



HAL
open science

Modélisation multi-physique des transferts en milieu poreux à différentes échelles

Anne-Julie Tinet

► **To cite this version:**

Anne-Julie Tinet. Modélisation multi-physique des transferts en milieu poreux à différentes échelles. Sciences de la Terre. Université de Lorraine, 2025. <tel-05403849>

HAL Id: tel-05403849

<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-05403849v1>

Submitted on 8 Dec 2025

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.



HAL Authorization

Laboratoire GéoRessources

Mémoire pour l'obtention de l'Habilitation à Diriger des Recherches

Modélisation multi-physique des transferts en milieu poreux à différentes échelles

Anne-Julie TINET

Date de soutenance :

24 novembre 2025

Composition du jury :

Rapporteurs :

Pierre BOIVIN	Chargé de Recherche	CNRS, M2P2
Florian DE VUYST	Professeur	Université Technologique de Compiègne, BMBI
Catherine NOIRIEL	Maître de Conférences	Université Paul Sabatier, GET

Examineurs :

Fabrice GOLFIER	Professeur	Université de Lorraine, GeoRessources
Irina PANFILOVA	Professeur	Université de Lorraine, LEMTA
Christophe TOURNASSAT	Professeur	Université d'Orléans, ISTO

Table des matières

A.	Curriculum Vitae	4
B.	Activités d'enseignement.....	6
C.	Activités administratives et responsabilités	7
D.	Résumé des activités de recherche.....	7
E.	Liste des publications.....	8
1	Introduction générale.....	10
2	La méthode Lattice Boltzmann.....	12
2.1	Introduction.....	12
2.2	LBM – Etat de l'art et applications en milieux poreux	13
2.2.1	Description de la méthode.....	13
2.2.2	Application en milieu poreux	15
2.3	LBM – Multi-phase flow	15
2.3.1	Modèles « Double Stokes »	16
2.3.2	Modèles « Champ de Phase ».....	19
2.3.3	Applications aux milieux poreux.....	20
2.4	LBM – Interactions Fluide-Solide.....	23
2.4.1	Condition de non-glissement.....	23
2.4.2	Condition de glissement.....	24
2.4.3	Interfaces non-conformes.....	26
2.5	Couplages.....	27
2.6	Conclusion.....	28
3	IMAGE : Application aux sols et roches réactives	30
3.1	Introduction.....	30
3.2	Objectifs et verrous scientifiques	30
3.3	Applications en science du sol.....	32
3.3.1	Caractérisation des sols.....	32

3.3.2	Impression 3D	36
3.4	Applications aux roches réactives et wormholing.....	38
3.5	Conclusion	43
4	COMPUTE : Approche DRP appliquée au stockage géologique de déchets radioactifs	44
4.1	Contexte général	44
4.2	Les mécanismes de transport du gaz	45
4.3	Verrous scientifiques	47
4.4	Description des travaux réalisés	48
4.4.1	Imagerie et reconstruction	48
4.4.2	Ecoulement monophasique de la phase gazeuse	50
4.4.3	Ecoulement diphasique	52
4.4.4	Ecoulement des gaz dissous et électroosmose.....	57
4.5	Conclusion et Perspectives.....	59
5	SCALE : Approche multi-échelle appliquée à la contamination aux NAPL.....	60
5.1	Introduction.....	60
5.2	Objectifs et verrous scientifiques	60
5.3	Description des travaux réalisés	62
5.3.1	Echelle des pores.....	62
5.3.2	Echelle du continuum.....	66
5.4	Conclusion.....	71
6	Perspectives.....	73
	Références	79

A. Curriculum Vitae

Maître de Conférences (section 60)

Université de Lorraine – ENSG – Laboratoire GeoRessources (UL/CNRS)

TITRE ET DIPLOMES

Doctorat (2011) : Université de Grenoble (LTHE)

Master (2008) de l'université de Kyoto au département de Génie Civil et Ressources Terrestres

Ingénieur (2008) de l'École Centrale de Lyon

EXPERIENCE PROFESSIONNELLE

2013-présent : **Maître de Conférences** à l'Université de Lorraine (section 60), affectée à l'École Nationale Supérieure de Géologie, laboratoire GeoRessources (équipe Hydro-Géomécanique Multi-échelles)

2012-2013: **Post-doctorat** à l'INRA site PACA, dans l'unité EMMAH Climat : Développement d'un logiciel pour la caractérisation hydrique des sols: Couplage énergie de surface – plante – thermo – hydrique avec utilisation de résolution rapide de Ross.

2011-2012: **Post-doctorat** à l'université de Kumamoto (Japon) au département de Génie Civil et Environnemental – X-EARTH Center : *Study on mechanism of LNAPL migration and remediation in bimodal soils using micro CT and LBM.*

2008-2011: **Doctorat** au LTHE : *Contribution à l'étude des transferts des fluides dans les Installations de Stockage des Déchets Non Dangereux*

2008-2011: **Monitorat** à Polytech' Grenoble, département géotechnique. 192 heures d'enseignements sous forme de TP et TD en identification des sols, hydraulique, mécanique des milieux continus et fondations

ACTIVITES PEDAGOGIQUES

- Enseignements en *école d'ingénieur* tronc commun et spécialisation (eau et environnement)
- **Enseignements** en hydrogéologie, phénomènes de transferts, sols pollués, méthodes numériques et algorithmique, gestion de projet.
- **Responsable module** Gestion de Projet, Processus de Transferts, Climat du passé / Climat du futur à l'ENSG
- **Encadrement** de stages de licence, master et école d'ingénieur 3ème année

RESPONSABILITÉS

2016 - 2019 : Membre du bureau du GISFI

2016 – présent : Membre de la commission Enseignement de l'ENSG

2018 – présent : Élu(e) au conseil de l'ENSG

2020 – 2024 : Responsable de l'équipe HGM du laboratoire GeoRessources

2020 – présent : Membre du CoDIR du laboratoire GeoRessources

2024 – présent : Responsable du thème MéMoRi du laboratoire GeoRessources

2024 – présent : Responsable du parcours M2 GRSE du master STPE – ouvert en apprentissage

