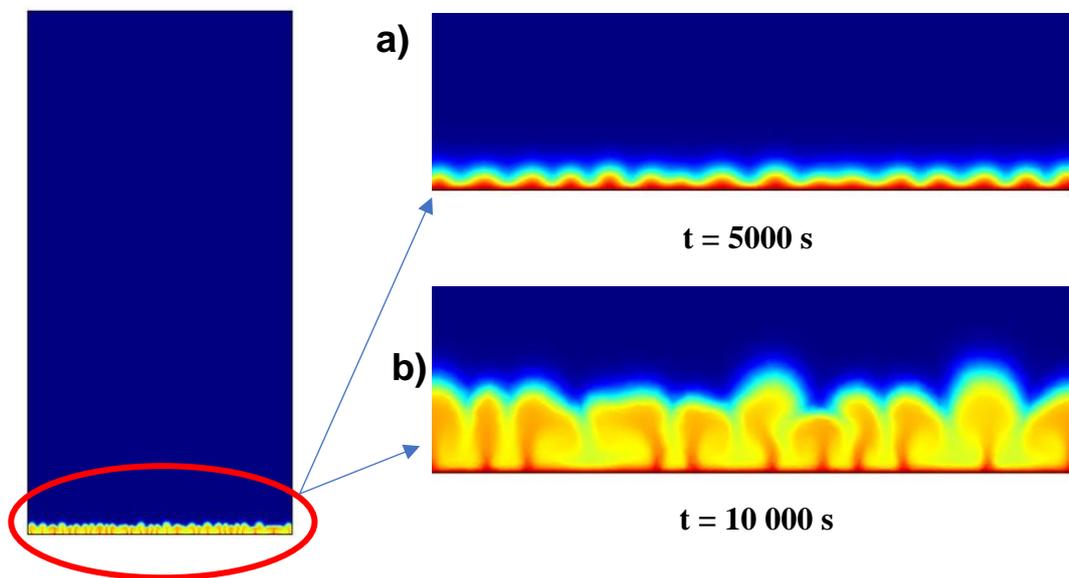


FIGURE 70. Évolution du champ de concentration montrant l'apparition des cellules contrarotatives des régimes compacts ; a) $t = 5000$ s ; b) $t = 10\ 000$ s

Par ailleurs, si notre attention est portée sur le PVBT (Figure 71), nous remarquons que la valeur afférente à la configuration verticale est inférieure à celle estimée pour le régime dominant. Ce résultat, qui est questionnable, est d'ailleurs en contradiction avec tous les travaux publiés dans la littérature. En outre, il est également en contradiction avec les expériences où le PVBT de la configuration verticale est inférieur à celui obtenu pour la configuration horizontale. En revanche, pour les régimes dominants et ramifiés, les PVBT sont pratiquement superposés et donc en parfait accord avec les résultats expérimentaux. Par conséquent, l'étude sur l'influence du contraste de masse volumique pour les régimes coniques et compacts doit être regardée comme une étude « en première approche » avec en perspective l'utilisation d'autres logiciels sur des maillages beaucoup plus fins ou encore la prise en compte de la variation du coefficient d'échange de masse en fonction de Péclet et/ou de la taille des pores (Golfier et al., 2002).

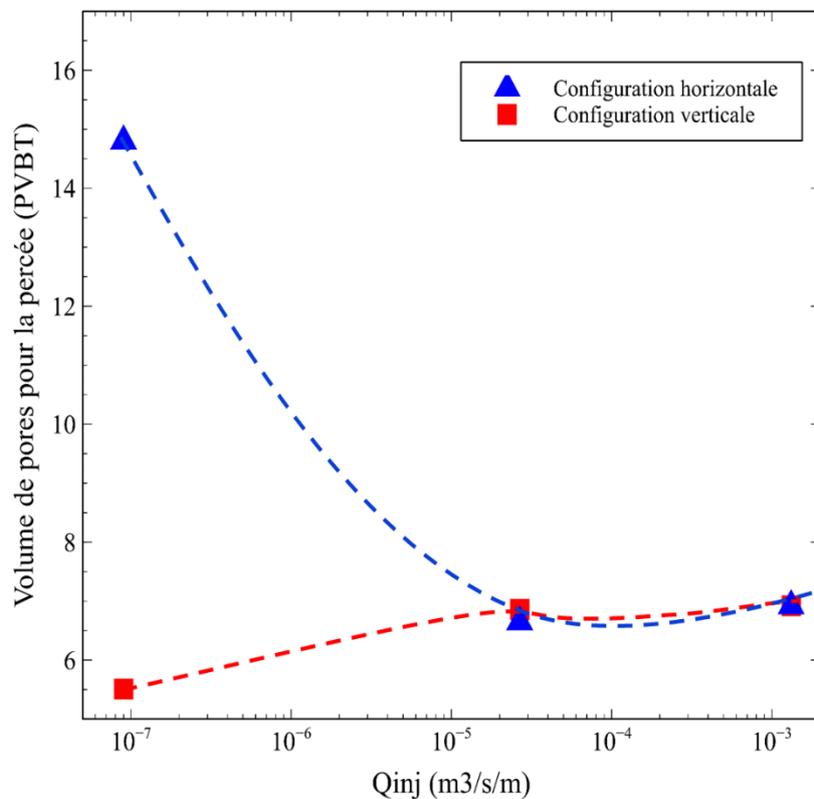


FIGURE 71. Graphe PVBT selon les résultats numériques

Conclusion partielle

Les résultats expérimentaux ont permis d'identifier différents effets du contraste de masse volumique selon le nombre de Richardson. Pour des forts nombres de Richardson, ce qui correspond pour notre étude aux régimes compacts et coniques, l'effet du contraste de masse volumique est particulièrement visible via la formation des rugosités. Ces rugosités ont pu être quantifiées via l'étude du périmètre, pouvant être rapproché de l'interface réactive, et sont potentiellement induites par le développement des cellules convectives contrarotatives. Cette observation est retrouvée lors de l'étude de la surface dissoute exprimée à travers la distribution de tailles de pores : celle de la configuration verticale est inférieure à celle correspondant à la configuration horizontale. Ces observations ont pu être confirmées par les résultats de la simulation numérique. Pour des Richardson intermédiaires à faibles, l'effet du contraste de masse volumique est, du point de vue des résultats expérimentaux, négligeable, ce qui justifie la superposition des courbes PVBT observées. La simulation numérique a, en effet, confirmé l'absence d'effet de ce contraste sur l'évolution de la porosité. En revanche, les résultats numériques ont permis de mettre en évidence un impact des effets gravitaires sur les champs de concentration, y compris pour des Richardson faibles à modérés. Ces conclusions peuvent être schématisées sous la forme présentée sur la figure 72.

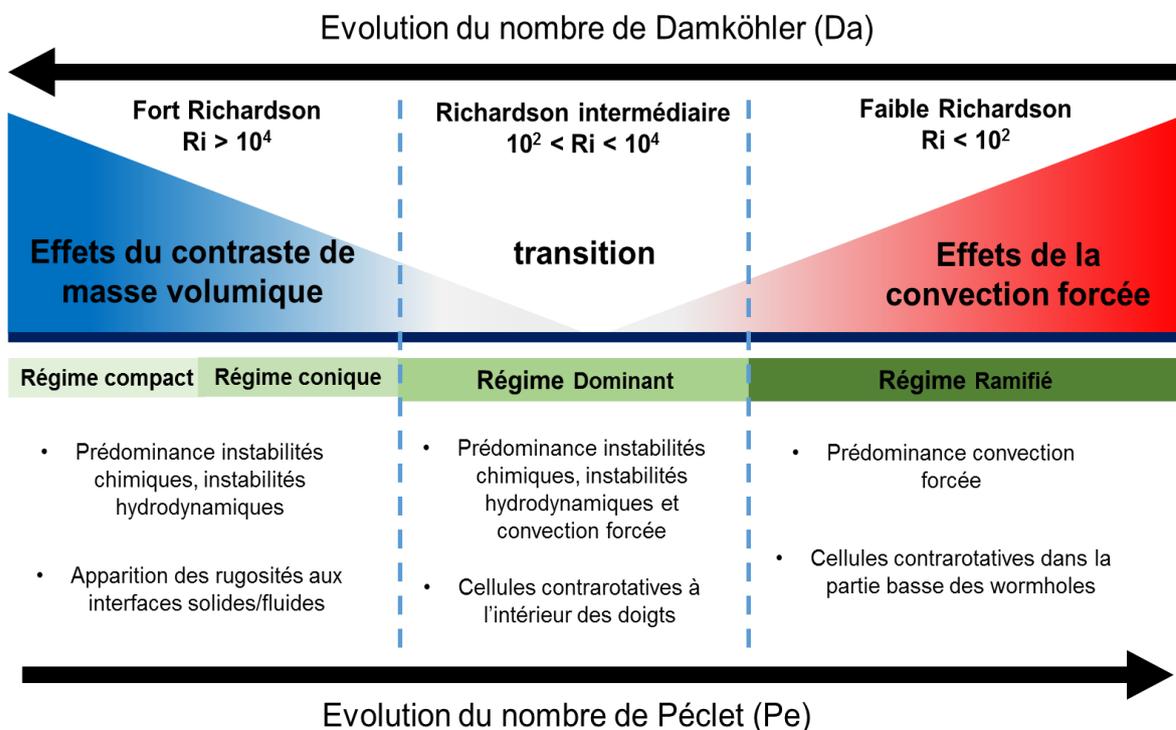


FIGURE 72. Schéma de Synthèse



CHAPITRE IV :

**RESULTATS ET DISCUSSIONS DES EFFETS DU
CONTRASTE DE MASSE VOLUME SUR LES
DIFFERENTS REGIMES DE DISSOLUTION
TRIDIMENSIONNELS (3D)**

CHAPITRE IV : RESULTATS ET DISCUSSIONS DES EFFETS DU CONTRASTE DE MASSE VOLUMIQUE SUR LES REGIMES DE DISSOLUTION TRIDIMENSIONNELS (3D)

I- Introduction

De manière analogue au chapitre précédent, nous allons à présent nous intéresser à l'étude de l'impact du contraste de masse volumique sur la dissolution d'une carotte (3D) constituée de sel compacté. Bien que dans la littérature nous retrouvons de nombreux travaux portant sur la dissolution d'une carotte rocheuse (en général des carbonates) par un fluide « acide » (Liu et al., 2017a; Maheshwari et al., 2013; Menke et al., 2016; Randi et al., 2017; Selvadurai et al., 2017), notons qu'aucune étude ne prend en compte l'influence du contraste de masse volumique. Il est également à noter que, contrairement à l'étude 2D, les effets gravitaires ne peuvent être négligés dans la configuration 3D. Dès lors, l'étude du contraste de masse volumique se fera selon deux approches :

- 1- Deux orientations de cellules : la première, dite « verticale », permet une injection dans le sens opposé au champ gravitationnel (i.e. du haut vers le bas) ; la seconde, dite « transversale », avec une cellule disposée horizontalement, a un sens d'injection orthogonal au champ gravitationnel.

Deux concentrations du fluide injecté : d'une part une injection à l'eau pure ($C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$ ($\rho_{inj} \approx 998.23 \text{ kg.m}^{-3}$)) qui génère un contraste maximal ($\Delta\rho^* = (\rho_{sat} - \rho_{inj}) \approx 200 \text{ kg.m}^{-3}$) et d'autre part une injection avec une eau sous-saturée en sel $C_{inj} = 160 \text{ g.l}^{-1}$ ($\rho_{inj} \approx 1097 \text{ kg.m}^{-3}$) et donc un contraste réduit ($\Delta\rho^* = (\rho_{sat} - \rho_{inj}) = 103 \text{ kg.m}^{-3}$).

Enfin, par analogie au cas 2D et de façon à observer les différents régimes de dissolution, plusieurs débits d'injection, entre 1 ml.h^{-1} et 1000 ml.h^{-1} , ont été utilisés.

Mentionnons qu'une limite est à souligner au niveau de la répétabilité de nos essais. À conditions identiques (orientation, débit et solution injectée), seul un essai a pu être réalisé. Ceci pourrait donc réduire la pertinence de nos conclusions. Toutefois, étant donné que le but est de faire ressortir les effets du contraste de masse volumique sur les mêmes régimes de dissolutions rencontrées dans la littérature, les conclusions et les observations obtenues dans cette partie de l'étude restent des données complémentaires à celles de la configuration 2D. Ces résultats devront cependant être confirmés par des essais supplémentaires.

II- Comparaison globale : régimes de dissolution et PVBT

Les nombres adimensionnels (Pe, Da et Ri) sont calculés avec les mêmes expressions que celles fournies pour l'étude 2D (cf. chapitre 3) en considérant une injection sur toute la base de l'éprouvette. Le but était de faire un rapprochement avec la classification 2D. De manière analogue à l'étude en cellule de type Hele-Shaw, les essais sont classifiés selon le diagramme Pe-Da (Golfier, 2002) avec un troisième axe représenté par (Ri). De façon à pouvoir comparer les deux solutions injectées, qui, pour un même débit, modifient uniquement le nombre de Richardson (i.e., Pe et Da restent constants), deux diagrammes sont proposés (Figure 73). La représentation graphique choisie entraîne un léger décalage vers le haut de l'axe Ri induit par le rapport des concentrations injectées (le rapport entre les Ri selon les concentrations injectées étant d'environ 2).

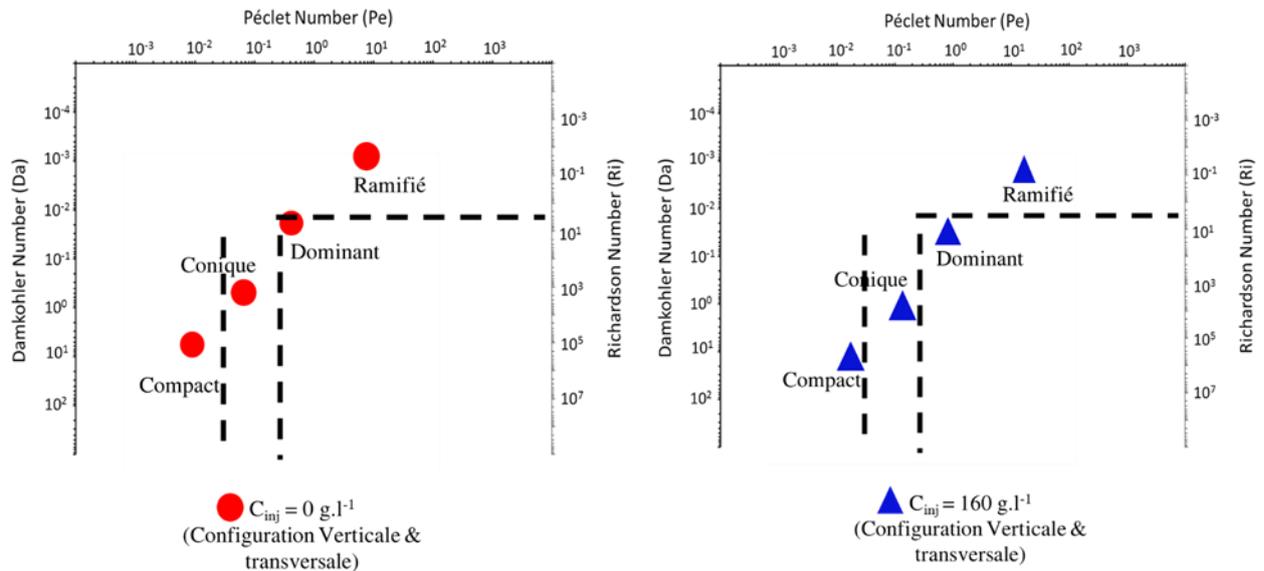


FIGURE 73. Classification des essais selon le diagramme proposé dans Golfier, 2002.

D'un point de vue qualitatif, les différents essais réalisés ont permis d'obtenir 4 régimes de dissolution suivant la configuration et la concentration fixées. Il s'agit d'ailleurs des mêmes régimes obtenus dans les études proposées antérieurement par (Fredd and Miller, 2000; Golfier, 2002; Hoefner and Fogler, 1988), i.e., compacts, coniques, dominants et ramifiés. Ce premier résultat indique que, en configuration tridimensionnelle (3D), les régimes de dissolution ne sont pas tributaires ni du contraste de masse volumique ni de l'orientation de l'éprouvette.

III- Analyse des données de pression

Comme indiqué dans le chapitre 2, notre modèle expérimental a été muni d'un capteur de pression inséré à l'entrée du système. Son rôle principal était de fournir, outre la variation temporelle de la pression qui est la seule variable dynamique de notre système, le temps de percée pour les expériences réalisées à forts débits d'injection. Les mesures de pression pour les différents essais sont présentées dans la Figure 75.

On notera dans un premier temps que la sensibilité du capteur est de l'ordre de 10 kPa. Ainsi, comme les mesures de pression pour les faibles débits, à savoir 1 ml.h⁻¹ et 10 ml.h⁻¹, sont de même ordre de grandeur que la sensibilité du capteur, elles ne peuvent pas être exploitées par la suite. Pour des forts débits, i.e., 100 ml.h⁻¹ et 1000 ml.h⁻¹, les courbes présentent les phases suivantes :

- Une phase « d'équilibre », précédant l'injection effective du fluide dans la carotte de sel et permettant de définir l'origine des pressions : le « 0 » ;
- Une phase de variation mais qui est cependant difficile à interpréter sans une connaissance approfondie de l'évolution spatio-temporelle de la zone dissoute et donc impossible à l'associer à des structures de dissolution spécifiques ;
- Une chute brutale de la pression suivie d'un palier à des pressions proches de la pression « d'équilibre ». Cette chute indique la percée de la carotte par le wormhole et permet donc de définir le temps de percée pour une expérience donnée (Figure 74).