ACTIVITES DE RECHERCHE

- Compréhension et modélisation des transferts multiphasiques et multi-physique en milieu poreux
- Transport réactif
- Phénomènes couplés à l'échelle du réseau de pores (méthodes de Lattice Boltzmann éventuellement couplées, couplage avec l'imagerie par exemple microtomographie)
- Modélisation à l'échelle du site (couplages multiprocessus)

ENCADREMENT

- Licence / Bachelor : 4
- Master 1 et projets ingénieurs : 2 à 3 / an
- Master 2 :

2011 – 2012: Suivi des recherches en master de Kazuaki Mikami (Master 2^{ème} année – Japon)
Thème : Etude de la pollution des LNAPL via la microtomographie à rayon X et modélisation à l'échelle du pore

2011 – 2012: Suivi des recherches en master de Taihei Komaru (Master 2^{ème} année – Japon)
Thème : Etude expérimentale de la pollution et remédiation du NAPL dans des milieux poreux hétérogènes grâce aux techniques micro-CT.

Novembre 2013 – mai 2014 : Co-Encadrement du stage de master 2 de Pierre-Louis Descieux
Thème : Modélisation couplée des processus hydro-mécaniques à l'échelle des grains.

Novembre 2014 – février 2015 : Co-Encadrement du stage de master 2 de Clémentine Meyniel
Thème : Expériences d'imbibition – drainage sur micromodèle.

Novembre 2015 – mai 2016 : Co-Encadrement du stage de master 2 de Gustave Rousseau
Thème : Modélisation et optimisation d'ouvrages de dépollution in situ pour traiter une zone source de DNAPL

Novembre 2015 – mai 2016 : Co-Encadrement du stage de master 2 de Coralie Chabas
Thème : Dissolution / précipitation en milieu poreux

Novembre 2016 – mai 2017 : Co-Encadrement du stage de master 2 de Wilfried Ahoulou
Thème : Dissolution / précipitation en milieu poreux

Mai 2025 – Septembre 2025 : Encadrement du stage de fin d'études de master 2 de Gaoussou Diabate

Thème : Suivi du comportement triphasique dans un milieu poreux

- Encadrement de thèse

Co-direction :

- W. Ahoulou (soutenue décembre 2020) : Transport réactif en milieu poreux, de l'échelle locale à l'échelle du VER : application à la dissolution/précipitation couplée à des gradients de masse volumique. Directeur de thèse : C. Oltéan
- Y. Benmansour (débutée 2022 – arrêtée en 2025) : Simulation du transport réactif dans des milieux poreux avec hétérogénéités de mouillabilité / réactivité et changement d'échelle numérique par approche de type DRP. Directeur de thèse : C. Oltéan

Co-encadrement :

- N. Amrofel (soutenue juin 2024) Caractérisation numérique des phénomènes de couplage multiphysique sur la migration de gaz dans une roche argileuse saturée aux échelles mésoscopiques. Thèse dirigée par F. Golfier et A. Obliger.

B. Activités d'enseignement

L'ensemble de mes enseignements sont réalisés à l'ENSG (1A, 2A et 3A ainsi que dans le parcours de M2 GRSE (Gestion des Ressources en eaux Souterraines et Environnement, mention STPE)) pour un volume horaire de 230-240 HETD.

Enseignements en géosciences (environ 1/3 de mon service) - transferts de masse (hydrogéologie (ENSG 1A), écoulements multiphasiques (ENSG 2A, 3A et M2 GRSE)) et de chaleur (transferts thermiques (ENSG 1A)) dans le sous-sol. Une introduction à l'étude du changement climatique ainsi qu'aux impacts du changement climatique sur la ressource en eau est aussi développé (ENSG 2A, cours électif).

Enseignements des outils pour l'ingénieur (environ 2/3 de mon service): numériques (algorithmique et programmation en langage Python (ENSG 1A), outils mathématiques (ENSG 1A), modélisation numérique des écoulements et du transport (ENSG 3A et M2 GRSE)), gestion (gestion de projet) (ENSG 1A et 2A). Ces enseignement sont basés en partie importante sur la réalisation de projets.

Initiation à la recherche : Encadrements de projets. Il s'agit ici d'encadrer les projets de recherche de 3^{ème} année de l'ENSG et de M2 et de les évaluer. Ces projets incluent une partie bibliographique ainsi qu'une activité de recherche expérimentale et/ou numérique. J'encadre entre 2 et 4 projets par an en moyenne.

Je suis responsable des UE de Processus de Transferts (ENSG 1A), de Gestion de Projet (ENSG 2A), de Modélisation Numérique en Hydrogéologie et Environnement (ENSG 3A), de l'UE élective Climat du Passé, Climat du Futur (ENSG 2A). J'ai participé à la mise en place de la maquette 2024-2028 du master STPE et en particulier de l'ouverture à l'alternance du **parcours GRSE** de ce master, dont je suis **responsable** à partir de septembre 2024.

J'ai par ailleurs réalisé un cours sur la méthode Lattice Boltzmann (en 2016) et un sur le changement d'échelle (en 2018) aux étudiants de master et de doctorat (en géotechnique et géoenvironnement) de l'université de Kumamoto (dans le cadre du projet H2020 RISE PROTINUS) et suis intervenue lors de l'école d'été « Gas in Geological Storage » (Nancy, Juillet 2021) sur le comportement hydrodynamique.