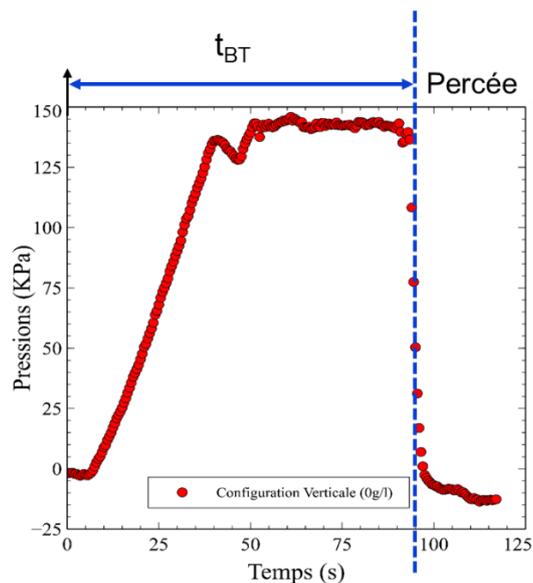


FIGURE 74. Illustration de la détermination des temps de percée sur les graphes de pressions

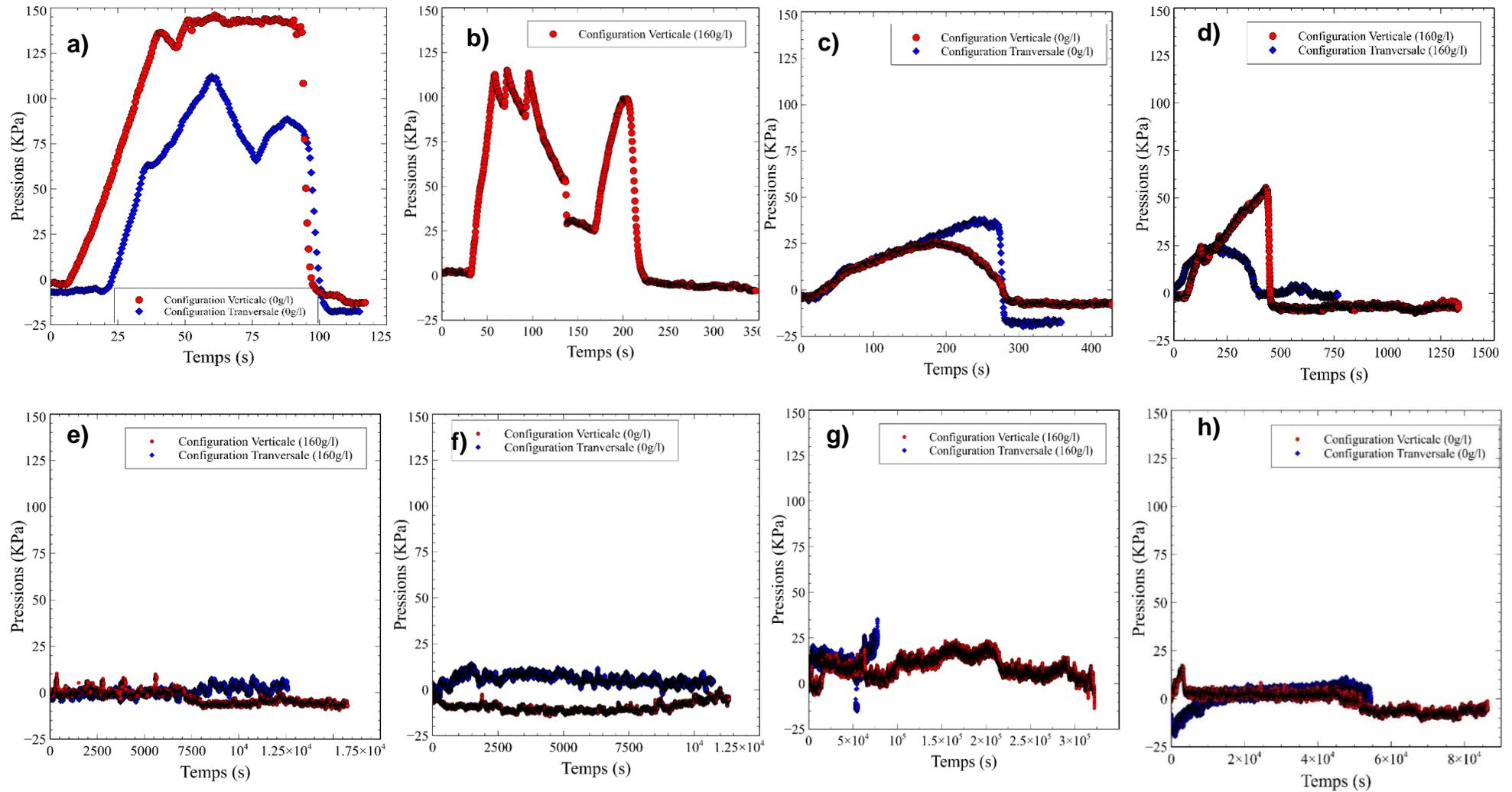


FIGURE 75. Graphes de Pressions ; a-b) $Q_{inj} = 1000 \text{ ml.h}^{-1}$; c-d) $Q_{inj} = 100 \text{ ml.h}^{-1}$; e-f) $Q_{inj} = 10 \text{ ml.h}^{-1}$; g-h) $Q_{inj} = 1 \text{ ml.h}^{-1}$

IV- Analyse des masses dissoutes à la percée

Nous avons essayé de compléter les données en pression avec une analyse portant sur la variation de la masse dissoute à la percée en fonction du débit d'injection. Selon la Figure 76, il ressort que : (i) la masse dissoute diminue avec l'augmentation du débit injecté, (ii) la configuration transversale présente globalement une masse dissoute plus importante que celle de la configuration verticale et (iii) plus la différence de concentration entre le fluide injecté et le fluide saturant le milieu est élevée, plus le pourcentage dissout est important.

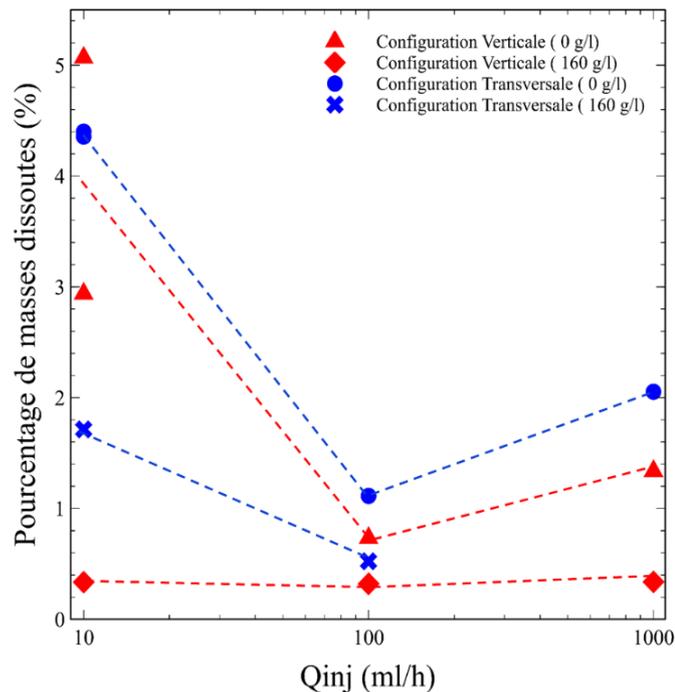


FIGURE 76. Pourcentage de masses dissoutes en fonction du débit d'injection

V- Analyse de la courbe PVBT

Afin de faire ressortir la différence entre nos différents essais, le volume de pores à la percée (PVBT) est analysé. Comme indiqué dans le paragraphe III, pour le calcul de ce paramètre, les temps de dissolution ont été estimés soit à partir des données de pression pour les régimes à fort débit d'injection (dominants, ramifiés), soit à partir de la durée d'injection pour les régimes à faibles débits (compacts & coniques). Les différentes courbes PVBT obtenues ont les mêmes comportements que ceux observés dans la littérature (Akanni, 2015; Bazin, 2000; Maheshwari, 2014; Xue et al., 2019) (Figure 77).

De manière analogue aux résultats en configuration 2D, les PVBT, à configuration différente et à solution injectée identique, pour les régimes convectifs (débits de 100 et 1000 ml.h⁻¹) sont quasi-superposés. À des plus faibles débits (10 ml.h⁻¹), où un réplica a été réalisé, on observe une différence entre configurations (atteignant 29% pour les concentrations $C_{inj} = 0$ g.l⁻¹ et 46% pour $C_{inj} = 160$ g.l⁻¹). Cette différence est cependant du même ordre que la variabilité entre les essais pour la configuration transverse. On notera cependant, une faible variabilité pour la configuration verticale. En effet, l'écart entre les résultats pour les deux orientations de carottes, sous le régime compact (débit de 1 ml.h⁻¹) est réduit à 5% pour la concentration $C_{inj} = 0$ g.l⁻¹ et 19% pour $C_{inj} = 160$ g.l⁻¹.

Par ailleurs, en faisant le rapprochement entre les deux concentrations injectées, nous constatons que les valeurs PVBT sont plus élevées pour la concentration $C_{inj} = 160$ g.l⁻¹ seulement pour les régimes compacts (1 ml.h⁻¹) et ramifiés (1000 ml.h⁻¹). En revanche, pour le régime conique, ces valeurs sont plus élevées au niveau de la concentration $C_{inj} = 0$ g.l⁻¹ et elles restent superposées pour le régime dominant.

En d'autres termes, les courbes PVBT semblent indiquer, pour le régime « conique » (10 ml.h⁻¹), un comportement analogue à la configuration 2D avec un déplacement vers « le haut » de la courbe PVBT quand le nombre de Richardson (et donc les effets de flottabilité) augmente. Par contre, en régime compact (1 ml.h⁻¹), les résultats en configuration 3D semblent indiquer un comportement inverse à ceux en régime « conique ». De tels résultats restent cependant soumis à la problématique de la répétabilité de l'essai et doivent donc être considérés avec prudence. En effet, la variabilité entre les valeurs PVBT, notamment au régime compact et coniques, pourrait aussi trouver une explication via la variabilité des propriétés intrinsèques du milieu.

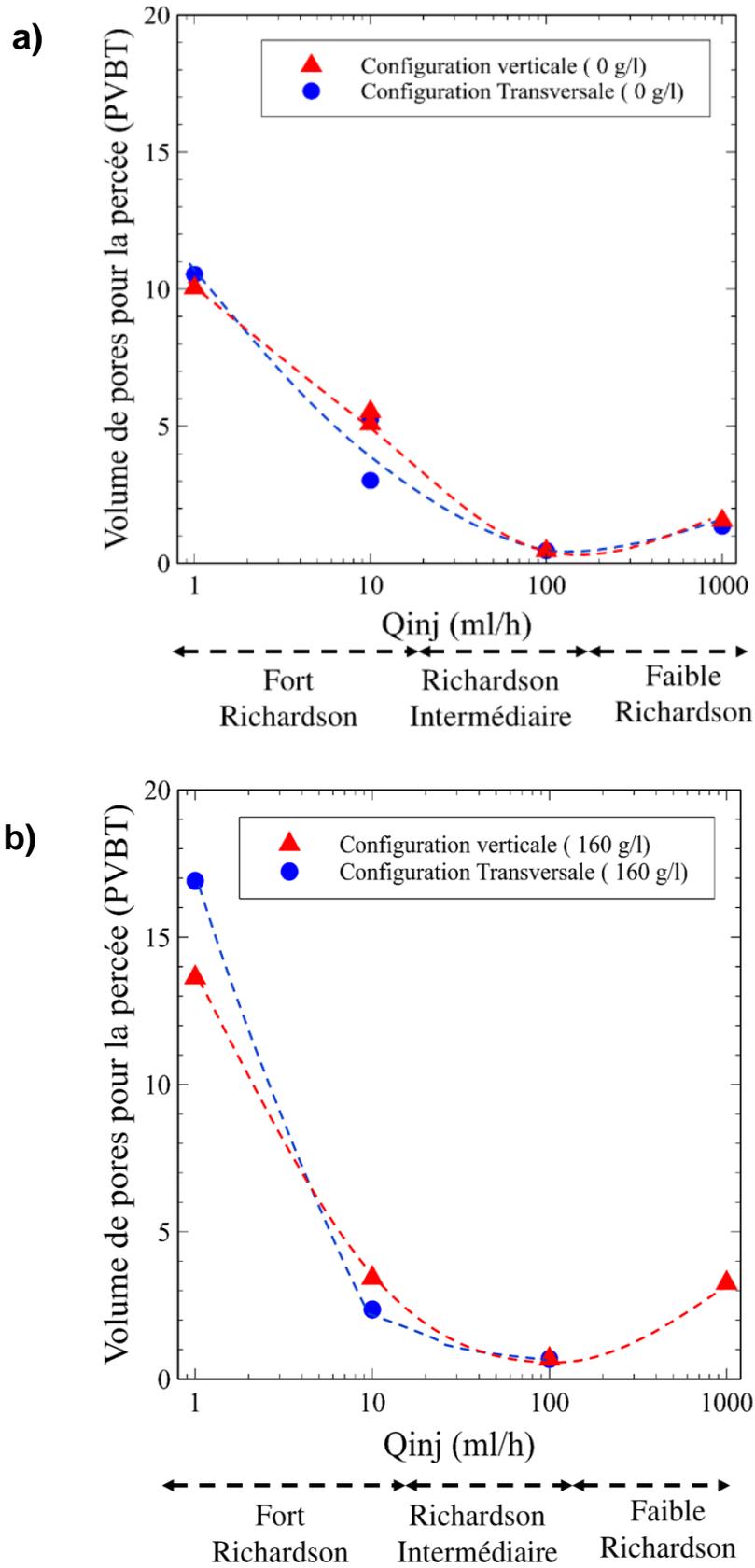


FIGURE 77. Courbes PVBT en configuration tridimensionnelle 3D; a) $C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$; b) $C_{inj} = 160 \text{ g.l}^{-1}$

Pour approfondir ces premières observations, nous poursuivons notre discussion autour de trois valeurs de Richardson conformément à la partie 2D. Ce sont :

- Le faible Richardson ($Ri < 10^{-2}$) correspondant au régime « ramifié » (débit de 1000 ml.h⁻¹)
- Le moyen Richardson ($10^{-2} < Ri < 10^{-1}$) équivalent au régime « dominant » (débit de 100 ml.h⁻¹)
- Le fort Richardson ($Ri > 10^{-1}$) correspondant aux régimes « compacts » et « coniques » (débits de 1 et 10 ml.h⁻¹)

VI- Analyse des descripteurs morphologiques

Notons que si les calculs des volumes dissous et l'analyse visuelle de l'image ont été réalisés sur l'image segmentée, les descripteurs morphologiques relatifs aux wormholes principaux et aux ramifications ont été calculés sur l'image traitée pour permettre le calcul du squelette. Dès lors, compte tenu de la dégradation de l'image et des processus successifs d'érosion / dilatation (cf chapitre 2), les valeurs obtenues ne peuvent être analysées que relativement les unes par rapport aux autres, le même traitement étant appliqué à toutes les images. En d'autres termes, pour ces descripteurs, on s'attachera à étudier les variations d'une configuration à l'autre et, pour une configuration donnée, la distribution des propriétés mesurées.

VI.1- Faible Richardson ($Ri < 10^{-2}$)

Les faibles nombres de Richardson comprennent les régimes obtenus à des débits d'injections $Q_{inj} = 1000 \text{ ml.h}^{-1}$ soit un $Pe = 10^1$ et $Da = 10^{-2}$ autrement dit les régimes à forte convection (ramifié). Ce régime, pour l'ensemble de nos essais, présente un fort développement de ramifications quelle que soit l'orientation de l'éprouvette (verticale & transversale) lors de la phase d'injection (Figure 78).

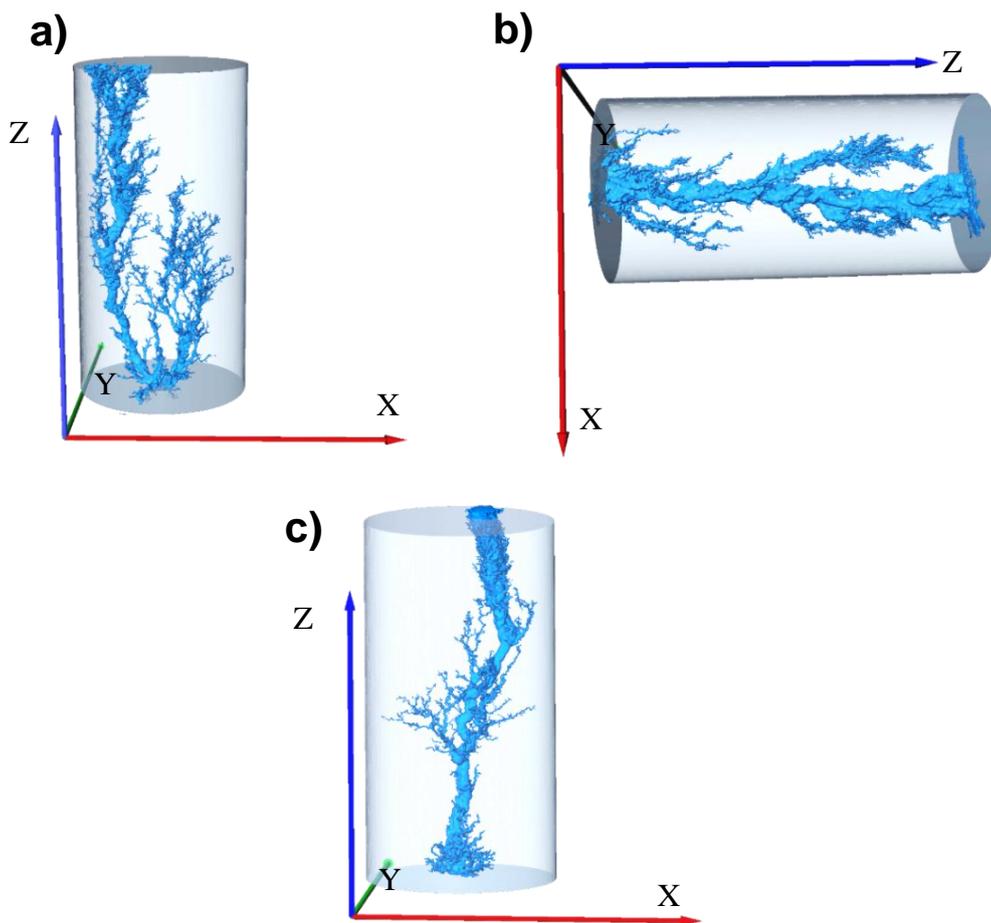


FIGURE 78. Données tomographiques segmentées montrant les différents régimes de dissolutions ramifiés - $Ri < 10^{-2}$; a) $C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$ en configuration verticale ; b) $C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$ en configuration transversale; c) $C_{inj} = 160 \text{ g.l}^{-1}$ en configuration verticale

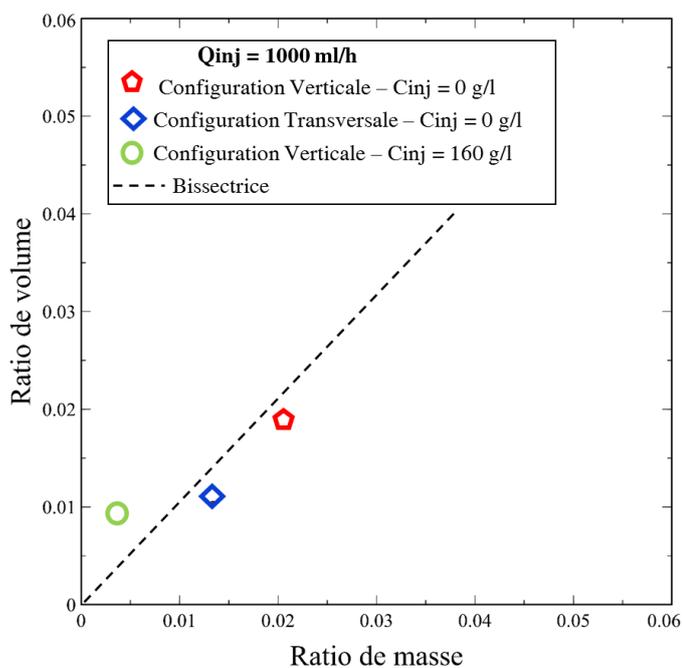


FIGURE 79. Ratio de volume en fonction du ratio de masse – $Ri < 10^{-2}$

Pour la concentration $C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$, le volume du réseau en configuration horizontale est de 3.43 cm^3 contre 1.91 cm^3 pour la configuration verticale. Quant à la concentration $C_{inj} = 160 \text{ g.l}^{-1}$ en configuration verticale, il est de 1.71 cm^3 . Ces données sont en accord avec la courbe de pourcentage de masse dissoute (cf Figure 76).

L'analyse de la branche principale des ramifications indique des valeurs des descripteurs morphologiques consignés dans le tableau 4. En ce qui concerne les ramifications, les figures 78 et 79, fournissent des informations complémentaires vis-à-vis de la tortuosité des ramifications (longueur curviligne vs longueur rectiligne) et de leur taille et forme (longueur vs rayon).

TABLEAU 4. Caractéristiques morphologiques - $Ri < 10^{-2}$

Configurations	$C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$ (NaCl)		$C_{inj} = 160 \text{ g.l}^{-1}$ (NaCl)
	Vertical	Transverse	Vertical
	Branche Principale		
Tortuosité	1.26	1.28	1.22
Rayon (cm)	0.08	0.14	0.13
	Ramifications		
Nombre de branches	2355	2554	1528
Angle moyen (°)	52	51.70	52

Tout d'abord, les essais réalisés avec une concentration $C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$ présentent des branches principales avec des tortuosités quasi-identiques pour les deux configurations (verticale & transversale) (voir tableau 4). Pour cette solution injectée, le rayon moyen est plus important dans le cas de la configuration transversale. En augmentant la concentration de $C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$ à $C_{inj} = 160 \text{ g.l}^{-1}$, une faible variation de la tortuosité de la branche principale en configuration verticale est observée (de l'ordre de 3%). Cependant, une augmentation de 38% du rayon de la branche principale est observée entre les deux essais verticaux.

Au niveau des ramifications, pour les essais avec $C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$, la différence du nombre de ramifications entre les deux orientations n'est que de 7%. Pour la concentration $C_{inj} = 160 \text{ g.l}^{-1}$, on observe une forte baisse du nombre de ramifications (aussi observable sur l'image, Figure 78.c) soit une différence de 54% par rapport à $C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$ en configuration verticale. Les angles moyens des ramifications par rapport à l'axe Ox ne montrent aucune différence entre les différents essais.

Par ailleurs, en représentant la longueur curviligne en fonction de la longueur rectiligne, nous observons une tendance identique (Figure 80) avec des valeurs de tortuosité moyenne comprises entre 1.09 et 6.45 pour les ramifications et des valeurs moyennes comprises entre 1.14 et 1.2 pour les différents essais. À cet effet, nous pouvons conclure que la tortuosité des différentes ramifications est également peu influencée par le contraste de masse volumique pour ce régime de dissolution.

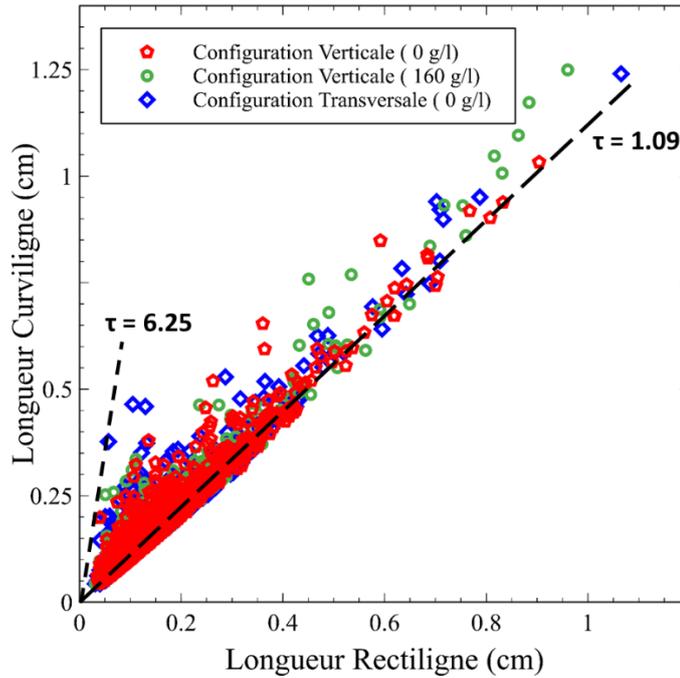


FIGURE 80. Longueur curviligne en fonction de la longueur rectiligne - $Ri < 10^{-2}$

La figure 81 montre l'évolution du volume des ramifications en fonction de leur rayon. Dans un premier temps, on notera une forte similarité entre les résultats des deux essais en configurations verticales (à 0g.l^{-1} et 160g.l^{-1}). Les données des 3 essais peuvent être approchées par une loi puissance avec un coefficient de l'ordre de 2.2. Ce coefficient, proche de 2, est cohérent avec la forme tubulaire des branches. La différence la plus notable se situe entre les données correspondant à la configuration verticale (quelle que soit la solution injectée) et celles concernant la configuration transversale. En effet, en configuration transversale, il existe des ramifications de plus grandes tailles que pour la configuration verticale entraînant une emprise du jeu de données plus importante (Figure 81).

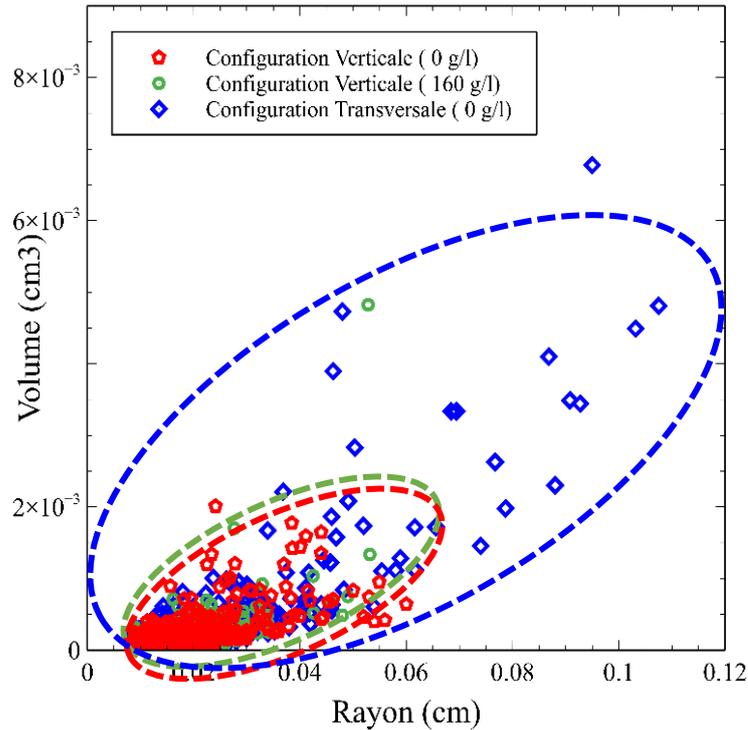


FIGURE 81. Volume en fonction du rayon $Ri < 10^{-2}$

VI.2- Richardson moyen ($10^{-2} < Ri < 10^{-1}$)

Le Richardson intermédiaire (débit de 100 ml.h^{-1}) correspond au régime dominant. Ce régime est marqué par le développement d'un doigt principal avec des ramifications plus ou moins importantes. De même, une compétition entre wormholes est observée pour ce régime et est marquée par l'apparition d'un wormhole secondaire (Figure 82). Particulièrement pour $C_{inj} = 160 \text{ g.l}^{-1}$, nous observons la compétition de 3 branches (Figure 82.d).

Le volume total dissous pour $C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$ en configuration transversale est de 1.68 cm^3 contre 1.11 cm^3 pour la configuration verticale soit une différence de 51%. Cependant, en augmentant la concentration injectée ($C_{inj} = 160 \text{ g.l}^{-1}$), nous observons que la configuration verticale possède un volume plus élevé estimé à 1.34 cm^3 contre 1.09 cm^3 pour la configuration transversale (différence de 23%). Similairement au débit de 1000 ml.h^{-1} , on observe une bonne cohérence des données des volumes et de masses dissous avec une légère surestimation du volume pour les concentrations injectées de 160 g.l^{-1} et une sous-estimation pour les concentrations de 0 g.l^{-1} .

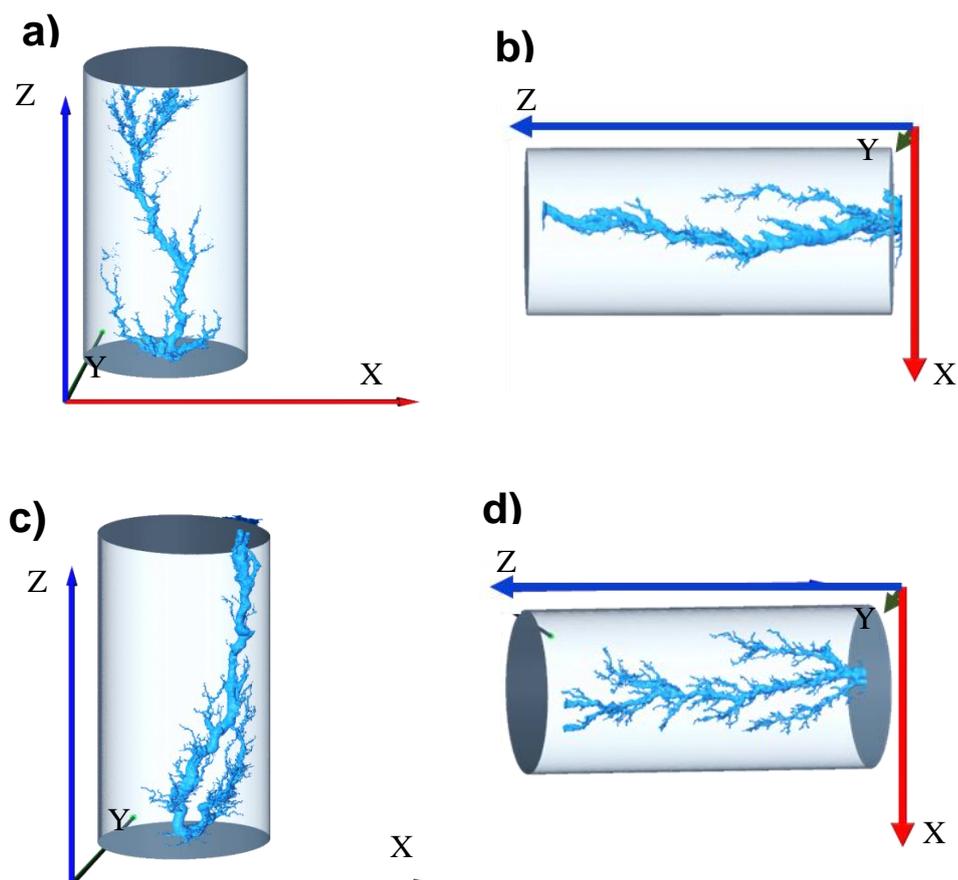


FIGURE 82. Données tomographiques segmentées montrant les différents Régimes de dissolutions dominants - $10^{-2} < Ri < 10^{-1}$; a) $C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$ en configuration vertical; b) $C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$ en configuration horizontale; c) $C_{inj} = 160 \text{ g.l}^{-1}$ en configuration verticale ; d) $C_{inj} = 160 \text{ g.l}^{-1}$ en configuration horizontale

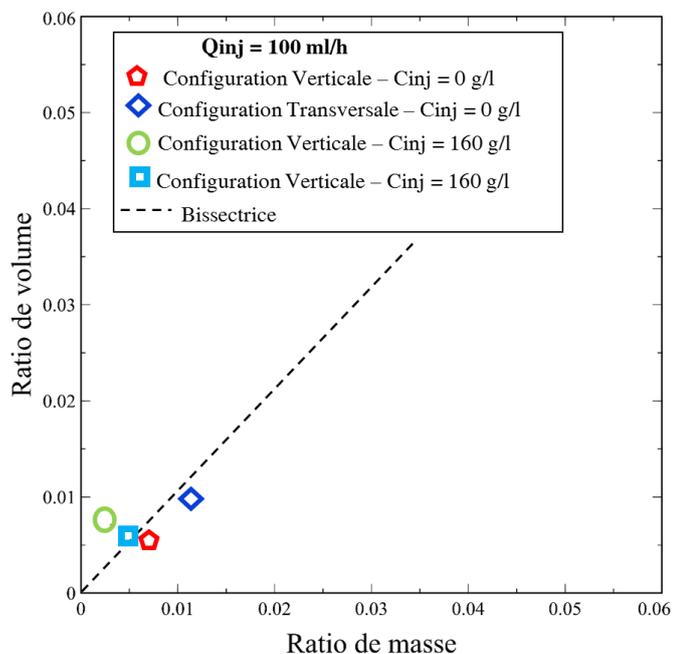


FIGURE 83. Ratio de volume en fonction du ratio de masse - $10^{-2} < Ri < 10^{-1}$

Les données morphologiques de la branche principale et des ramifications sont résumées dans le tableau 5 (Figure 82 et 83).

TABLEAU 5. Caractéristiques morphologiques – $10^{-2} < Ri < 10^{-1}$

Configurations	$C_{inj} = 0\text{g.l}^{-1}$ (NaCl)		$C_{inj} = 160\text{g.l}^{-1}$ (NaCl)	
	Vertical	Transverse	Vertical	Transverse
	Branche Principale			
Tortuosité	1.19	1.20	1.45	1.16
Rayon (cm)	0.088	0.11	0.097	0.087
	Ramifications			
Nombre de branches	420	340	300	897
Angle moyen (°)	51	48	51	53

En ce qui concerne les essais réalisés avec la concentration $C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$, la tortuosité et le rayon des branches principales restent quasi-identiques (voir tableau 5). Pour la concentration $C_{inj} = 160 \text{ g.l}^{-1}$, nous constatons une tortuosité relativement forte de la branche principale pour la configuration verticale. En revanche celle de la configuration transversale reste sensiblement identique aux essais de la concentration $C_{inj} = 0\text{g.l}^{-1}$.

Quant aux ramifications, on notera tout d'abord qu'elles sont en nombres significativement inférieurs aux valeurs obtenues avec un débit de 1000 ml.h^{-1} , ce qui tend à appuyer la classification en régime dominant vs ramifié. Les ramifications sont plus abondantes en configuration verticale soit une différence de 19% par rapport à la configuration transversale pour la concentration $C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$. En revanche, pour la concentration $C_{inj} = 160 \text{ g.l}^{-1}$, le nombre de ramifications est significativement plus important en configuration transversale (une différence de 60% avec la verticale). Quant aux angles des ramifications par rapport à l'axe Ox , ils montrent des valeurs identiques pour la configuration verticale mais différent en configuration transversale. Entre les essais d'une concentration identique, les valeurs diffèrent de 2 à 3°.

Par ailleurs, la représentation de la longueur curviligne en fonction de la longueur rectiligne (Figure 84) montre une variation de tortuosité des ramifications comprise entre 1.05 et 5.11 avec des valeurs de tortuosités moyennes comprises entre 1.15 et 1.28. Au niveau de la concentration $C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$, la tortuosité moyenne est quasi-identique pour les deux configurations tandis que pour les essais $C_{inj} = 160 \text{ g.l}^{-1}$, la différence est de 11% entre les deux

configurations. Les ramifications de l'essai vertical avec $C_{inj} = 160 \text{ g.l}^{-1}$ sont donc, en moyenne, les plus tortueuses.