C. Activités administratives et responsabilités

2016 - 2019 : Membre du bureau du GISFI

2016 – présent : Membre de la commission Enseignement de l'ENSG

2018 – présent : Élu(e) au conseil de l'ENSG

2020 – 2024 : Responsable de l'équipe HGM du laboratoire GeoRessources

2020 – présent : Membre du CoDIR du laboratoire GeoRessources

2022 – membre du comité d'organisation du congrès IAMG (Nancy, 2022)

2024 – présent : Responsable du thème MéMoRi du laboratoire GeoRessources

2024 – présent : Responsable du parcours M2 GRSE du master STPE

Membre de 5 comités de sélection (Université de Lorraine (3), Université de Poitiers, Université de Strasbourg)

Membre de 3 jurys de thèse (Wilfried Ahoulou (co-directrice), Farah Al Sahyouni et Nathan Amrofel (examinatrice))

D. Résumé des activités de recherche

A l'origine de mes activités de recherche, lors de mes travaux de thèse, je me suis tout d'abord intéressée aux transferts de fluides (lixiviat et gaz) dans les Installations de Stockage des Déchets Non Dangereux avec des développements de modélisation de l'échelle de la colonne au site de stockage. Lors de ces travaux, je me suis confrontée à la difficulté à caractériser un milieu poreux particulièrement hétérogène, réactif et déformable. Dès lors, une évolution naturelle de mes activités s'est orientée vers une meilleure compréhension des propriétés des milieux poreux, en particulier l'intégration des propriétés microstructurales pour leur prédiction. A partir d'un premier post-doctorat, je me suis donc intéressée au domaine de la Digital Rock Physics avec en particulier l'imagerie par microtomographie aux rayons X et les modèles Lattice Boltzmann.

Les enjeux de la transition, qu'il s'agisse de la qualité des eaux et des sols, donc les sites contaminés aux NAPL (liquides en phase non aqueuse), du stockage géologique de déchets radioactifs mais aussi de problématiques pouvant être liées à la séquestration du CO₂ ou encore aux impacts du changement climatique, nécessitent une compréhension avancée de mécanismes fortement couplés. Mes travaux concernent donc plus particulièrement sur les phénomènes couplés multiphasiques (eau-gaz, eau-NAPL-air par exemple) et multiphysiques (transport réactif principalement).

Mes activités de recherches se concentrent donc à la fois sur l'application de la Digital Rock Physics à des milieux poreux complexes (e.g. milieux nanoporeux, milieux réactifs). L'application de l'approche IMAGE & COMPUTE est donc faite, avec un focus marqué sur la petite échelle (échelle du réseau de pores, des nanopores aux digitations, selon la problématique). La question du

changement d'échelle (SCALE) permettant une continuité des études depuis la petite échelle à l'échelle des sites est enfin posée. Les travaux présentés, après un état de l'art se concentrant sur la méthode Lattice Boltzmann, au cœur de mes travaux, mettent donc en valeur les étapes IMAGE, appliquée aux milieux réactifs, COMPUTE, appliquée aux milieux nanoporeux, et SCALE, appliquée à l'étude de la zone source des sites et sols contaminés. Enfin, une perspective, en particulier sur les apports potentiels de l'Intelligence Artificielle, est développée.

E. Liste des publications

Tinet, A-J and Oxarango, L. (2010), Stationary gas flow to a vertical extraction well in MSW landfill considering the effect of mechanical settlement on hydraulic properties. *Chemical Engineering Science* 65 (23) 6229-6237

Tinet, A-J, Oxarango, L., Bayard, R., Benbelkacem, H., Stoltz, G., Staub, M.J. and Gourc, J-P. (2011), Experimental and theoretical assessment of the multi-domain flow behaviour in a waste body during leachate infiltration. *Waste Management* 31 (8) 1797-1806

Stoltz, G., **Tinet, A-J**, Staub, M. J., Oxarango, L., Gourc, J-P., (2012), Moisture retention properties of MSW in relation to compression, *Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering*, 138 (4) 535-543

Oxarango, L., Gourc, J.P., Stoltz, G. and **Tinet, A-J**. (2013), Effect of mechanical settlement on biogas transfer in MSW landfills. In book: *Coupled Phenomena in Environmental Geotechnics*, 181-188

Tinet, A-J, Chanzy, A., Braud, I., Crevoisier, D., Lafolie, F. (2014), Development and evaluation of an efficient soil-atmosphere model (FHAVeT): Model evaluation and comparison. *Hydrology and Earth System Sciences Discussion (HESSD)* 11(7), 8571-8601

Tinet, A-J, Chanzy, A., Braud, I., Crevoisier, D., Lafolie, F. (2015), Development and evaluation of an efficient soil-atmosphere model (FHAVeT) based on the Ross fast solution of the Richards equation for bare soil conditions. *Hydrology and Earth System Sciences (HESS)* 19, 969-980

Benioug, M., Golfier, F., **Tinet A-J**, Buès M.A., Oltéan, C., (2015), Numerical efficiency assessment of IB-LB method for 3D pore-scale modeling of flow and transport. *Transport in Porous Media (TIPM)* 109 (1), 1-23

Slimani, R., Oxarango, L., Sbartai, B., **Tinet, A. J.**, Olivier, F., Dias, D. (2016). Leachate flow around a well in MSW landfill: Analysis of field tests using Richards model. *Waste Management* 63, 122-130

Shiota, E., Mukunoki, T., **Tinet, A-J**. (2016), Estimation of water – LNAPL transfer with different granular materials using X-ray CT image analysis. *Japanese Geotechnical Society Special Publication* 4(7), 150-153

Pazdniakou, A., **Tinet A-J**, Golfier, F., Kalo, K., Gaboreau, S., Gaire, P. (2018) Numerical efficiency assessment of the lattice Boltzmann model for digital nano-porous rock applications. *Advances in Water Resources*, 121, 44 – 56

Shiota, E., Mukunoki, T., Oxarango, L., **Tinet, A-J**, Golfier, F. (2019), Micro- and macro-scale water retention properties of granular soils : contribution of the X-Ray CT-based voxel percolation method. *Soil Research*, 57, 575-588.

Müller, K., Duwig, C., **Tinet, A-J**, Gastelum Strozzi, A., Spadini, L., Morel, M-C., Charrier, P. (2019), Orchard management and preferential flow in Andosols – comparing two kiwifruit orchards in New Zealand. *Soil Research*, 57, 615-628.

Tinet, A-J., Collon, P., Philippe, C., Dewaide, L., Hallet, V. (2019), OM-MADE : An open-source program to simulate one-dimensional solute transport in multiple exchanging conduits and storage zones. *Computers and Geosciences*, 127, 23-35.