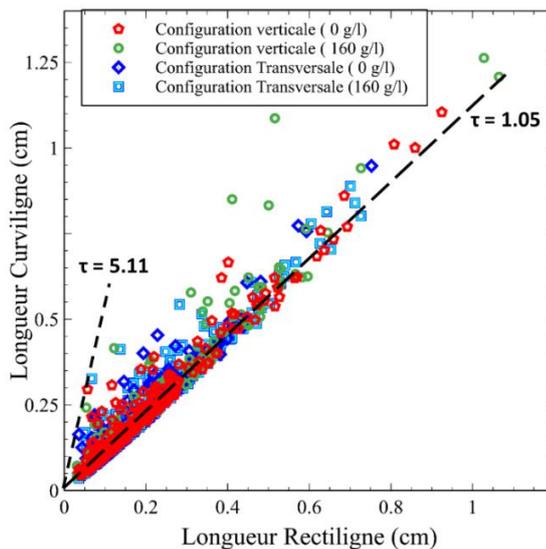


FIGURE 84. Longueur curviligne en fonction de la longueur rectiligne – $10^{-2} < Ri < 10^{-1}$

De même, en représentant les volumes des ramifications en fonction de leurs rayons, nous constatons que le coefficient le plus élevé est observé pour la concentration $C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$ en configuration transversale (valeur de 2.8). On notera par ailleurs, pour cette expérience, des ramifications de plus grandes tailles (rayon et volume associé). Ces observations sont cohérentes avec l'existence d'une compétition entre plusieurs wormholes et, donc, du développement de plusieurs wormholes de grande taille. Les autres coefficients pour les autres essais sont quasi-identiques avec des valeurs autour de 2.15. (Voir la distribution sur la Figure 85).

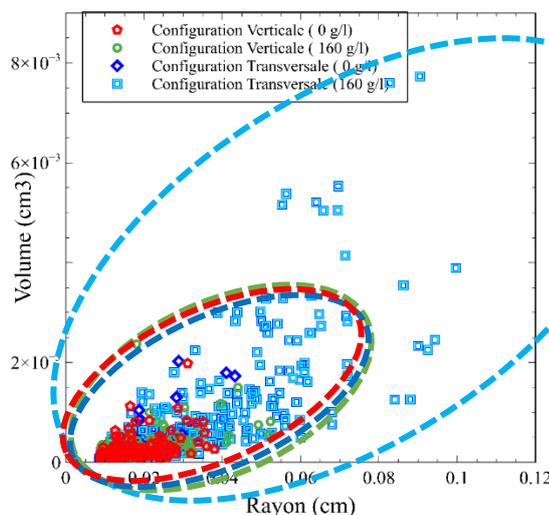


FIGURE 85. Volume en fonction du rayon $10^{-2} < Ri < 10^{-1}$

VI.3- Fort Richardson ($Ri > 10^{-1}$)

Les forts Richardson concernent les régimes compacts et coniques correspondant aux faibles Péclet et aux forts Damköhler. Les régimes compacts fournissent peu d'informations compte tenu de leurs faibles volumes dissouts (voir des exemples sur la Figure 87).

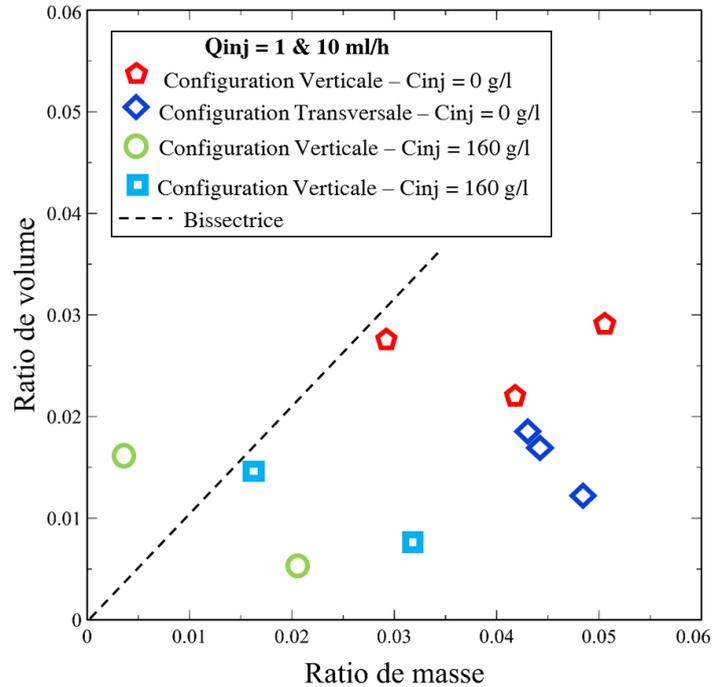


FIGURE 86. Ratio de volume en fonction du ratio de masse – $Ri > 10^{-1}$

VI.3.1- Régime compact – $Q_{inj} = 1 \text{ ml.h}^{-1}$

Quelle que soit la concentration du fluide injecté, pour les essais réalisés en configuration transversale, nous observons une dissolution suivant l'ensemble de la section diamétrale de la carotte, conformément à ce qui a déjà été mentionné dans les études réalisées par (Ott and Oedai, 2015a). Cette observation ne semble pas être le cas de la configuration verticale où la dissolution est plutôt centrée. (Figure 87).

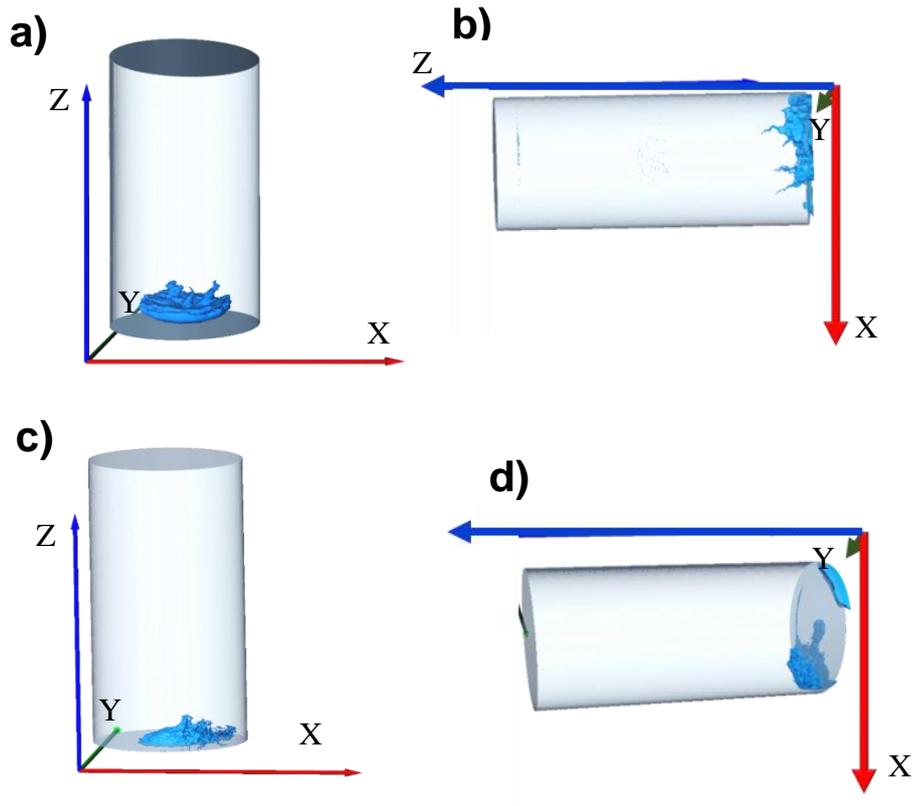


FIGURE 87. Données tomographiques segmentées montrant les Régimes de dissolutions compacts- $Ri > 10^{-1}$; a) $C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$ en configuration vertical; b) $C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$ en configuration horizontale;

En analysant le volume dissous, l'essai en configuration verticale pour $C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$ montre un volume de 4.09 cm^3 contre 2.19 cm^3 pour la configuration transversale. Quant à la concentration $C_{inj} = 160 \text{ g.l}^{-1}$, il est de 1.09 cm^3 pour la configuration verticale contre 1.3 cm^3 pour la configuration transversale. On notera qu'à ce débit de 1 ml.h^{-1} , le pourcentage de volume dissout est très inférieur au pourcentage de masse dissoute. Plusieurs hypothèses peuvent être envisagées afin d'expliquer ce résultat. Tout d'abord, cet écart pourrait être lié à une sous-estimation de la masse volumique de la partie solide à travers l'existence des éléments dissouts de taille inférieure à la résolution du tomographe. Cependant, le régime compact est en général caractérisé par un front de dissolution raide, peu propice, contrairement aux régimes dominés par la convection (ramifiés et uniformes), à l'établissement d'un gradient de dissolution. Une autre hypothèse peut être attribuée aux erreurs induites par le traitement d'images. En effet, comme indiqué dans le chapitre 2, plusieurs étapes de traitement sont nécessaires jusqu'à la segmentation de l'image. On notera, entre autres, l'étape de sélection du ROI. Si ce dernier n'englobe pas complètement la carotte initiale (comme illustré sur la Figure 88), soit à cause d'une dissolution non-contrôlée de la section d'injection, soit par l'approximation du rognage,

le volume dissout peut être sous-estimé. Le fait que, pour le débit concerné, la dissolution se fasse plutôt sur l'ensemble de la section et qu'elle soit peu avancée tend alors à amplifier l'erreur.

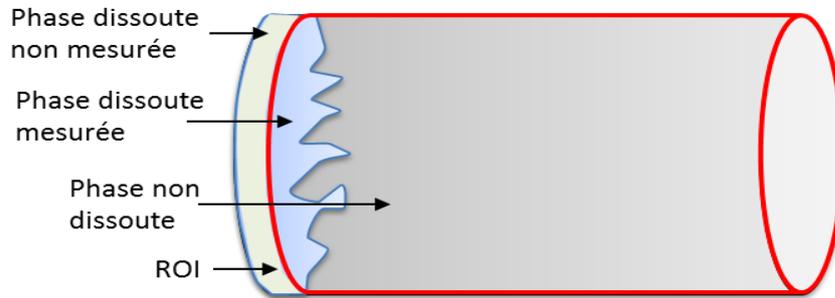


FIGURE 88. Illustration des effets de la sélection ROI sur le volume dissout

Ces observations morphologiques ne nous permettent donc pas de tirer des conclusions pertinentes sur l'influence du contraste de masse volumique sur ce régime.

VI.3.2- Régime conique – $Q_{inj} = 10 \text{ ml.h}^{-1}$

En passant aux régimes coniques, nous observons tout comme pour le régime compact, une occupation relativement importante de la zone dissoute selon la section transversale à l'écoulement en configuration transversale, ce qui confère, aux régimes coniques, une base plus développée (voir Figure 89.b ; 89.d). De plus, pour $C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$, le volume dissout est de 5.1 cm^3 pour la configuration verticale contre 3.31 cm^3 pour la configuration transversale. Pour $C_{inj} = 160 \text{ g.l}^{-1}$, il est de 3.013 cm^3 pour la configuration verticale contre 2.61 cm^3 pour la configuration transversale. Nous constatons que pour ces essais, la configuration verticale présente les plus forts volumes dissouts. On notera par ailleurs une surestimation non négligeable du pourcentage de volume dissouts au regard du pourcentage de masse dissoute pour la configuration verticale avec $C_{inj} = 160 \text{ g.l}^{-1}$. Pour la configuration transversale et $C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$, par contre, le pourcentage de volume dissouts mesuré est très inférieur à celui de la masse dissoute. Des hypothèses similaires au cas compact peuvent être envisagées.

Il convient de noter que quelques ramifications sont observées au niveau de ces régimes et plus particulièrement pour la configuration transversale où elles semblent être plus rallongées. Cependant, du fait de leur faible nombre, seul le wormhole principal est considéré pour l'estimation des descripteurs morphologiques.

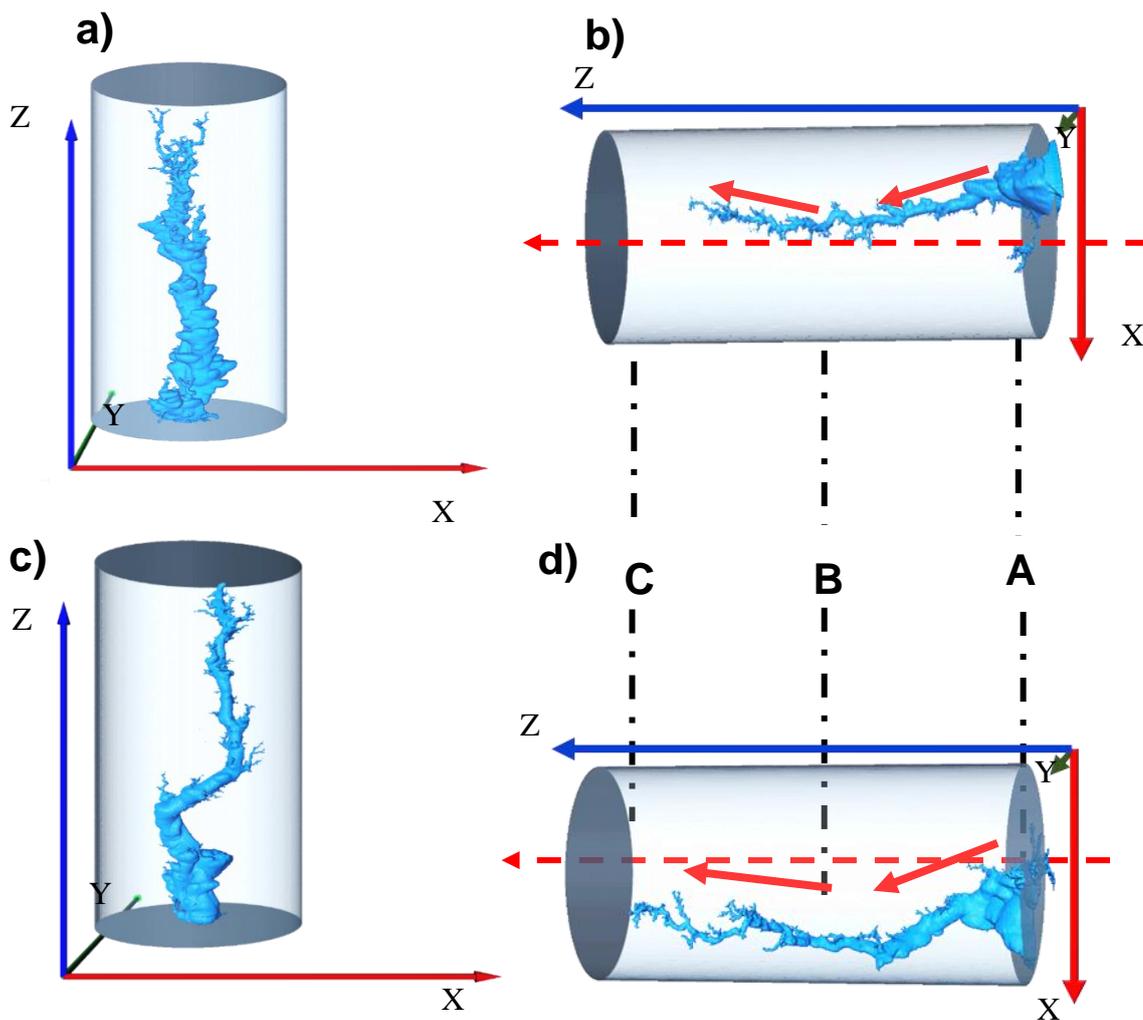


FIGURE 89. Données tomographiques segmentées montrant les Régimes de dissolutions compacts- $Ri > 10^{-1}$; a) $C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$ en configuration verticale; b) $C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$ en configuration horizontale; c) $C_{inj} = 160 \text{ g.l}^{-1}$ en configuration verticale ; d) $C_{inj} = 160 \text{ g.l}^{-1}$ en configuration horizontale

En analysant le squelette des réseaux, la configuration verticale présente la tortuosité la plus élevée pour $C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$ et par opposition, elle est plus élevée en configuration transversale pour $C_{inj} = 160 \text{ g.l}^{-1}$. De plus, le rayon moyen est supérieur dans le cas des configurations verticales. (Voir tableau 6).

TABLEAU 6. Caractéristiques morphologiques $Ri > 10^{-1}$

Configurations	$C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$ (NaCl)		$C_{inj} = 160 \text{ g.l}^{-1}$ (NaCl)	
	Vertical	Transverse	Vertical	Transverse
Tortuosité	1.30	1.18	1.19	1.22
Rayon (cm)	0.17	0.13	0.16	0.14

Par ailleurs, la structure de la dissolution en configuration verticale montre des interfaces zone dissoute/zone non-dissoute irrégulières similaires à celles observées sur le régime compact en 2D et qui montrent l'apparition et le développement de rugosités. Ces irrégularités ont un diamètre atteignant en moyenne 5 mm (Figure 90). En configuration horizontale, elles sont peu perceptibles (nous distinguons cependant quelques irrégularités proches de la section d'injection). Comme nous l'avons déjà envisagé, ces irrégularités pourraient être attribuées à une recirculation des cellules convectives générées par le contraste de masse volumique à l'intérieur de la zone dissoute.

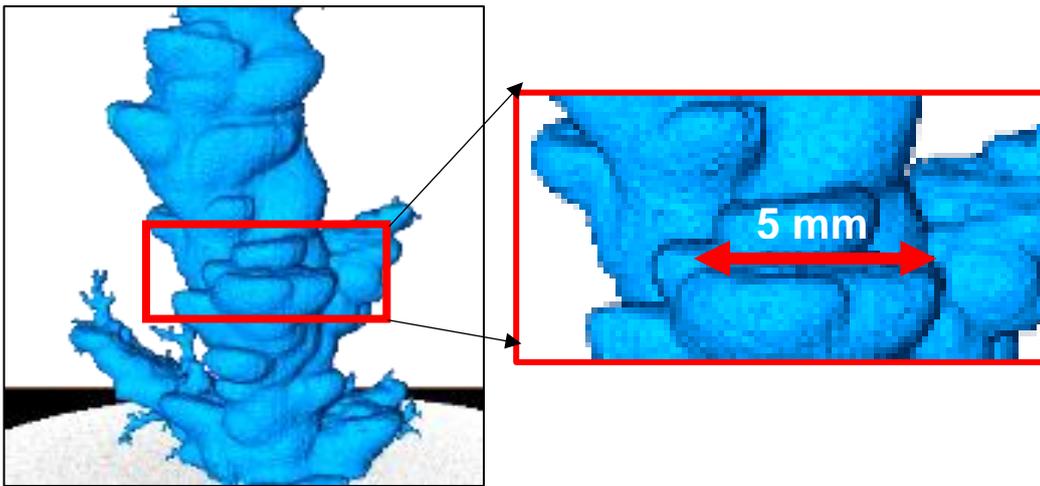


FIGURE 90. Forte présence de microrugosités – Configuration verticale – $C_{inj} = 0g.l^{-1}$

D'ailleurs, en augmentant la concentration injectée ce qui entraîne une diminution du contraste de masse volumique, i.e, une solution $C_{inj} = 160 g.l^{-1}$, nous observons une réduction de ces effets de rugosités. (Figure 91).

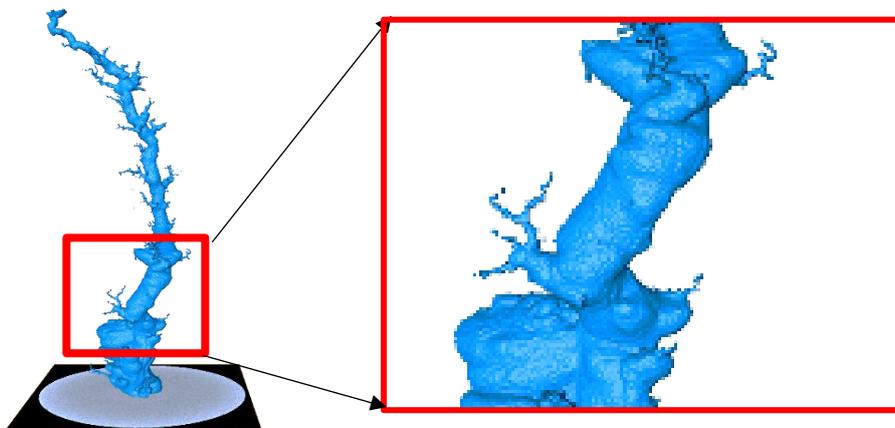


FIGURE 91. Faible présence de microrugosités – Configuration verticale – $C_{inj} = 160g.l^{-1}$

Concernant la configuration transversale, un autre « mécanisme » est potentiellement observé au niveau du phénomène de dissolution. En effet, dans une première phase, malgré l'injection ponctuelle centrée sur la section d'injection du fluide réactif, nous observons un « déplacement radial » de la base du wormhole (point A sur la Figure 89.b et Figure 89.d), vers le haut pour $C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$ et vers le bas pour $C_{inj} = 160 \text{ g.l}^{-1}$ par rapport à l'axe horizontal de la carotte, ce qui peut sembler contre-intuitif. Compte tenu de la différence en masse volumique entre le fluide injecté et le fluide saturant la carotte, nous attendrions plutôt un déplacement préférentiel vers le haut de la carotte. Dans une seconde phase, la dissolution entraîne un wormhole descendant (point A vers B) suivie par une remontée (point B vers C). Le chemin parcouru par le wormhole semble être aussi contre-intuitif. Pour l'instant, cette particularité ne pourrait être attribuée qu'à la structure de la carotte et donc à la variation spatiale de la perméabilité/porosité du massif de sel.

VII- Discussion sur les données de porosimétrie au mercure

Nous avons décidé de clore ce chapitre par une discussion portant sur la variation de la porosité déterminée via le porosimètre à mercure. La porosimétrie au mercure, est une technique d'évaluation de la porosité d'un milieu poreux ainsi que de la distribution de taille de pore basée sur l'injection sous pression constante de mercure dans le milieu. En effet, le mercure pénètre toutes les régions accessibles du milieu et remplit les pores de plus en plus fins. Cette technique, dont la précision est en général estimée à 2%, a été appliquée sur des échantillons issus de carottes représentant plusieurs étapes des essais. Tout d'abord une mesure a été faite sur un échantillon de carotte avant la saturation par de la saumure, puis sur deux échantillons après saturation (sur deux carottes différentes) et enfin sur les deux essais au débit d'injections de 10 ml.h^{-1} , configuration verticale à $C_{inj} = 0 \text{ g.l}^{-1}$. Ces essais ont été sélectionnés afin qu'ils correspondent d'une part au cas où le wormhole est suffisamment développé et d'autre part pour un Richardson relativement important. Le but ici est d'observer un éventuel effet du contraste de masse volumique sur la phase solide, et plus particulièrement sur son espace poral. Pour ce faire, il nous fallait cibler deux zones de prélèvement distinctes sur l'éprouvette (Figure 92) ; la première est localisée dans la zone matricielle à proximité du wormhole et la deuxième zone se situe dans la partie supérieure de l'éprouvette (loin du wormhole).

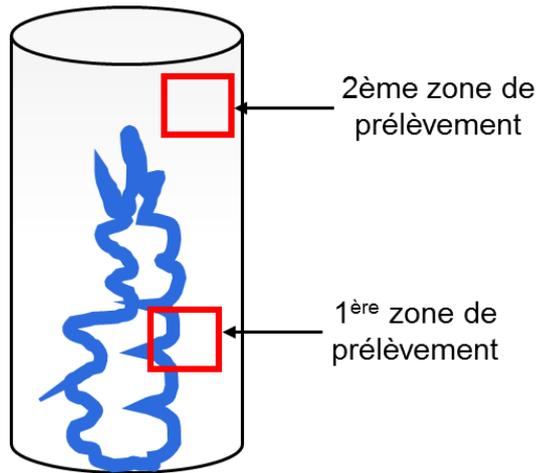


FIGURE 92. Illustration des zones de prélèvement pour les essais de porosimétrie mercure

Les résultats des différents essais sont présentés dans la Figure 94 montrant la répartition de la taille de pores en fonction de la porosité et par la même occasion le spectre des intrusions.

Tout d'abord, l'analyse des résultats des échantillons avant dissolution, i.e, éprouvettes saturées et non saturées montrent une variabilité de la mesure de porosité entre les échantillons, avec une légère augmentation de la porosité pendant la saturation. En effet, la porosité de l'échantillon initial non saturé est de 8.8%. Après saturation, elle augmente et varie entre 10.79% et 15.20% (Figure 93.b). Le spectre montre une distribution de taille de pores resserrée autour de 5 à 10 μm pour l'ensemble des échantillons (Figure 93.a). Notons que les spectres sont légèrement décalés présentant des tailles de pores plus petites pour les échantillons saturés. Il est alors envisageable que la saturation engendrait une dissolution qui augmenterait la porosité, mais qui ne peut expliquer les différences de tailles de pores. Toutefois, il ne faut pas exclure la variabilité du milieu qui peut être la cause de ces différentes valeurs enregistrées.

Pour les échantillons avec wormhole, les échantillons dits « matrice en contact avec le wormhole » et « zone hors contact » montrent des spectres quasi-superposés pour l'éprouvette 2, mais différent très légèrement pour l'éprouvette 1 (Figure 93.c). Notons que cette différence est du même ordre que celle observée entre les deux éprouvettes saturées, et ne peut donc être considérée comme significative. De la même manière, la porosité évaluée à partir de la Figure 93.d montre que pour l'éprouvette 1, la porosité est de 11.02% pour la zone dite « zone de contact » et de 12.77% pour la zone hors contact et, pour l'éprouvette 2, la porosité est de 8.79% pour la zone dite « zone de contact » contre 8.50% pour la zone hors contact. Là encore, l'éprouvette 2 ne montre que peu de variation (3.4%) et l'éprouvette 1 une variation plus

importante (16%) mais du même ordre que celle observée entre les deux éprouvettes saturées. Cette variabilité pourrait donc être due, comme mentionné ci-dessus, à la variabilité initiale des propriétés du milieu poreux. Les résultats de porosimétrie au mercure ne permettent pas de conclure à un effet significatif du contraste de masse volumique sur l'espace poral de la phase solide. Les faibles variations observées tendent à indiquer l'existence d'un front de dissolution raide, cohérent avec un régime conique tel que classiquement décrit.

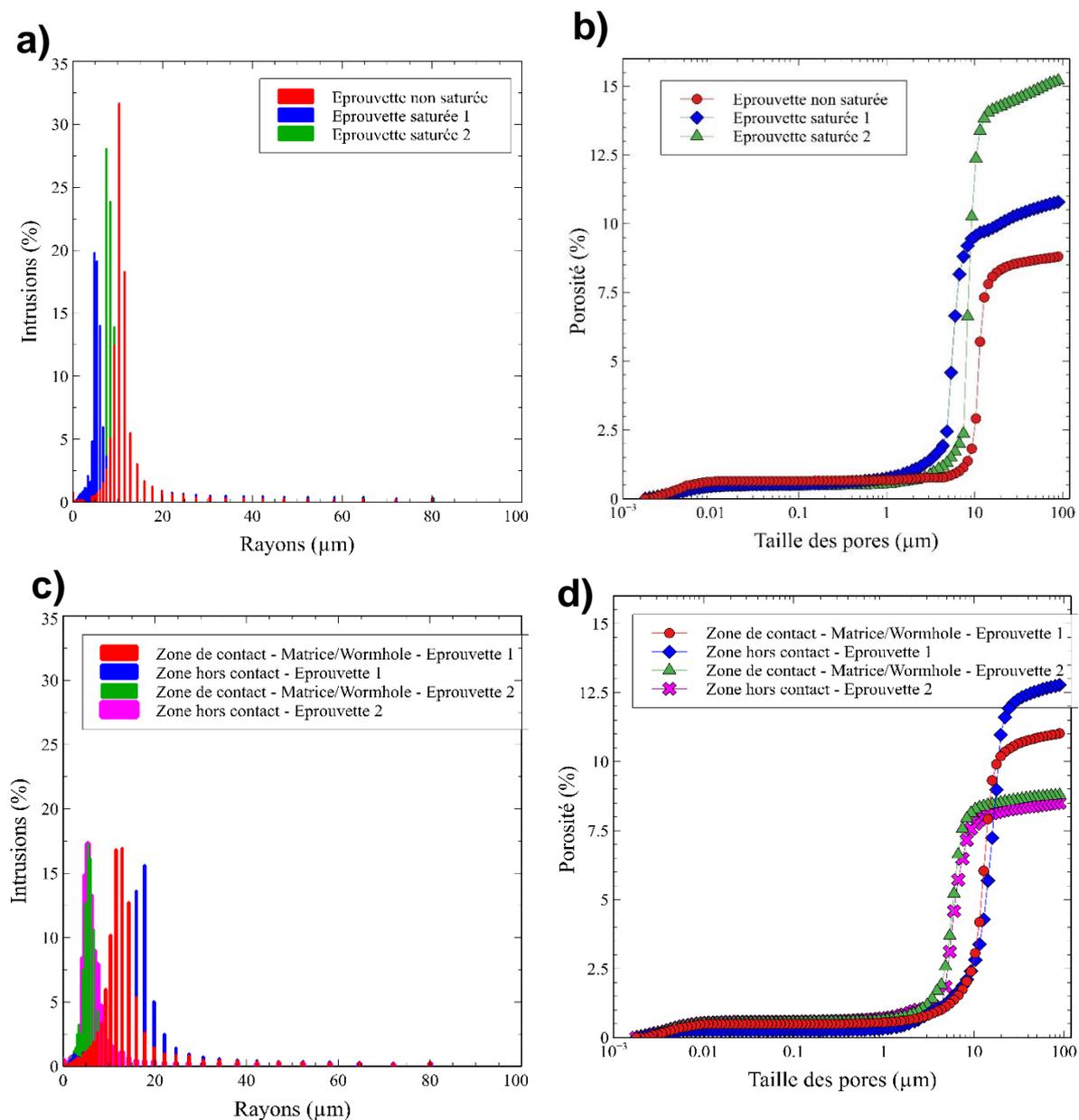


FIGURE 93. Données issue des essais de porosimétrie au mercure ; a) et c) Spectre d'intrusions (distribution de taille de pores) b) et d) Variation de la porosité en fonction de la taille des pores;

VIII- Conclusion partielle

Quelle que soit l'orientation de la cellule et la concentration de fluide injecté, les différents essais réalisés en configuration 3D nous ont permis d'obtenir 4 régimes de dissolution : compacts, coniques, dominants et ramifiés. En outre :

- (i) Malgré les conditions d'essais favorisant la mise en place des effets du contraste de masse volumique, aucune influence, ni sur les régimes globaux de dissolutions, ni sur le diagramme de classification de (Golfier, 2002) n'a été observée de manière significative ;
- (ii) Pas d'influence significative non plus sur les courbes PVBT selon l'orientation de l'éprouvette. Toutefois, notons une légère différence entre les courbes PVBT lorsque la concentration injectée augmente.
- (iii) Si des variations des paramètres morphologiques, à un débit donné, ont été observées, ces variations sont dans l'ensemble peu significatives au regard de la variabilité des résultats et ne mettent pas en exergue des tendances évidentes. On notera cependant des éléments pouvant laisser supposer un effet du contraste de masse volumique : courbure du wormhole en régime conique et configuration transverse, effets d'interface (« rugosités ») particulièrement visible en régime conique en configuration verticale.

Dans l'ensemble, les observations faites en configuration 3D n'ont pas mis en évidence d'impact significatif du contraste de masse volumique vis-à-vis de la variabilité de l'expérience. Ceci dit, les résultats ne permettent pas non plus de conclure à l'absence d'effet du contraste de masse volumique. Une étude plus poussée, avec en particulier un grand nombre de répliques, serait nécessaire pour pouvoir décorréliser les effets du contraste de masse volumique des effets de la variation structurelle du matériau.



CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES

CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES

Le travail mené dans cette thèse porte sur la compréhension des effets du contraste de masse volumique sur les différents régimes de dissolution obtenus au sein d'un milieu poreux réactif. Le choix du milieu dans le cadre de cette étude s'est essentiellement porté sur le sel (NaCl) pour les raisons suivantes :

- (i) Simplicité de la chimie ;
- (ii) Cinétique de réaction rapide ;
- (iii) Sensibilité de la masse volumique de la solution saline avec la variation de la concentration.

Étant donné l'avantage offert par les modèles physiques à l'échelle macroscopique (répétabilité et sensibilité des essais), il nous est apparu particulièrement intéressant de réaliser en laboratoire deux programmes expérimentaux. Il s'agit :

- D'une cellule de type Hele-Shaw, utilisée souvent comme modèle analogue d'un milieu poreux bidimensionnel (2D), rempli d'un milieu poreux constitué de 90% de sel et 10% de plâtre et saturé par une solution sur saturée de NaCl. L'acide est représenté par de l'eau distillée injectée à différents débits compris entre 0.1 et 500 ml.h⁻¹. Autrement dit, le contraste de masse volumique entre la solution injectée et le fluide ambiant est fixé à son maximum. À cet effet, deux configurations de la cellule ont été utilisées, une configuration horizontale et une configuration verticale ;
- D'une cellule triaxiale dans laquelle sont insérées des carottes de NaCl (modèle tridimensionnel (3D)) saturée par une saumure et dissoutes à partir des fluides sous-saturés en sel à des débits compris entre 1 et 1000 ml.h⁻¹. Comme pour la configuration 2D, deux positions sont proposées : une dite « transversale » et l'autre verticale.

Afin de visualiser la dynamique des instabilités produites, deux techniques optiques non intrusives ont été utilisées : la photographie numérique pour le modèle 2D et la tomographie à Rayon X pour le modèle 3D. Les données acquises ont été traitées via des outils informatiques comme ImageJ (Fiji) pour les données 2D et VGStudio et Avizo pour les données 3D. Ces traitements ont permis d'extraire des descripteurs morphologiques des instabilités générées tels

que la surface dissoute, le périmètre, la vitesse d'avancement de front, le diamètre de pores, la tortuosité, etc.

L'analyse visuelle des résultats expérimentaux ainsi que celle portant sur le temps de percée nous a conduit aux conclusions suivantes :

- Quel que soit le modèle expérimental utilisé et quelle que soit l'orientation du milieu, nous avons obtenus les mêmes régimes globaux de dissolutions, i.e., compacts, coniques, dominants et ramifiés. Ces régimes restent conformes à ceux rencontrés dans la littérature (Fredd and Miller, 2000; Golfier, 2002; Hoefner and Fogler, 1988). En effet, les instabilités hydrodynamiques ne modifient pas de manière significative les régimes globaux d'instabilités chimiques et n'ont donc pas d'influence sur le tableau classique de classification des régimes (Pe , Da) ;
- Les effets du contraste de masse volumique jouent un rôle non-négligeable sur le volume de pores à la percée (PVBT) mais uniquement pour les régimes diffusifs (compacts, coniques) et pour la configuration 2D. Pour les régimes convectifs (dominants, ramifiés), les valeurs PVBT sont pratiquement superposées. Concernant la configuration 3D, la variation de la concentration injectée semble avoir une influence sur les graphes PVBT. Comme pour la configuration 2D, cette observation est surtout valable pour les régimes diffusifs. Pour les régimes convectifs, nous retrouvons les mêmes conclusions que pour la configuration 2D.

Quant à l'analyse des descripteurs morphologiques menée en fonction de la variation du nombre de Richardson (Ri), elle permet de soutenir d'une manière quantitative les différentes hypothèses issues des observations expérimentales. Ainsi :

- à faibles Richardson, qui incluent les régimes ramifiés (Fort Pe , faible Da), les effets des instabilités hydrodynamiques en configuration 2D sont supposés complètement inexistantes. Cette hypothèse est confirmée par les valeurs des descripteurs morphologiques comme la distribution de la taille de pores, la surface, le périmètre ou encore la vitesse du front qui sont sensiblement identiques entre les deux configurations. En revanche pour la configuration 3D, la variabilité observée de certains de ces descripteurs (volumes, rayons...) ne permet pas de confirmer ces conclusions car cette variabilité est pratiquement du même ordre de grandeur que celle des propriétés du milieu.