Duwig, C., Prado, B., **Tinet, A-J.**, Delmas, P., Dal Ferro, N., Vandervaere, J-P., Denis, H., Charrier, P., Gastelum Strozzi, A., Morari, F. (2019), Impact of land-use on hydrodynamic properties and pore architecture of volcanic soils from the Mexican Highlands. *Soil Research*, 57, 629-641.

Tinet, A. J., Corlay, Q., Collon, P., Golfier, F., & Kalo, K. (2020). Comparison of various 3D pore space reconstruction methods and implications on transport properties of nanoporous rocks. *Advances in Water Resources*, 103615.

Arrieta-Escobar, J. A., Derrien, D., Ouvrard, S., Asadollahi-Yazdi, E., Hassan, A., Boly, V., **Tinet, A-J.** & Dignac, M. F. (2020). 3D printing: An emerging opportunity for soil science. *Geoderma*, 378, 114588.

Ahoulou, A.W.A, **Tinet, A-J.**, Oltéan, C. & Golfier, F. (2020). Experimental insights into the interplay between buoyancy, convection and dissolution reaction. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, 125(11), e2020JB020854.

Bedell, R., Hassan, A., **Tinet, A-J.**, Arrieta-Escobar, J., Derrien D., Dignac, M-F., Boly, V., Ouvrard, S., Pearce, J. (2021) Open-Source Script for Design and 3D Printing of Porous Structures for Soil Science. *Technologies* , MDPI, 9 (3), pp.67.

Wang, L., Golfier, F., **Tinet, A-J.**, Chen, W., Vuik, C. (2022) An efficient adaptative implicit scheme with equivalent continuum approach for two-phase flow in fractured vuggy porous media. *Advances in Water Resources*, 163, 104186.

Amrofel, N., Dymitrowska, M., Obliger, A., **Tinet, A-J.**, Golfier, F. (2024) Drying in nanoporous media with Kelvin effect: Capillary imbibition against evaporation by smoothed particle hydrodynamics method. *Physics of Fluid*, 36, 022028.

Cavelan, A., Faure, P., Lorgeoux, C., Colombano, S., Deparis, J., Davarzani, D., Enjelvin, N., Oltean, C., **Tinet, A-J.**, Domptail, F., Golfier, F. (2024) An experimental multi-method approach to better characterize the LNAPL fate in soil under fluctuating groundwater levels. *Journal of Contaminant Hydrology*, 262, 104319.

Cavelan, A., Golfier, F., Lorgeoux, C., Colombano, S., **Tinet, A-J.**, Oltéan, C., Davarzani, D., Deparis, J., Faure, P. Climate-driven hydrological extremes increase subsurface mobility of petroleum hydrocarbons. Submitted at *Science of the Total Environment*.

Tinet, A-J., Pazdniakou, A., Dymitrowska, M., Golfier, F., Vicente, J., Prat, M., Prêt, D. Evaluation of multiphase flow properties in tight rocks using a Digital Rock Physics approach. Under writing.

1 Introduction générale

Les enjeux de la transition énergétique ou écologique font appels à des problématiques fortement couplées en géosciences. Parmi les applications à forts enjeux sociétaux et ayant une dimension multiphysique, on peut noter le stockage géologique de déchets radioactifs [1], [2], la séquestration de CO₂ [3], [4], [5], la remédiation des sites et sols pollués [6], [7], mais aussi des thématiques plus récentes comme le stockage géologique d'hydrogène [5], [8]. Ces applications impliquent des mécanismes hydrodynamiques (e.g. déplacement des gaz de corrosion, injection du CO₂, déplacement de la saumure, piégeage et remobilisation des contaminants, etc.), thermique (modification des propriétés des fluides en fonction de la température, remédiation par méthode thermique, etc.), chimique, mécanique, électrique ou encore biologiques [2], [6].

Les mécanismes mis en œuvre lors de ces couplages sont intrinsèquement liés à la microstructure, à son évolution ainsi qu'à la composition, tant de la phase solide, qu'elle soit minérale ou organique, que de la ou des phases fluides. Dans l'approche traditionnelle de physique des roches, le lien entre microstructure et comportement du massif rocheux est souvent obtenu grâce à des corrélations empiriques, issues de modèles géométriques fortement simplifiés (e.g., groupement de capillaires droits) ou encore devant être mesurés expérimentalement [9]. Ces relations souffrent de deux défauts majeurs. Tout d'abord, elles sont peu généralisables, par exemple la loi de Kozeny-Carman qui relie porosité et perméabilité donne de bons résultats sur les systèmes granulaires à faible dispersion de taille mais échoue à correctement représenter les milieux réactifs avec développement de digitations [10]. Par ailleurs, ces relations représentent difficilement les propriétés croisées, pourtant essentielles lors des couplages multiphysiques [11]. Le développement des techniques d'imageries, comme la microtomographie, et des ressources numériques, a permis l'essor d'une approche numérique dénommée Digital Rock Physics (DRP), parfois étendue en DRC (Digital Rock Chemistry) et DRB (Digital Rock Biology) pour les milieux réactifs [12]. La DRP est fondée sur le principe Image & Compute. Il s'agit d'une part d'obtenir des images des microstructures, selon différentes techniques (microfluidique, microtomographie, microscopie, etc.), et d'autre part de réaliser des simulations numériques sur la base de ces microstructures. La DRP permet alors, d'une part, de caractériser les propriétés effectives par le biais de changement d'échelle numérique, et, d'autre part, de mieux comprendre les mécanismes à l'œuvre à l'échelle des pores et leurs interactions. Cette approche a déjà fait l'objet de travaux dans de nombreux domaines des géosciences comme l'exploitation des ressources du sous-sol, la contamination-remédiation des polluants dans le sol, l'étude de la séquestration du CO₂ ou encore le stockage de déchets radioactifs [12], [13], [14]. Un des enjeux principaux de la DRP, en dehors de l'amélioration des techniques

d'imagerie et des modèles numériques, est le transfert des informations jusqu'à l'échelle du terrain. Il est donc particulièrement important de pouvoir proposer des études intégratrices avec plusieurs échelles d'observation et de modélisation [14].