- à Richardson intermédiaire, incluant les régimes dominants (Pe moyen, Da moyen) les effets convectifs diminuent et marquent l'apparition des premiers effets dus au contraste de masse volumique, pour les configurations 2D, à travers la différence entre les valeurs des descripteurs morphologiques tels que les vitesses de front de propagation, de la tortuosité et de la distribution de la taille de pores. En revanche, il nous est toujours difficile de conclure quant à la configuration 3D, d'autant plus que les essais montrent des valeurs des descripteurs morphologiques variables à la fois selon la concentration injectée et selon l'orientation des éprouvettes.
- à faibles Richardson, comprenant les régimes compacts et coniques (Faible Pe, fort Da), les effets diffusifs deviennent prédominants permettant le développement des instabilités hydrodynamiques qui, à travers les cellules convectives contrarotatives vont accentuer la déformation de l'interface zone dissoute/zone non-dissoute favorisant l'apparition des rugosités. Notons que les rugosités sont observables sur les configurations dites verticales aussi bien en 2D qu'en 3D. Cet effet est traduit sur la configuration 2D par les descripteurs morphologiques tels que le ratio surface-périmètre, la diminution des vitesses de front de dissolution ou encore la distribution de la taille de pores. La configuration transversale 3D montre que pour ce régime, les courbures des réseaux poreux pourraient être également assimilées à ces mêmes effets de contrastes de masse volumiques.

En résumé de la partie expérimentale, il ressort que les effets du contraste de masse volumique sont particulièrement observables sur les régimes coniques et compacts. Ses effets tendent à s'annuler aux régimes prédominés par les effets convectifs (dominants et ramifiés).

Par ailleurs, dans le souci de « vérifier » les observations expérimentales, des simulations numériques ont été réalisées sur COMSOL Multiphysics® pour la configuration 2D. D'une manière générale, les résultats numériques confirment les résultats expérimentaux. Ainsi, même si le contraste de masse volumique dans la zone dissoute est observable via les champs des concentrations et/ou vitesses pour toutes les configurations, son effet sur la dissolution ne se fait ressentir que pour les configurations à forts nombres de Richardson. Cette conclusion est issue, d'une part, de l'analyse des descripteurs morphologiques, en particulier de la surface dissoute et le périmètre, identiques à ceux utilisés dans le protocole expérimental, et, d'autre part de l'analyse du PVBT. En effet, les résultats numériques concernant la courbe PVBT conduisent, pour les régimes dominant et ramifiés, à des valeurs qui sont pratiquement superposées pour les deux configurations envisagées, i.e. horizontale et verticale. En revanche,

pour le régime conique, compte tenu des difficultés numériques rencontrées afin de prendre en compte le contraste de masse volumique, les résultats sont à considérer avec précaution.

Nous ne pouvons pas clore cette partie sans noter que nos conclusions ont été plus ou moins influencées par certaines contraintes et/ou choix pris tout au long de ce travail de thèse, notamment :

- La double porosité observée au niveau du régime conique, probablement due à la double cinétique des matériaux constitutifs du milieu poreux ; l'impact de cette double porosité sur le mécanisme de dissolution n'a pas pu être évalué ;
- Le pas du temps de simulation trop faible du régime conique avec contraste de masse volumique ;
- Les erreurs et incertitudes liées au traitement d'images ;
- Le nombre relativement réduit des essais réalisés en configuration tridimensionnelle (3D)

Énumérons maintenant quelques perspectives à ce travail. Il conviendrait de :

- Suivre la dynamique du champ de concentration expérimentale à l'intérieur de la zone dissoute en utilisant des méthodes optiques plus performantes ;
- Mener une réflexion plus approfondie sur la mise en place du milieu poreux et d'une méthodologie permettant d'identifier plus finement la répartition spatiale de ses caractéristiques et en particulier de la porosité ;
- Approfondir l'étude numérique en utilisant un logiciel adapté permettant de simuler les régimes à faibles diffusions en prenant en compte le contraste de masse volumique (avec et sans hypothèses simplificatrices) et avec deux matériaux différents (sel/plâtre) ;
- Développer des modèles numériques à l'échelle locale de façon à approfondir la compréhension des mécanismes à l'œuvre dans le développement des microrugosités ;



REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Ahmadi, A., Aigueperse, A., and Quintard, M. (2001). Upscaling of Nonwetting Phase Residual Transport in Porous Media: A Network Approach. 45.
- Akanni, O.O. (2015). Mathematical modeling of wormhole propagation during matrix acidizing of carbonate reservoirs. Texas A&M University.
- Al-Khulaifi, Y., Lin, Q., Blunt, M.J., and Bijeljic, B. (2018). Reservoir-condition pore-scale imaging of dolomite reaction with supercritical CO₂ acidified brine: Effect of pore-structure on reaction rate using velocity distribution analysis. *International Journal of Greenhouse Gas Control* 68, 99–111.
- Alt-Epping, P., and Diamond, L.W. (2017). Numerical Simulation of CO₂ Injection into a Carbonate Aquifer: Implications of Fluid–rock Reactions in the Aquifer and in an Overlying Clay Formation. *Procedia Earth and Planetary Science* 17, 734–737.
- Amanbek, Y., Singh, G., Wheeler, M.F., and van Duijn, H. (2019). Adaptive numerical homogenization for upscaling single phase flow and transport. *Journal of Computational Physics* 387, 117–133.
- Andriamihaja, S., Padmanabhan, E., Ben-Awuah, J., and Sokkalingam, R. (2019). Static dissolution-induced 3D pore network modification and its impact on critical pore attributes of carbonate rocks. *Petroleum Exploration and Development* 46, 374–383.
- Aziz, K., and Bories, S.A. (1973). The influence of natural convection in gas, oil and water reservoirs. *Journal of Canadian Petroleum Technology* 12.
- Babaei, M., and Islam, A. (2018). Convective-Reactive CO₂ Dissolution in aquifers with mass transfer with immobile water. *Water Resources Research* 54, 9585–9604.
- Babaei, M., and Sedighi, M. (2018). Impact of phase saturation on wormhole formation in rock matrix acidizing. *Chemical Engineering Science* 177, 39–52.
- Bacci, G., Korre, A., and Durucan, S. (2011). An experimental and numerical investigation into the impact of dissolution/precipitation mechanisms on CO₂ injectivity in the wellbore and far field regions. *International Journal of Greenhouse Gas Control* 5, 579–588.
- Balaj, M., Roohi, E., Akhlaghi, H., and Myong, R.S. (2014). Investigation of convective heat transfer through constant wall heat flux micro/nano channels using DSMC. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 71, 633–638.
- Barbier, E. (2002). Geothermal energy technology and current status: an overview. *Renewable and Sustainable Energy Reviews* 6, 3–65.

- Bazin, B. (2000). From matrix acidizing to acid fracturing: A laboratory evaluation of acid /rock interactions, *SPE Prod. and Facilities* 15(4), 1–8.
- Bear, J. (1972). *Dynamics of fluids in porous media*. Elsevier, New York. *Dynamics of fluids in porous media*. Elsevier, New York.
- Beckingham, L.E. (2017). Evaluation of Macroscopic Porosity-Permeability Relationships in Heterogeneous Mineral Dissolution and Precipitation Scenarios. *Water Resources Research* 53, 10217–10230.
- Bouquain, J., Meheust, Y., and Davy, P. (2011). Horizontal pre-asymptotic solute transport in a plane fracture with significant density contrasts. *Journal of Contaminant Hydrology* 120–121, 184–197.
- Budek, A., and Szymczak, P. (2012). Network models of dissolution of porous media. *Physical Review E* 86.
- Budroni, M.A., Riolfo, L.A., Lemaigre, L., Rossi, F., Rustici, M., and De Wit, A. (2014). Chemical Control of Hydrodynamic Instabilities in Partially Miscible Two-Layer Systems. *J. Phys. Chem. Lett.* 5, 875–881.
- Cabeza, Y., Hidalgo, J.J., and Carrera, J. (2015). Controlling Factors of Wormhole Growth in Karst Aquifers. In *Hydrogeological and Environmental Investigations in Karst Systems*, B. Andreo, F. Carrasco, J.J. Durán, P. Jiménez, and J.W. LaMoreaux, eds. (Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg), pp. 379–385.
- Campana, C., and Fidelibus, M.D. (2015). Reactive-transport modelling of gypsum dissolution in a coastal karst aquifer in Puglia, southern Italy. *Hydrogeology Journal* 23, 1381–1398.
- Cardoso, S.S.S., and Andres, J.T.H. (2014). Geochemistry of silicate-rich rocks can curtail spreading of carbon dioxide in subsurface aquifers. *Nature Communications* 5.
- Carrión, L.M., Herrada, M.A., and Montanero, J.M. (2020). Influence of the dynamical free surface deformation on the stability of thermal convection in high-Prandtl-number liquid bridges. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 146, 118831.
- Carroll, S., Hao, Y., Smith, M., and Sholokhova, Y. (2013). Development of scaling parameters to describe CO₂–rock interactions within Weyburn-Midale carbonate flow units. *International Journal of Greenhouse Gas Control* 16, S185–S193.
- Chang, C., Zhou, Q., Kneafsey, T.J., Oostrom, M., Wietsma, T.W., and Yu, Q. (2016). Pore-scale supercritical CO₂ dissolution and mass transfer under imbibition conditions. *Advances in Water Resources* 92, 142–158.
- Charru, F. (2007). *Instabilités hydrodynamiques*. 406.

- Chaudhuri, A., Rajaram, H., Viswanathan, H., Zyvoloski, G., and Stauffer, P. (2009). Buoyant convection resulting from dissolution and permeability growth in vertical limestone fractures: Buoyant convection from aperture growth. *Geophysical Research Letters* 36.
- Chen, C., and Zhang, D. (2010a). Pore-scale simulation of density-driven convection in fractured porous media during geological CO₂ sequestration: PORE-SCALE STUDY OF DENSITY-DRIVEN FLOW. *Water Resources Research* 46.
- Chen, C., and Zhang, D. (2010b). Pore-scale simulation of density-driven convection in fractured porous media during geological CO₂ sequestration. *Water Resources Research* 46.
- Chen, L., Zhang, R., Min, T., Kang, Q., and Tao, W. (2018a). Pore-scale study of effects of macroscopic pores and their distributions on reactive transport in hierarchical porous media. *Chemical Engineering Journal* 349, 428–437.
- Chen, M., Niu, X., Yu, P., Yamasaki, H., and Yamaguchi, H. (2020). Flow behavior and heat transfer characteristics in Rayleigh-Bénard laminar convection with fluid-particle interaction. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 146, 118840.
- Chen, Y., Ma, G., Li, T., Wang, Y., and Ren, F. (2018b). Simulation of wormhole propagation in fractured carbonate rocks with unified pipe-network method. *Computers and Geotechnics* 98, 58–68.
- Cheung, W., and Rajaram, H. (2002). Dissolution finger growth in variable aperture fractures: Role of the tip-region flow field: Dissolution finger growth in variable aperture fractures. *Geophysical Research Letters* 29, 32-1-32–34.
- Ching, J.-H., Chen, P., and Tsai, P.A. (2017). Convective mixing in homogeneous porous media flow. *Physical Review Fluids* 2.
- Cohen, E. (2007). Modélisation et simulation de la stimulation acide des puits carbonatés. 240.
- Cohen, C.E., Ding, D., Quintard, M., and Bazin, B. (2008). From pore scale to wellbore scale: Impact of geometry on wormhole growth in carbonate acidization. *Chemical Engineering Science* 63, 3088–3099.
- Colombani, J. (2008). Measurement of the pure dissolution rate constant of a mineral in water. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 72, 5634–5640.
- Daccord, G. (1987). Chemical dissolution of a porous medium by a reactive fluid. *Physical Review Letters* 58, 479–482.
- Daccord, G., and Lenormand, R. (1993). Chemical dissolution of a porous medium by a reactive fluid-I model for the “wormholing” phenomenon. 10.

- Daccord, G., Liétard, O., and Lenormand, R. (1993). Chemical dissolution of a porous medium by a reactive fluid—II. Convection vs reaction, behavior diagram. *Chemical Engineering Science* 48, 179–186.
- Dashtian, H., Bakhshian, S., Hajirezaie, S., Nicot, J.-P., and Hosseini, S.A. (2019). Convection-diffusion-reaction of CO₂-enriched brine in porous media: A pore-scale study. *Computers & Geosciences* 125, 19–29.
- De Wit, A. (2016). Chemo-hydrodynamic patterns in porous media. *Philosophical Transactions of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences* 374, 20150419.
- De Wit, A., Eckert, K., and Kalliadasis, S. (2012). Introduction to the Focus Issue: Chemo-Hydrodynamic Patterns and Instabilities. *Chaos: An Interdisciplinary Journal of Nonlinear Science* 22, 037101.
- Detwiler, R.L. (2010). Permeability alteration due to mineral dissolution in partially saturated fractures. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth* 115.
- Detwiler, R.L., Rajaram, H., and Glass, R.J. (2002). Experimental and simulated solute transport in a partially-saturated, variable-aperture fracture. *Geophysical Research Letters* 29, 113-1-113–114.
- Detwiler, R.L., Glass, R.J., and Bourcier, W.L. (2003). Experimental observations of fracture dissolution: The role of Peclet number on evolving aperture variability: FRACTURE DISSOLUTION. *Geophysical Research Letters* 30.
- Dijk, P.E., Berkowitz, B., and Yechieli, Y. (2002). Measurement and analysis of dissolution patterns in rock fractures: Measurement and analysis of dissolution in rock fractures. *Water Resources Research* 38, 5-1-5–12.
- Dougherty, R., and Kunzelmann, K.-H. (2007). Computing Local Thickness of 3D Structures with ImageJ. *MAM* 13.
- Duliu, O. (1999). Computer axial tomography in geosciences: an overview. *Earth-Science Reviews* 48, 265–281.
- Dutka, F., Starchenko, V., Osselin, F., Magni, S., Szymczak, P., and Ladd, A.J.C. (2020a). Time-dependent shapes of a dissolving mineral grain: comparisons of simulations with microfluidic experiments. *Chemical Geology* 119459.
- Dutka, F., Starchenko, V., Osselin, F., Magni, S., Szymczak, P., and Ladd, A.J.C. (2020b). Time-dependent shapes of a dissolving mineral grain: comparisons of simulations with microfluidic experiments. *Chemical Geology* 119459.
- Emami-Meybodi, H., Hassanzadeh, H., Green, C.P., and Ennis-King, J. (2015). Convective dissolution of CO₂ in saline aquifers: Progress in modeling and experiments. *International Journal of Greenhouse Gas Control* 40, 238–266.

- Ennis-King, J., and Paterson, L. (2007). Coupling of geochemical reactions and convective mixing in the long-term geological storage of carbon dioxide. *International Journal of Greenhouse Gas Control* 1, 86–93.
- Ennis-King, J., Preston, I., and Paterson, L. (2005). Onset of convection in anisotropic porous media subject to a rapid change in boundary conditions. *Physics of Fluids* 17, 084107.
- Fagerlund, F. (2006). Experimental and modelling studies on the spreading of non-aqueous phase liquids in heterogeneous media. *Acta Universitatis Upsaliensis Acta Universitatis Upsaliensis*.
- Fan, Y., Liu, Y., Teng, Y., Yang, M., Jiang, L., and Song, Y. (2017). Experimental Study of Density-Driven-Convection Mixing in Hele-Shaw cell. *Energy Procedia* 142, 3375–3380.
- Fang, Y., Scheibe, T.D., Mahadevan, R., Garg, S., Long, P.E., and Lovley, D.R. (2011). Direct coupling of a genome-scale microbial in silico model and a groundwater reactive transport model. *Journal of Contaminant Hydrology* 122, 96–103.
- Farajzadeh, R., Salimi, H., Zitha, P.L.J., and Bruining, H. (2007). Numerical simulation of density-driven natural convection in porous media with application for CO₂ injection projects. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 50, 5054–5064.
- Farajzadeh, R., Ranganathan, P., Zitha, P.L.J., and Bruining, J. (2011). The effect of heterogeneity on the character of density-driven natural convection of CO₂ overlying a brine layer. *Advances in Water Resources* 34, 327–339.
- Felder, C. (2003). Transport d'une solution saline en cellule de Hele-Shaw - Expériences et simulations numériques.
- Fernandez, J., Kurowski, P., Petitjeans, P., and Meiburg, E. (2002). Density-driven unstable flows of miscible fluids in a Hele-Shaw cell. *Journal of Fluid Mechanics* 451, 239–260.
- Ford, D.C. (2006). Karst geomorphology, caves and cave deposits: A review of North American contributions during the past half century. In *Perspectives on Karst Geomorphology, Hydrology, and Geochemistry - A Tribute Volume to Derek C. Ford and William B. White*, (Geological Society of America), p.
- Fredd, C.N. (2000). Dynamic model of wormhole formation demonstrates conditions for effective skin reduction during carbonate matrix acidizing. (Society of Petroleum Engineers), p.
- Fredd, C.N., and Fogler, H. (1998a). The kinetics of calcite dissolution in acetic acid solutions. *Chemical Engineering Science* 53, 3863–3874.
- Fredd, C.N., and Fogler, H.S. (1998b). Influence of transport and reaction on wormhole formation in porous media. *AIChE Journal* 44, 1933–1949.

- Fredd, C.N., and Miller, M.J. (2000). Validation of carbonate matrix stimulation models. (Society of Petroleum Engineers), p.
- Frick, T., B. Mostofizadeh, and M. Economides (1994). Analysis of Radial Core Experiments of Hydrochloric Acid Interaction with Limestones. Intl. Symposium on Formation Damage Control. SPE 27402.
- Fu, X., Cueto-Felgueroso, L., Bolster, D., and Juanes, R. (2015). Rock dissolution patterns and geochemical shutdown of brine-carbonate reactions during convective mixing in porous media. *Journal of Fluid Mechanics* 764, 296–315.
- Furst, S. (2018). Multi-Objective Optimization for Joint Inversion of Geodetic Data. 161.
- Gao, J., Xing, H., Tian, Z., Pearce, J.K., Sedek, M., Golding, S.D., and Rudolph, V. (2017). Reactive transport in porous media for CO₂ sequestration: Pore scale modeling using the lattice Boltzmann method. *Computers & Geosciences* 98, 9–20.
- Gharbi, O., Bijeljic, B., Boek, E., and Blunt, M.J. (2013). Changes in Pore Structure and Connectivity Induced by CO₂ Injection in Carbonates: A Combined Pore-Scale Approach. *Energy Procedia* 37, 5367–5378.
- Glass, R.J., and Nicholl, M.J. (1995). Quantitative visualization of entrapped phase dissolution within a horizontal flowing fracture. *Geophysical Research Letters* 22, 1413–1416.
- Glover, M.C., and Guin, J.A. (1973). Dissolution of a homogeneous porous medium by surface reaction. *AIChE Journal* 19, 1190–1195.
- Golfier, F. (2002). Dissolution des roches carbonatées par injection d'acide. 160.
- Golfier, F., Bazin, B., Zarcone, C., Lernormand, R., Lasseux, D., and Quintard, M. (2001). Acidizing Carbonate Reservoirs: Numerical Modelling of Wormhole Propagation and Comparison to Experiments. In *SPE European Formation Damage Conference*, (The Hague, Netherlands: Society of Petroleum Engineers), p.
- Golfier, F., Zarcone, C., Bazin, B., Lenormand, R., Lasseux, D., and Quintard, M. (2002). 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.
- Gomaa, A.M., Nino-Penaloza, A., Cutler, J., and Chaudhary, S. (2018). Insights of Wormhole Propagation During Carbonate Acidizing: A Comparison Between Constant Injection Pressure Versus Constant Volumetric Rate. *Journal of Energy Resources Technology* 140, 102906.
- Gouze, P., and Luquot, L. (2011). X-ray microtomography characterization of porosity, permeability and reactive surface changes during dissolution. *Journal of Contaminant Hydrology* 120–121, 45–55.

- Graf, T., and Therrien, R. (2005). Variable-density groundwater flow and solute transport in porous media containing nonuniform discrete fractures. *Advances in Water Resources* 28, 1351–1367.
- Gray, F., Cen, J., and Boek, E.S. (2016). Simulation of dissolution in porous media in three dimensions with lattice Boltzmann, finite-volume, and surface-rescaling methods. *Physical Review E* 94.
- Gray, F., Anabaraonye, B., Shah, S., Boek, E., and Crawshaw, J. (2018). Chemical mechanisms of dissolution of calcite by HCl in porous media: Simulations and experiment. *Advances in Water Resources* 121, 369–387.
- Guo, J., Laouafa, F., and Quintard, M. (2016). A theoretical and numerical framework for modeling gypsum cavity dissolution. *International Journal for Numerical and Analytical Methods in Geomechanics* 40, 1662–1689.
- Hassanzadeh, H., Pooladi-Darvish, M., and Keith, D.W. (2009). Accelerating CO₂ Dissolution in Saline Aquifers for Geological Storage — Mechanistic and Sensitivity Studies. *Energy Fuels* 23, 3328–3336.
- Henley, R.W., and Ellis, A.J. (1983). Geothermal systems ancient and modern: a geochemical review. *Earth-Science Reviews* 19, 1–50.
- Herzog, H.J. (2001). Peer Reviewed: What Future for Carbon Capture and Sequestration? *Environmental Science & Technology* 35, 148A-153A.
- Hidalgo, J.J., MacMinn, C.W., and Juanes, R. (2013). Dynamics of convective dissolution from a migrating current of carbon dioxide. *Advances in Water Resources* 62, 511–519.
- Hidalgo, J.J., Dentz, M., Cabeza, Y., and Carrera, J. (2015). Dissolution patterns and mixing dynamics in unstable reactive flow: Mixing in unstable reactive flow. *Geophysical Research Letters* 42, 6357–6364.
- Hoefner, M.L., and Fogler, H.S. (1988). Pore evolution and channel formation during flow and reaction in porous media. *AIChE Journal* 34, 45–54.
- Huber, C., Shafei, B., and Parmigiani, A. (2014). A new pore-scale model for linear and non-linear heterogeneous dissolution and precipitation. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 124, 109–130.
- Hung, Hill, A. D., and K. M. (1989). A mechanistic model of wormhole growth in carbonate matrix acidizing and acid fracturing.
- Huppert, H.E., and Neufeld, J.A. (2014). The Fluid Mechanics of Carbon Dioxide Sequestration. *Annu. Rev. Fluid Mech.* 46, 255–272.

- Islam, A., Korrani, A.K.N., Sepehrnoori, K., and Patzek, T. (2014). Effects of geochemical reaction on double diffusive natural convection of CO₂ in brine saturated geothermal reservoir. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 77, 519–528.
- Islam, A., Sun, A.Y., and Yang, C. (2016). Reactive Transport Modeling of the Enhancement of Density-Driven CO₂ Convective Mixing in Carbonate Aquifers and its Potential Implication on Geological Carbon Sequestration. *Scientific Reports* 6.
- Izgec, O., Zhu, D., and Hill, A.D. (2010). Numerical and experimental investigation of acid wormholing during acidization of vuggy carbonate rocks. *Journal of Petroleum Science and Engineering* 74, 51–66.
- Jafari Raad, S.M., and Hassanzadeh, H. (2016). Does impure CO₂ impede or accelerate the onset of convective mixing in geological storage? *International Journal of Greenhouse Gas Control* 54, 250–257.
- Jafari Raad, S.M., and Hassanzadeh, H. (2018). Onset of density-driven instabilities in fractured aquifers. *Physical Review E* 97.
- Jakobsen, R., Kazmierczak, J., Sørensen, H.U., and Postma, D. (2018). Spatial Variability of Groundwater Arsenic Concentration as Controlled by Hydrogeology: Conceptual Analysis Using 2-D Reactive Transport Modeling. *Water Resour. Res.* 54.
- Jean-Baptiste, P., and Ducroux, R. (2003). Potentiel des méthodes de séparation et stockage du CO₂ dans la lutte contre l'effet de serre. *Comptes Rendus Geoscience* 335, 611–625.
- Jiang, L., Wu, B., Liu, Y., Suekane, T., and Wang, D. (2019). Dynamic evolution of the CO₂-brine interfacial area during brine imbibition in porous media. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 128, 1125–1135.
- Johnson, K.S. (2005). Subsidence hazards due to evaporite dissolution in the United States. *Environmental Geology* 48, 395–409.
- Johnson, K.S. (2008). Evaporite-karst problems and studies in the USA. *Environmental Geology* 53, 937–943.
- Kaestner, A., Lehmann, E., and Stampanoni, M. (2008). Imaging and image processing in porous media research. *Advances in Water Resources* 31, 1174–1187.
- Kalia, N., and Balakotaiah, V. (2007). Modeling and analysis of wormhole formation in reactive dissolution of carbonate rocks. *Chemical Engineering Science* 62, 919–928.
- Kang, Q., Zhang, D., and Chen, S. (2003). Simulation of dissolution and precipitation in porous media. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth* 108.

- Kang, Q., Lichtner, P.C., and Zhang, D. (2007). An improved lattice Boltzmann model for multicomponent reactive transport in porous media at the pore scale: Multicomponent reactive transport. *Water Resources Research* 43.
- Kang, Q., Chen, L., Valocchi, A.J., and Viswanathan, H.S. (2014a). Pore-scale study of dissolution-induced changes in permeability and porosity of porous media. *Journal of Hydrology* 517, 1049–1055.
- Kang, Q., Chen, L., Valocchi, A.J., and Viswanathan, H.S. (2014b). Pore-scale study of dissolution-induced changes in permeability and porosity of porous media. *Journal of Hydrology* 517, 1049–1055.
- Kaydani, H., Mohebbi, A., and Forghani, A.A. (2018). Lattice Boltzmann Simulation of Natural Convection in a Fractured Petroleum Reservoir Domain: Single-Phase and Multi-Phases Investigations. *The Open Petroleum Engineering Journal* 11, 48–66.
- Kim, M., Kim, K., Han, W.S., Oh, J., and Park, E. (2019). Density-Driven Convection in a Fractured Porous Media: Implications for Geological CO₂ Storage. *Water Resour. Res.* 55, 5852–5870.
- Kolditz, O., Ratke, R., Diersch, H.-J.G., and Zielke, W. (1998). Coupled groundwater flow and transport: 1. Verification of variable density flow and transport models. *Advances in Water Resources* 21, 27–46.
- Kou, J., Sun, S., and Wu, Y. (2019). A semi-analytic porosity evolution scheme for simulating wormhole propagation with the Darcy–Brinkman–Forchheimer model. *Journal of Computational and Applied Mathematics* 348, 401–420.
- Kreyenberg, P.J., Bauser, H.H., and Roth, K. (2019). Velocity Field Estimation on Density-Driven Solute Transport With a Convolutional Neural Network. *Water Resources Research* 55, 7275–7293.
- Künze, R., and Lunati, I. (2012). An adaptive multiscale method for density-driven instabilities. *Journal of Computational Physics* 231, 5557–5570.
- Kuo, L.-S., and Chen, P.-H. (2009). Effects of Slip Boundary Conditions on Rayleigh–Bénard Convection. *Journal of Mechanics* 25, 205–212.
- Lagneau, V. (2011). Modélisation des couplages entre réactions géochimiques et processus hydrodynamiques en milieu poreux - applications au stockage de CO₂ et à l’exploitation d’uranium. 201.
- Laouafa, F., Guo, J., Quintard, M., and Luo, H. (2018). Numerical modelling of salt leaching-dissolution process.
- Lapwood, E.R. (1948). Convection of a fluid in a porous medium. *Math. Proc. Camb. Phil. Soc.* 44, 508–521.

- Lehmann, G., and Legland, D. (2012a). Efficient N-Dimensional surface estimation using Crofton formula and run-length encoding. 11.
- Lehmann, G., and Legland, D. (2012b). Efficient N-Dimensional surface estimation using Crofton formula and run-length encoding. 11.
- Leijnse, T. (1989). Free convection for high concentration solute transport in porous medium, in *Contaminant Transport in Groundwater* (Balkema, Rotterdam/Brookfield.).
- Lemaigre, L., Budroni, M.A., Riolfo, L.A., Grosfils, P., and De Wit, A. (2013). Asymmetric Rayleigh-Taylor and double-diffusive fingers in reactive systems. *Physics of Fluids* 25, 014103.
- Li, B., Tchelepi, H.A., and Benson, S.M. (2013). Influence of capillary-pressure models on CO₂ solubility trapping. *Advances in Water Resources* 62, 488–498.
- Li, W., Einstein, H.H., and Germaine, J.T. (2019). An Experimental Study of Matrix Dissolution and Wormhole Formation Using Gypsum Core Flood Tests: 1. Permeability Evolution and Wormhole Geometry Analysis. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth* 124, 11055–11073.
- Li, X., Huang, H., and Meakin, P. (2010). A three-dimensional level set simulation of coupled reactive transport and precipitation/dissolution. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 53, 2908–2923.
- Liang, C., Cui, M., Xue, H., Zou, H., Jiang, W., and Liu, P. (2015). Simulation and Analysis of Wormhole Structure Affected by Mineralogy Heterogeneity in Carbonate Rocks. 20, 21.
- Liang, Y., Wen, B., Hesse, M.A., and DiCarlo, D. (2018). Effect of Dispersion on Solutal Convection in Porous Media. *Geophys. Res. Lett.* 45, 9690–9698.
- Liu, M., and Mostaghimi, P. (2017). Pore-scale simulation of dissolution-induced variations in rock mechanical properties. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 111, 842–851.
- Liu, N., and Liu, M. (2016). Simulation and analysis of wormhole propagation by VES acid in carbonate acidizing. *Journal of Petroleum Science and Engineering* 138, 57–65.
- Liu, F., Sang, Y., Xie, N., Li, L., Ran, L., and Chen, W. (2017a). Wormholes propagation for fractured-vuggy formation: Laboratory tests, numerical simulation and field application. *Petroleum* 3, 438–446.
- Liu, M., Zhang, S., and Mou, J. (2012). Effect of normally distributed porosities on dissolution pattern in carbonate acidizing. *Journal of Petroleum Science and Engineering* 94–95, 28–39.
- Liu, M., Shabaninejad, M., and Mostaghimi, P. (2017b). Impact of mineralogical heterogeneity on reactive transport modelling. *Computers & Geosciences* 104, 12–19.

- Liu, P., Xue, H., Zhao, L., Zhao, X., and Cui, M. (2016). Simulation of 3D multi-scale wormhole propagation in carbonates considering correlation spatial distribution of petrophysical properties. *Journal of Natural Gas Science and Engineering* 32, 81–94.
- Liu, P., Yao, J., Couples, G.D., Ma, J., Huang, Z., and Sun, H. (2017c). Modeling and simulation of wormhole formation during acidization of fractured carbonate rocks. *Journal of Petroleum Science and Engineering* 154, 284–301.
- Liu, P., Yao, J., Couples, G.D., Huang, Z., Sun, H., and Ma, J. (2017d). Numerical modelling and analysis of reactive flow and wormhole formation in fractured carbonate rocks. *Chemical Engineering Science* 172, 143–157.
- Lu, G., Liu, Y., Jiang, L., Ying, T., Song, Y., and Wu, B. (2017). Study of Density Driven Convection in a Hele-Shaw Cell with Application to the Carbon Sequestration in Aquifers. *Energy Procedia* 114, 4303–4312.
- Luhmann, A.J., Kong, X.-Z., Tutolo, B.M., Garapati, N., Bagley, B.C., Saar, M.O., and Seyfried, W.E. (2014). Experimental dissolution of dolomite by CO₂-charged brine at 100°C and 150bar: Evolution of porosity, permeability, and reactive surface area. *Chemical Geology* 380, 145–160.
- Luo, H., Quintard, M., Debenest, G., and Laouafa, F. (2012). Properties of a diffuse interface model based on a porous medium theory for solid–liquid dissolution problems. *Computational Geosciences* 16, 913–932.
- Luo, H., Laouafa, F., Debenest, G., and Quintard, M. (2015). Large scale cavity dissolution: From the physical problem to its numerical solution. *European Journal of Mechanics - B/Fluids* 52, 131–146.
- Luquot, L., and Gouze, P. (2009). Experimental determination of porosity and permeability changes induced by injection of CO₂ into carbonate rocks. *Chemical Geology* 265, 148–159.
- Luquot, L., Rodriguez, O., and Gouze, P. (2014). Experimental Characterization of Porosity Structure and Transport Property Changes in Limestone Undergoing Different Dissolution Regimes. *Transport in Porous Media* 101, 507–532.
- Luquot, L., Hebert, V., and Rodriguez, O. (2016). Calculating structural and geometrical parameters by laboratory measurements and X-ray microtomography: a comparative study applied to a limestone sample before and after a dissolution experiment. *Solid Earth* 7, 441–456.
- Ma, X., Mou, J., Lin, H., Jiang, F., Liu, K., and Zhao, X. (2017). Lattice Boltzmann Simulation of Wormhole Propagation in Carbonate Acidizing. *Journal of Energy Resources Technology* 139, 042002.

Maheshwari, P. (2014). Modeling and Simulation of Reactive Dissolution and Wormhole Formation in Carbonate Rocks. PhD Thesis.

Maheshwari, P., Ratnakar, R.R., Kalia, N., and Balakotaiah, V. (2013). 3-D simulation and analysis of reactive dissolution and wormhole formation in carbonate rocks. *Chemical Engineering Science* 90, 258–274.

Mahmoodi, A., Javadi, A., and Sedae Sola, B. (2018). Porous media acidizing simulation: New two-phase two-scale continuum modeling approach. *Journal of Petroleum Science and Engineering* 166, 679–692.

Manneville, P. (2006). Rayleigh-Bénard Convection: Thirty Years of Experimental, Theoretical, and Modeling Work. In *Dynamics of Spatio-Temporal Cellular Structures*, I. Mutabazi, J.E. Wesfreid, and E. Guyon, eds. (New York, NY: Springer New York), pp. 41–65.

Martinez-Perez, L., Luquot, L., and Carrera, J. (2017). Changes in Hydrodynamic, Structural and Geochemical Properties in Carbonate Rock Samples Due to Reactive Transport. *Procedia Earth and Planetary Science* 17, 885–888.

Mayer, K.U., Frind, E.O., and Blowes, D.W. (2002). Multicomponent reactive transport modeling in variably saturated porous media using a generalized formulation for kinetically controlled reactions. *Water Resources Research* 38, 13-1-13–21.

Meng, X., Sun, H., Guo, Z., and Yang, X. (2020). A multiscale study of density-driven flow with dissolution in porous media. *Advances in Water Resources* 142, 103640.

Menke, H.P., Bijeljic, B., Andrew, M.G., and Blunt, M.J. (2015). Dynamic three-dimensional pore-scale imaging of reaction in a carbonate at reservoir conditions. *Environmental Science & Technology* 49, 4407–4414.

Menke, H.P., Andrew, M.G., Blunt, M.J., and Bijeljic, B. (2016). Reservoir condition imaging of reactive transport in heterogeneous carbonates using fast synchrotron tomography — Effect of initial pore structure and flow conditions. *Chemical Geology* 428, 15–26.

Menke, H.P., Bijeljic, B., and Blunt, M.J. (2017). Dynamic reservoir-condition microtomography of reactive transport in complex carbonates: Effect of initial pore structure and initial brine pH. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 204, 267–285.

Menke, H.P., Reynolds, C.A., Andrew, M.G., Pereira Nunes, J.P., Bijeljic, B., and Blunt, M.J. (2018a). 4D multi-scale imaging of reactive flow in carbonates: Assessing the impact of heterogeneity on dissolution regimes using streamlines at multiple length scales. *Chemical Geology* 481, 27–37.

Menke, H.P., Reynolds, C.A., Andrew, M.G., Pereira Nunes, J.P., Bijeljic, B., and Blunt, M.J. (2018b). 4D multi-scale imaging of reactive flow in carbonates: Assessing the impact of

heterogeneity on dissolution regimes using streamlines at multiple length scales. *Chemical Geology* 481, 27–37.

Min, T., Gao, Y., Chen, L., Kang, Q., and Tao, W. (2016a). Changes in porosity, permeability and surface area during rock dissolution: Effects of mineralogical heterogeneity. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 103, 900–913.