Dans un premier temps, un état de l'art autour de la méthode Lattice Boltzmann, méthode numérique couramment utilisée pour la partie « compute » de l'approche DRP et au cœur de mes activités sera présenté. Les chapitres suivants présenteront des résultats pour l'imagerie et le traitement d'image (« Image »), la modélisation à l'échelle des pores (« Compute »), ainsi qu'une méthodologie intégratrice à différentes échelles (« Scale »).

2 La méthode Lattice Boltzmann

2.1 Introduction

Plusieurs auteurs ont publié des articles d'état de l'art sur les modèles à l'échelle des pores (e.g. [14]) dont certains ciblés sur des applications comme les roches réservoirs et en particulier l'exploitation d'hydrocarbures [15], [16] la séquestration de CO₂ [3], [16] l'activité microbienne [17] ou sur certains processus comme le transport réactif [10], [18] ou les écoulements multiphasiques [19]. De manière générale, ces différents auteurs regroupent les solutions numériques comme suit:

- Les solutions en capillaire ou groupe de capillaires, permettant des résolutions analytiques ou semi-analytiques [19], [20]
- Les modèles de réseaux de pores (PNM), basés sur une représentation de la géométrie porale sous forme de pores et de liens. Ces modèles nécessitent à la fois une étape de construction du réseau poral et une étape de simulation numérique, en général s'appuyant sur des modèles physiques simplifiés. Un des atouts principaux des PNM est leur capacité à modéliser des volumes importants pour un coût numérique modéré, ce qui les rend très performants. Cependant, les simplifications, tant géométriques que numériques, sont une limite de ces approches. C'est pour cela que nombre d'études s'attachent à l'amélioration des algorithmes de construction des réseaux et à la complexification des physiques simulées [16].
- Les simulations directes (ou DNS – Direct Numerical Simulation). Dans ces méthodes, la géométrie imagée est directement utilisée comme support de la simulation. Pour la modélisation des écoulements et du transport réactif, on peut retrouver ici des méthodes avec maillage (éléments finis (FEM), différences finies (FDM), volumes finis (FVM)) parfois associées avec des méthodes spécifiques (e.g. gestion des interfaces : Level Set, VOF, etc.). Ces méthodes sont le plus souvent regroupées sous le terme CFD (Computational Fluid Dynamics). On trouve enfin des méthodes dites particulières, dont la méthode Smooth Particle Hydrodynamics (SPH) [21], [22], mais aussi la méthode Lattice Boltzmann (LBM) (e.g. [23], [24]), qui nous intéresse particulièrement par la suite. Parmi les avantages souvent évoqués de cette dernière méthode, on note, par exemple, la simplicité de programmation, la facilité de parallélisation et la gestion des conditions aux limites [14], [16]. Le défaut majeur commun aux méthodes DNS est leur coût de calcul significatif, ce qui rend leur applicabilité sur des volumes d'échantillons poreux limitée en taille, de sorte que leur capacité à atteindre un VER (Volume Élémentaire Représentatif)

est parfois discutable. On notera par ailleurs que certaines conditions (e.g. haut Reynolds, haut Péclet) nécessitent le développement d'approches spécifiques pour garantir la stabilité de la méthode [25], [26].

Plusieurs benchmarks ont été réalisés pour comparer ces différentes approches à l'échelle des pores. Par exemple, Andrä et al. [11] ont comparé plusieurs méthodes pour le calcul de la perméabilité (LBM, VBS (Voxel-Based Stokes solver)) mais aussi la conductivité électrique et le module élastique sur plusieurs milieux poreux dont des grès (Fontainebleau, Béréa), un carbonate et un pack de billes. Dans le cas de la perméabilité, par exemple, une comparaison avec des données de laboratoire est réalisée. Les différentes méthodes fournissent des résultats similaires. Saxena et al. [20] ont comparé des méthodes LBM (4 types), CFD (éléments finis et volumes finis), VBS et semi-analytiques pour le calcul de la perméabilité intrinsèque de 36 milieux (capillaires de formes diverses, images 3D de grès (Castlegate, Fontainebleau, Béréa), pack de billes). Leurs résultats montrent des variations allant jusqu'à 45% autour de la moyenne. Dans leur benchmark, Yang et al. [27] se sont intéressés à l'écoulement mais aussi au transport et ont réalisé des comparaisons de propriétés effectives (perméabilité, courbe de percée) mais aussi des champs locaux (vitesse et concentration). Ils ont comparés des méthodes LBM, SPH, CFD et PNM montrant des résultats globalement similaires. Oostrom et al. [28] proposent un benchmark pour l'étude du transport de soluté non réactif et comparent des méthodes LBM, LBM couplée avec CFD, CFD et PNM ainsi que des résultats expérimentaux.

2.2 LBM – Etat de l'art et applications en milieux poreux

2.2.1 Description de la méthode

La méthode de Lattice Boltzmann repose sur l'évolution de fonctions de distribution. Ces fonctions subissent des processus de propagation et de collision, auxquels on peut rajouter une étape de forçage formant alors une équation de Lattice Boltzmann (LBE), exprimée ci-après. L'approche de forçage, dont il existe de nombreuses approches, est explicité ici avec la méthode de Guo [25], [29].

$$\mathbf{f}(\vec{x} + \delta_t \vec{e}_a, t + \delta_t) = \mathbf{f}^+(\vec{x}, t) \quad (1)$$

$$\mathbf{f}^+(\vec{x}, t) = \mathbf{f}(\vec{x}, t) - \mathbf{M}^{-1} \cdot \hat{\mathbf{S}} \cdot \mathbf{M} \{ \mathbf{f}(\vec{x}, t) - \mathbf{f}^{eq}(\vec{x}, t) \} + \delta_t \mathbf{M}^{-1} \cdot \left(\mathbf{I} - \frac{1}{2} \hat{\mathbf{S}} \right) \cdot \mathbf{M} \cdot \mathbf{F} \quad (2)$$

$$F_a = \omega_a \left(\frac{\vec{e}_a \cdot \vec{a}}{c_s^2} + \frac{(\vec{e}_a \cdot \vec{u})(\vec{e}_a \cdot \vec{a}) - c_s^2 \vec{u} \cdot \vec{a}}{c_s^4} \right) \quad (3)$$

On note \mathbf{f} le vecteur des fonctions de distributions, \vec{e}_a les directions du modèle, δ_t le pas de temps, \mathbf{f}^+ le vecteur des fonctions de distributions post-collision, \mathbf{M} la matrice de transformation, $\hat{\mathbf{S}}$ la matrice de collision, \mathbf{f}^{eq} les fonctions d'équilibre, \mathbf{F} le terme de forçage, ω_a des poids, c_s la vitesse du son, \vec{u} le vecteur vitesse et \vec{a} les forces volumiques.