Min, T., Gao, Y., Chen, L., Kang, Q., and Tao, W. (2016b). Changes in porosity, permeability and surface area during rock dissolution: Effects of mineralogical heterogeneity. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 103, 900–913.

Molins, S., Trebotich, D., Yang, L., Ajo-Franklin, J.B., Ligocki, T.J., Shen, C., and Steefel, C.I. (2014). Pore-Scale Controls on Calcite Dissolution Rates from Flow-through Laboratory and Numerical Experiments. *Environ. Sci. Technol.* 48, 7453–7460.

Morlot, C., Pignatelli, I., Giuliani, G., and Sterpenich, J. (2016). La tomographie à rayons X et ses applications en gemmologie: exemples de l'émeraude trapiche et du grenat démantôïde. *Revue de Gemmologie, AFG.*

Mylopoulos, Y.A., Theodosiou, N., and Mylopoulos, N.A. (1999). A Stochastic Optimization Approach in the Design of an Aquifer Remediation under Hydrogeologic Uncertainty. *Water Resources Management* 13, 335–351.

Nakanishi, Y., Hyodo, A., Wang, L., and Suekane, T. (2016). Experimental study of 3D Rayleigh–Taylor convection between miscible fluids in a porous medium. *Advances in Water Resources* 97, 224–232.

Neufeld, J.A., Hesse, M.A., Riaz, A., Hallworth, M.A., Tchelepi, H.A., and Huppert, H.E. (2010). Convective dissolution of carbon dioxide in saline aquifers. *Geophysical Research Letters* 37.

Nogues, J.P., Fitts, J.P., Celia, M.A., and Peters, C.A. (2013). Permeability evolution due to dissolution and precipitation of carbonates using reactive transport modeling in pore networks. *Water Resources Research* 49, 6006–6021.

Norouzi Rad, M., Shokri, N., and Sahimi, M. (2013). Pore-scale dynamics of salt precipitation in drying porous media. *Physical Review E* 88.

Oldenburg, C.M., and Pruess, K. Layered Thermohaline Convection in Hypersaline Geothermal Systems. 35.

Oliveira, M.F.S., Lima, I., Ferrucio, P.L., Abreu, C.J., Borghi, L., and Lopes, R.T. (2011). Petrophysical analysis of limestone rocks by nuclear logging and 3D high-resolution X-ray computed microtomography. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment* 652, 905–910.

- Oltéan, C., Golfier, F., and Buès, M.A. (2013). Numerical and experimental investigation of buoyancy-driven dissolution in vertical fracture. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth* *118*, 2038–2048.
- Ott, H., and Oedai, S. (2015a). Wormhole formation and compact dissolution in single and two phase CO₂-brine injections. *Geophysical Research Letters* *42*, 2270–2276.
- Ott, H., and Oedai, S. (2015b). Wormhole formation and compact dissolution in single- and two-phase CO₂ -brine injections. *Geophysical Research Letters* *42*, 2270–2276.
- Ott, H., de Kloe, K., van Bakel, M., Vos, F., van Pelt, A., Legerstee, P., Bauer, A., Eide, K., van der Linden, A., Berg, S., et al. (2012). Core-flood experiment for transport of reactive fluids in rocks. *Review of Scientific Instruments* *83*, 084501.
- Panga, M.K.R., Ziauddin, M., and Balakotaiah, V. (2005). Two-scale continuum model for simulation of wormholes in carbonate acidization. *AIChE Journal* *51*, 3231–3248.
- Philippi, J., Berhanu, M., Derr, J., and Courrech du Pont, S. (2019a). Solutal convection induced by dissolution. *Phys. Rev. Fluids* *4*, 103801.
- Philippi, J., Berhanu, M., Derr, J., and Courrech du Pont, S. (2019b). Solutal convection induced by dissolution. *Phys. Rev. Fluids* *4*, 103801.
- Privalov, V., Randi, A., Sterpenich, J., Pironon, J., and Morlot, C. (2019). Structural Control of a Dissolution Network in a Limestone Reservoir Forced by Radial Injection of CO₂ Saturated Solution: Experimental Results Coupled with X-ray Computed Tomography. *Geosciences* *9*, 33.
- Pruess, K., and Zhang, K. (2008). Numerical Modeling Studies of The Dissolution-Diffusion-Convection Process During CO₂ Storage in Saline Aquifers.
- Qiu, X., Aidagulov, G., Ghommam, M., Edelman, E., Brady, D., and Abbad, M. (2018). Towards a better understanding of wormhole propagation in carbonate rocks: Linear vs. radial acid injection. *Journal of Petroleum Science and Engineering* *171*, 570–583.
- Quintard, M. (2013). Dissolution of Cavities and Porous Media: a Multi-Scale View. 14.
- Raines, M.A., and Dewers, T.A. (1997). Mixed transport reaction control of gypsum dissolution kinetics in aqueous solutions and initiation of gypsum karst. 20.
- Randi, A., Sterpenich, J., Thiéry, D., Kervévan, C., Pironon, J., and Morlot, C. (2017). Experimental and Numerical Simulation of the Injection of a CO₂ Saturated Solution in a Carbonate Reservoir: Application to the CO₂-DISSOLVED Concept Combining CO₂ Geological Storage and Geothermal Heat Recovery. *Energy Procedia* *114*, 2942–2956.
- Rege, S.D., and Fogler, H.S. (1989). Competition among flow, dissolution, and precipitation in porous media. *AIChE Journal* *35*, 1177–1185.

Renard, F. (2007). Transport polyphasique réactif en milieu poreux.

Requillé, Y., Hirata, S.C., and Ouarzazi, M.N. (2020). Viscous dissipation effects on the linear stability of Rayleigh-Bénard-Poiseuille/Couette convection. *International Journal of Heat and Mass Transfer* *146*, 118834.

Riaz, A., Hesse, M., Tchelepi, H.A., and Orr, F.M. (2006). Onset of convection in a gravitationally unstable diffusive boundary layer in porous media. *Journal of Fluid Mechanics* *548*, 87.

Rötting, T.S., Luquot, L., Carrera, J., and Casalinuovo, D.J. (2015). Changes in porosity, permeability, water retention curve and reactive surface area during carbonate rock dissolution. *Chemical Geology* *403*, 86–98.

Sainz-Garcia, A., Abarca, E., Nardi, A., Grandia, F., and Oelkers, E.H. (2017). Convective mixing fingers and chemistry interaction in carbon storage. *International Journal of Greenhouse Gas Control* *58*, 52–61.

Schechter, R.S., and Gidley, J.L. (1969). The change in pore size distribution from surface reactions in porous media. *AIChE Journal* *15*, 339–350.

Selvadurai, A.P.S., Couture, C.-B., and Rezaei Niya, S.M. (2017). Permeability of wormholes created by CO₂-acidized water flow through stressed carbonate rocks. *Physics of Fluids* *29*, 096604.

Shikaze, S.G., Sudicky, E.A., and Schwartz, F.W. (1998). Density-dependent solute transport in discretely-fractured geologic media: is prediction possible? *Journal of Contaminant Hydrology* *34*, 273–291.

Siddheshwar, P.G., B. N., S., Zhao, Y., and C., K. (2020). Rayleigh-Bénard convection in a newtonian liquid bounded by rigid isothermal boundaries. *Applied Mathematics and Computation* *371*, 124942.

Simon, R.B. (2012). Tests de lessivage acide de minerais d'uranium et modélisations géochimiques des réactions: application à la récupération minière in situ (ISR). 186.

Singurindy, O., Berkowitz, B., and Lowell, R.P. (2004). Carbonate dissolution and precipitation in coastal environments: Laboratory analysis and theoretical consideration. *Water Resources Research* *40*.

Slim, A.C., Bandi, M.M., Miller, J.C., and Mahadevan, L. (2013). Dissolution-driven convection in a Hele-Shaw cell. *Physics of Fluids* *25*, 024101.

Smith, M.M., Sholokhova, Y., Hao, Y., and Carroll, S.A. (2013). CO₂-induced dissolution of low permeability carbonates. Part I: Characterization and experiments. *Advances in Water Resources* *62*, 370–387.

- Smith, M.M., Hao, Y., and Carroll, S.A. (2017). Development and calibration of a reactive transport model for carbonate reservoir porosity and permeability changes based on CO₂ core-flood experiments. *International Journal of Greenhouse Gas Control* 57, 73–88.
- Smith, M.M., Hao, Y., Spangler, L.H., Lammers, K., and Carroll, S.A. (2019). Validation of a reactive transport model for predicting changes in porosity and permeability in carbonate core samples. *International Journal of Greenhouse Gas Control* 90, 102797.
- Snippe, J., Gdanski, R., and Ott, H. (2017). Multiphase modelling of wormhole formation in carbonates by the injection of CO₂. *Energy Procedia* 114, 2972–2984.
- Snippe, J., Berg, S., Ganga, K., Brussee, N., and Gdanski, R. (2020a). Experimental and numerical investigation of wormholing during CO₂ storage and water alternating gas injection. *International Journal of Greenhouse Gas Control* 94, 102901.
- Snippe, J., Berg, S., Ganga, K., Brussee, N., and Gdanski, R. (2020b). Experimental and numerical investigation of wormholing during CO₂ storage and water alternating gas injection. *International Journal of Greenhouse Gas Control* 94, 102901.
- Soltanian, M.R., Amooie, M.A., Dai, Z., Cole, D., and Moortgat, J. (2016). Critical Dynamics of Gravitational-Convective Mixing in Geological Carbon Sequestration. *Sci Rep* 6, 35921.
- Soltanian, M.R., Amooie, M.A., Gershenzon, N., Dai, Z., Ritzi, R., Xiong, F., Cole, D., and Moortgat, J. (2017). Dissolution Trapping of Carbon Dioxide in Heterogeneous Aquifers. *Environ. Sci. Technol.* 51, 7732–7741.
- Soulaine, C., Roman, S., Kovscek, A., and Tchelepi, H.A. (2017). Mineral dissolution and wormholing from a pore-scale perspective. *Journal of Fluid Mechanics* 827.
- Starchenko, V., and Ladd, A.J.C. (2018). The Development of Wormholes in Laboratory-Scale Fractures: Perspectives From Three-Dimensional Simulations. *Water Resources Research* 54, 7946–7959.
- Stasiek, J., and Jewartowski, M. (2017). Liquid Crystals, PIV and IR-Photography in Selected Technical and Biomedical Applications. *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering* 249, 012010.
- Steefel, C.I., Yabusaki, S.B., and Mayer, K.U. (2015). Reactive transport benchmarks for subsurface environmental simulation. *Comput Geosci* 19, 439–443.
- Szymczak, P., and Ladd, A.J.C. (2004). Microscopic simulations of fracture dissolution: Microscopic simulations of dissolution. *Geophysical Research Letters* 31.
- Szymczak, P., and Ladd, A.J.C. (2006). A network model of channel competition in fracture dissolution. *Geophysical Research Letters* 33.

- Szymczak, P., and Ladd, A.J.C. (2009). Wormhole formation in dissolving fractures. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth* 114.
- Szymczak, P., and Ladd, A.J.C. (2011a). Instabilities in the dissolution of a porous matrix: Dissolutional instabilities. *Geophysical Research Letters* 38, n/a-n/a.
- Szymczak, P., and Ladd, A.J.C. (2011b). Instabilities in the dissolution of a porous matrix: Dissolutional instabilities. *Geophysical Research Letters* 38, n/a-n/a.
- Szymczak, P., and Ladd, A.J.C. (2011c). The initial stages of cave formation: Beyond the one-dimensional paradigm. *Earth and Planetary Science Letters* 301, 424–432.
- Taheri, A., Torsæter, O., Lindeberg, E., Hadia, N.J., and Wessel-Berg, D. (2018). Qualitative and quantitative experimental study of convective mixing process during storage of CO₂ in heterogeneous saline aquifers. *International Journal of Greenhouse Gas Control* 71, 212–226.
- Tenchine, S., and Gouze, P. (2005). Density contrast effects on tracer dispersion in variable aperture fractures. *Advances in Water Resources* 28, 273–289.
- Therrien, R., and Sudicky, E.A. (1996). Three-dimensional analysis of variably-saturated flow and solute transport in discretely-fractured porous media. *Journal of Contaminant Hydrology* 23, 1–44.
- Thomas, C., Dehaeck, S., and De Wit, A. (2018). Convective dissolution of CO₂ in water and salt solutions. *International Journal of Greenhouse Gas Control* 72, 105–116.
- Tian, Z., and Wang, J. (2018). Lattice Boltzmann simulation of dissolution-induced changes in permeability and porosity in 3D CO₂ reactive transport. *Journal of Hydrology* 557, 276–290.
- Tsai, P.A., Riesing, K., and Stone, H.A. (2013). Density-driven convection enhanced by an inclined boundary: Implications for geological CO₂ storage. *Physical Review E* 87.
- Upadhyay, V.K., Szymczak, P., and Ladd, A.J.C. (2015). Initial conditions or emergence: What determines dissolution patterns in rough fractures? *Journal of Geophysical Research: Solid Earth* 120, 6102–6121.
- Valois, R. (2014). Caractérisation structurale de morphologies karstiques superficielles et suivi temporel de l'infiltration à l'aide des méthodes électriques et sismiques.
- Vujević, K., and Graf, T. (2015). Combined inter- and intra-fracture free convection in fracture networks embedded in a low-permeability matrix. *Advances in Water Resources* 84, 52–63.
- Wallis, I., Prommer, H., Pichler, T., Post, V., B. Norton, S., Annable, M.D., and Simmons, C.T. (2011). Process-Based Reactive Transport Model To Quantify Arsenic Mobility during Aquifer Storage and Recovery of Potable Water. *Environ. Sci. Technol.* 45, 6924–6931.

- Walter, A.L., Frind, E.O., Blowes, D.W., Ptacek, C.J., and Molson, J.W. (1994). Modeling of multicomponent reactive transport in groundwater: 1. Model development and evaluation. *Water Resour. Res.* 30, 3137–3148.
- Wang, J., and Yu, Q. (2018).
- Wang, L., Nakanishi, Y., Hyodo, A., and Suekane, T. (2016). Three-dimensional structure of natural convection in a porous medium: Effect of dispersion on finger structure. *International Journal of Greenhouse Gas Control* 53, 274–283.
- Wang, L., Mou, J., Mo, S., Zhao, B., Liu, Z., and Tian, X. (2020). Modeling matrix acidizing in naturally fractured carbonate reservoirs. *Journal of Petroleum Science and Engineering* 186, 106685.
- Wang, Y., Hill, A. D, and Schechter, R. S (1993). The optimum injection rate for matrix acidizing of carbonate formations.
- Wei, T., and du Puits, R. (2020). Mean temperature profile and thermal displacement thickness in turbulent Rayleigh–Bénard convection. *International Journal of Heat and Mass Transfer* 148, 119021.
- Weisbrod, N., Alon-Mordish, C., Konen, E., and Yechieli, Y. (2012). Dynamic dissolution of halite rock during flow of diluted saline solutions: Dynamic dissolution of salt rock. *Geophys. Res. Lett.* 39, n/a-n/a.
- Weiss, S., He, X., Ahlers, G., Bodenschatz, E., and Shishkina, O. (2018). Bulk temperature and heat transport in turbulent Rayleigh–Bénard convection of fluids with temperature-dependent properties. *Journal of Fluid Mechanics* 851, 374–390.
- Willems, T. (2014). Modélisation des écoulements souterrains dans un système karstique à l’aide de l’approche « hybrid finite element mixing cell » : Application au bassin de la source de la Noiraigue (Suisse). 97.
- Wooding, R.A. (1969). Growth of fingers at an unstable diffusing interface in a porous medium or Hele-Shaw cell. *J. Fluid Mech.* 39, 477–495.
- Xu, Z.-J. (2012). Homogenization and Upscaling for Diffusion, Heat Conduction, and Wave Propagation in Heterogeneous Materials. *Commun. Theor. Phys.* 57, 348–354.
- Xu, X., Chen, S., and Zhang, D. (2006). Convective stability analysis of the long-term storage of carbon dioxide in deep saline aquifers. *Advances in Water Resources* 29, 397–407.
- Xue, H., Huang, Z., Zhao, L., Wang, H., and Liu, P. (2019). Wormholing Influenced by Injection Temperature in Carbonate Rocks. *OJOGas* 04, 12–30.

- Yadati, Y., Mears, N., and Chatterjee, A. (2019). Spatio-temporal characterization of thermal fluctuations in a non-turbulent Rayleigh–Bénard convection at steady state. *Physica A: Statistical Mechanics and Its Applications* 123867.
- Yang, C., and Gu, Y. (2006). Accelerated Mass Transfer of CO₂ in Reservoir Brine Due to Density-Driven Natural Convection at High Pressures and Elevated Temperatures. *Ind. Eng. Chem. Res.* 45, 2430–2436.
- Yang, X., Mehmani, Y., Perkins, W.A., Pasquali, A., Schönherr, M., Kim, K., Perego, M., Parks, M.L., Trask, N., Balhoff, M.T., et al. (2016). Intercomparison of 3D pore-scale flow and solute transport simulation methods. *Advances in Water Resources* 95, 176–189.
- Yasuda, E.Y., Santos, R.G. dos, and Vidal Trevisan, O. (2013). Kinetics of carbonate dissolution and its effects on the porosity and permeability of consolidated porous media. *Journal of Petroleum Science and Engineering* 112, 284–289.
- Yoo, H., Kim, Y., Lee, W., and Lee, J. (2018). An experimental study on acid-rock reaction kinetics using dolomite in carbonate acidizing. *Journal of Petroleum Science and Engineering* 168, 478–494.
- Younes, A., Fahs, M., Ataie-Ashtiani, B., and Simmons, C.T. (2020). Effect of distance-dependent dispersivity on density-driven flow in porous media. *Journal of Hydrology* 589, 125204.
- Yu, D., and Ladd, A.J.C. (2010). A numerical simulation method for dissolution in porous and fractured media. *Journal of Computational Physics* 229, 6450–6465.