Par la suite, les champs de pression (p) et de vitesse (\vec{u}) peuvent être calculés via la détermination des moments associés à ces fonctions de distribution, ρ représentant la densité de particules :

$$p = c_s^2 \sum_{a=0}^{q-1} f_a \quad (4)$$

$$\rho \vec{u} = \sum_{a=0}^{q-1} f_a \vec{e}_a + \frac{\delta_t}{2} \rho \vec{a} \quad (5)$$

Les modèles de Lattice Boltzmann sont classés selon leur dimensionnalité n et le nombre de directions utilisées lors de la discrétisation q , sous la terminologie DnQq, ce qui détermine la forme de \mathbf{M} et ω_a . Les modèles les plus classiques sont D2Q9, D3Q15 et D3Q19. Il existe plusieurs formes de la matrice de collision, dont les modèles à simple relaxation (BGK) ou multi-relaxation (MRT). L'utilisation de plusieurs temps de relaxation (MRT) permet d'améliorer la stabilité de la méthode LB [29] et de limiter certains artefacts comme une dépendance de la perméabilité en fonction de la viscosité [30]. Les modèles TRT, à deux temps de relaxation, avec un choix adapté de paramétrisation [31], [32] peuvent conserver ces améliorations tout en limitant le nombre de paramètres à déterminer. L'expression de la fonction d'équilibre \mathbf{f}^{eq} dépend de la physique étudiée.

Il a été établi que ces équations permettent de décrire les équations de Navier-Stokes (conservation de la masse et du moment) via l'expansion de Chapman-Enskog sous certaines conditions (e.g. nombre de Reynolds faible) [25]. Plusieurs auteurs ont démontré la consistance avec d'autres équations du second ordre, en particulier les équations de transport (e.g. [29]). Par ailleurs, la condition de non glissement aux interfaces fluides-solides, courante pour l'étude des écoulements en milieu poreux en milieu géologique, est traitée via le mécanisme du bounce-back (rebond), particulièrement simple d'implémentation [25]. Des conditions aux limites de type Dirichlet et Neumann ont aussi été développées [25], [33], [34].

2.2.2 Application en milieu poreux

La méthode de Lattice Boltzmann a été utilisée dans un contexte DRP pour l'évaluation de la perméabilité avec divers milieux poreux dont des roches réservoirs [11], [20] des agrégats ou de l'asphalte [35]. L'utilisation de la méthode LB a permis d'étudier l'évolution de la perméabilité lors d'un changement de microstructure, dû par exemple à la compaction des sols [36], la déformation mécanique [37], la pyrolyse des kérogènes [38] ou la dissolution des carbonates [39]. Daigle et al. [40] se sont intéressés à la perméabilité de milieux hétérogènes et à la détermination des paramètres de la loi d'Archie. Espinoza-Andaluz et al. [41] ont établi une corrélation entre tortuosité et porosité grâce à des simulations sur des modèles générés artificiellement. Shah et al. [42] se sont intéressés à l'impact de la résolution numérique sur les calculs de perméabilité. Au-delà des calculs de perméabilité, Boek et al. [43] ont comparé les champs de vitesse locaux à des données expérimentales obtenues par PIV. Plus récemment, les modèles LB d'écoulement ont permis de fournir des données d'entraînement pour le développement de méthodes d'apprentissage [44], [45].

La méthode Lattice Boltzmann permet aussi aisément la simulation d'une équation de convection-dispersion telle qu'utilisée pour le transport de soluté ou de chaleur. Par exemple, Chen et al. [46] ont étudié la convection naturelle du CO_2 dissous dans un milieu poreux fracturé.

2.3 LBM – Multi-phase flow

Depuis une trentaine d'années, les modèles LB ont été développés pour modéliser les écoulements multi-phasiques, qu'il s'agisse d'écoulements liquide-vapeur (ou simple composant) [47], ou de deux fluides distincts [48], [49], [50], [51]. Des développements plus récents se sont même intéressés à des systèmes ternaires [52], [53], [54], mais pas encore en milieu poreux.

Un des avantages de l'ensemble des approches LB, par comparaison par exemple aux approches CFD classiques (e.g. Level Set, VOF) est l'absence de techniques complexes de suivi d'interface fluide-fluide, cette dernière émergeant des résultats de simulation [51]. Les avantages classiques de la méthode LB, évoqués précédemment, (gestion facilitée des limites complexes, parallélisation) restent en grande partie valables.

Il existe différentes approches LB pour la modélisation de systèmes multiphasiques qui sont résumées dans l'état de l'art de [51]. Dans cet état de l'art, ces modèles sont classifiés en 5 catégories (Color, Inter-particle potential, Free-Energy, Mean-field theory, Stabilized diffuse interface). Wang et al. [55] utilisent quant à eux 4 groupements (Color-gradient, Pseudopotential, Free-Energy, Phase-field based). Pour la suite, ces méthodes seront regroupées en deux grands groupes, les méthodes utilisant « Double Stokes » qui vont utiliser une LBE pour représenter l'écoulement de

chaque phase et les méthodes « Champ de Phase » qui vont utiliser une LBE représentant le champ de phase. On pourra se référer aux états de l'art de [51], [56] (modèles à pseudopotentiel) et [55] (modèles à champ de phase) pour plus de détail.

Il est à noter qu'un des défauts commun à l'ensemble de ces méthodes est l'apparition de vitesses parasites aux interfaces. Cependant pour l'ensemble des approches présentées des améliorations existent pour limiter ces vitesses parasites jusqu'à l'ordre de précision de la machine [57].

2.3.1 Modèles « Double Stokes »

Modèles à gradient de couleur :

Ces modèles sont aussi souvent appelés Rothmann-Keller d'après les auteurs qui ont établi cette approche pour des LGA (Lattice Gas Automata), mais c'est Gunstensen et al. [58] qui ont appliqué en premier ce modèle en LBM. Le principe général du modèle est la résolution de deux LBE, une associée à la phase « rouge » et une à la phase « bleue » :

$$f_i^c(x + e_i \delta_t, t + \delta_t) = f_i^c(x, t) + (\Omega_i^c)^{(3)} \times ((\Omega_i^c)^{(1)} + (\Omega_i^c)^{(2)}), \quad c = r, b \quad (6)$$

Avec :

- $(\Omega_i^c)^{(1)}$ l'opérateur de collision, analogue à celui classiquement utilisé en condition monophasique et qui inclue les collisions avec l'ensemble des particules, quelle que soit leur phase fluide
- $(\Omega_i^c)^{(2)}$ l'opérateur de perturbation, basé sur le gradient de couleur, utilisé pour calculer la tension d'interface et par conséquent qui permet la séparation des phases
- $(\Omega_i^c)^{(3)}$ l'opérateur de recoloriage qui minimise⁽³⁾ les mélanges à l'interface, et permet donc de générer une interface raide

Le modèle de Gunstensen et al. [58] souffrait de plusieurs limitations, qui ont été, pour certaines, levées par des travaux ultérieurs :

- Impossibilité de traiter des phases de différentes viscosité et/ou densité [59]. Cette limitation a depuis été levée et améliorée plus récemment via la combinaison entre le modèle de [60] et l'algorithme de recoloriage de [61] qui ont permis d'atteindre des ratios de densité de l'ordre de grandeur 1000 en conditions statiques et 10 en conditions dynamiques [51], [62]. Leclaire et al. [63] ont modifié les fonctions d'équilibre et ont pu atteindre des ratios de densité de 1000 et de viscosité de 100, mais leur modèle n'est valide que pour des faibles pressions. Huang et al. [64] ont atteint des ratios de viscosité de l'ordre 1000.

- L'opérateur de perturbation ne peut être étendu aux modèles D2Q9, D3Q19, pourtant assez répandus. Des opérateurs de perturbations ont été développés par [65] (D2Q9) et [60] (D3Q19).
- Algorithme inefficace pour la simulation des écoulements multiphasiques en milieu poreux, en particulier quand les forces capillaires sont dominantes [51]. On notera que pour les applications en milieu poreux, c'est l'algorithme de recoloriage de Latva-Kokko & Rothmann [61], plus performant, qui est classiquement utilisé [66].

Modèles à pseudopotentiel :

Un des modèles multiphasique les plus couramment utilisé est le modèle pseudopotentiel, souvent aussi dénommé Shan-Chen d'après les auteurs des articles [67], [68]. Le principe général du modèle est de représenter les interactions moléculaires microscopique à l'échelle mésoscopique via un pseudopotentiel ψ (parfois appelé densité effective) qui dépend de la densité locale. Les phases se séparent alors naturellement entre valeurs à fort et à faible densité, lorsque les forces d'interactions passent un seuil critique. Il n'y a donc pas de nécessité de suivi d'interface. On trouve deux types de modèles pseudopotentiel, l'un à simple composant (e.g. système liquide-vapeur) et l'autre multi-composant (e.g. liquides immiscibles).

Le modèle consiste à utiliser une LBE pour l'équation d'écoulement de Navier-Stokes avec un terme de force supplémentaire représentant les interactions entre phase (fluide – fluide et/ou fluide – solide). Pour un modèle multicomposant, il y a autant de LBE que de composants.

La force d'interaction entre deux phases σ et σ' s'exprime comme suit, selon le formalisme de [69]:

$$\mathbf{F}_{int} = c_0 G_{\sigma\sigma'} \psi_\sigma(\mathbf{x}) \nabla \psi_{\sigma'} \quad (7)$$

Le gradient du pseudopotentiel peut alors être discrétisé de différentes manières, que l'on peut résumer comme suit [69] :

$$\nabla \psi_{\sigma'} = \sum_{i=0}^{q-1} c_i \psi_{\sigma'}(\mathbf{x} + \mathbf{e}_i) \mathbf{e}_i \quad (8)$$

$$\text{Avec : } \begin{cases} c_0 c_i = c_I & \text{si } |\mathbf{e}_i| = 1 \\ c_0 c_i = c_{II} & \text{si } |\mathbf{e}_i| = \sqrt{2} \\ c_0 c_i = c_{III} & \text{si } |\mathbf{e}_i| = \sqrt{3} \end{cases}$$

La pression globale est de plus corrigée comme suit :

$$p = c_s^2 \sum_{\sigma} \rho_{\sigma} + \sum_{\sigma, \sigma'} c_p G_{\sigma\sigma'} \psi_{\sigma}(\mathbf{x}) \psi_{\sigma'}(\mathbf{x}) \quad (9)$$

Les valeurs de coefficients les plus communément utilisés pour les modèles D2Q9 et D3Q19 sont :

$$\mathbf{F}_{int} = G_{\sigma\sigma'} \psi_{\sigma}(\mathbf{x}) \sum_{i=0}^{q-1} w_i \psi_{\sigma'}(\mathbf{x} + \mathbf{e}_i) \mathbf{e}_i \quad (10)$$

L'équation d'état peut être écrite comme suit :

$$p = c_s^2 \left(\sum_{\sigma} \rho_{\sigma} + \frac{1}{2} \sum_{\sigma, \sigma'} G_{\sigma\sigma'} \psi_{\sigma}(\mathbf{x}) \psi_{\sigma'}(\mathbf{x}) \right) \quad (11)$$

A noter que chez certains auteurs un coefficient de proportionnalité doit être appliqué à $G_{\sigma\sigma'}$ pour être comparable à cette formulation.

On peut trouver d'autres formulations des coefficients, notamment par [47]. Des valeurs de ces coefficients pour des modèle D3Q15 peuvent être trouvées dans [48], [70].

Le terme $G_{\sigma\sigma'}$ correspond à un scalaire G dans le cas d'un modèle simple composant, de signe positif car les particules d'une même phase s'attirent. Dans le cas à deux composants, les termes diagonaux de la matrice sont en général nuls, même si l'on peut trouver des exceptions (e.g. [71], [72] où seul un des deux termes diagonaux est nul). Les termes non-diagonaux sont quant à eux négatifs, les particules de deux fluides immiscibles se repoussant.

On peut retrouver dans la littérature plusieurs formulations du pseudopotentiel. Dans le cas simple composant, le pseudopotentiel est directement relié à l'équation d'état. Dans leur état de l'art, [69] comparent différentes équations d'état :

Tableau 1 : Etat de l'art des équations d'état et des pseudopotentiels utilisés dans la méthode LBM

Nom	Equation d'état	Pseudopotentiel	Autres références
Shan-Chen	$p = c_s^2 \left(\rho + \frac{G}{2} \psi^2 \right)$	ψ $= \psi_0 \left(1 - \exp\left(-\frac{\rho_0}{\rho}\right) \right)$	[67], [73], [74]
Van der Walls	$p = \frac{\rho RT}{1 - b\rho} - a\rho^2$	$\psi^2 = \frac{2}{c_s^2 G} (p - \rho c_s^2)$	[75], [76]
Redlich-Kwong	$p = \frac{\rho RT}{1 - b\rho} - \frac{a\rho^2}{\sqrt{T}(1 + b\rho)}$	$\psi^2 = \frac{2}{c_s^2 G} (p - \rho c_s^2)$	[77], [78]

Redlich-Kwong-Soave	$p = \frac{\rho RT}{1 - b\rho} - \frac{a\alpha(T)\rho^2}{1 + b\rho}$	$\psi^2 = \frac{2}{c_s^2 G} (p - \rho c_s^2)$	
Peng-Robinson	$p = \frac{\rho RT}{1 - b\rho} - \frac{a\alpha(T)\rho^2}{1 + 2b\rho - b^2\rho^2}$	$\psi^2 = \frac{2}{c_s^2 G} (p - \rho c_s^2)$	[76]
Carnahan-Sterling	$p = \rho RT \frac{1 + \frac{b\rho}{4} + \left(\frac{b\rho}{4}\right)^2 - \left(\frac{b\rho}{4}\right)^3}{\left(1 - \frac{b\rho}{4}\right)^3} - a\rho^2$	$\psi^2 = \frac{2}{c_s^2 G} (p - \rho c_s^2)$	[75], [77], [79], [80]

Les équations d'état de Carnahan-Sterling sont particulièrement utilisées dans la modélisation de deux phases à haut ratio de densité, car cette forme est celle qui limite le plus les vitesses parasites (e.g. [78]).

Dans le cas multicomposant, on utilise classiquement le pseudopotentiel $\psi_\sigma = \rho_\sigma$ (e.g. [48], [81], [82], [83]). On note parfois l'utilisation pour un des deux fluides (en général un liquide) de la forme du pseudopotentiel de Shan-Chen (Tab. 1) (e.g. [68], [71], [72]) ou encore de Carnahan-Sterling (Tab. 1) [84].

2.3.2 Modèles « Champ de Phase »

Les modèles de « Champ de Phase » consistent en la modélisation par un système de LBE de l'écoulement d'une part et du champ de phase d'autre part. Via l'expansion de Chapman-Enskog, les LBE permettent alors d'obtenir les équations de Navier-Stokes combinées avec une équation de suivi d'interface telle que:

- Equation de Cahn-Hilliard (CHE) :

$$\frac{\partial \varphi}{\partial t} + \nabla \cdot (\varphi \vec{u}) = \mathcal{M} \nabla^2 \mu_\varphi \quad (12)$$

Avec φ le paramètre d'ordre (ou de phase) qui permet d'identifier chaque phase, \mathcal{M} la mobilité et μ_φ le potentiel chimique. On notera que le potentiel chimique étant fonction de $\nabla^2 \varphi$, l'équation de Cahn-Hilliard est d'ordre 4. Par conséquent, il est important de noter que les méthodes de LB ne peuvent pas permettre d'obtenir exactement CHE via une expansion de Chapman-Enskog à l'ordre 2.

- Equation d'Allen-Cahn (ACE), forme conservative [85]:

$$\frac{\partial \varphi}{\partial t} + \nabla \cdot (\varphi \vec{u}) = \nabla \cdot \left(\mathcal{M} \vec{\nabla} \varphi \left(1 - \frac{1 - \varphi^2}{W |\vec{\nabla} \varphi|} \right) \right) \quad (13)$$

Avec W la largeur de l'interface. Contrairement à CHE, ACE est une équation à l'ordre 2.

Le premier à proposer un modèle « Champ de Phase » est [86]. Cependant, son modèle ne respecte pas la relativité galiléenne pour les termes visqueux de Navier-Stokes [49]. Inamuro et al. [87] ont développé un modèle permettant d'utiliser des fluides avec un fort ratio de densité, mais qui nécessite la résolution d'une LBE supplémentaire, correspondant à l'équation de Poisson, permettant une correction de la pression. Les modèles utilisés par [88], [89] sont basés sur le même principe.

Dans un souci de simplification, Zheng et al. [90] a développé un modèle avec uniquement 2 LBE et qui respecte la relativité galiléenne. Par contre, Fakhari et al. [91] notent que ce modèle n'est valide qu'avec l'approximation de Boussinesq et donc pour des ratios de densité de 1. Par la suite, plusieurs modèles sont développés incluant l'amélioration de la description de CHE (termes résiduels), l'utilisation de la forme potentielle du potentiel chimique et l'amélioration des calculs de gradient et laplacien [91], [92], [93]. Plusieurs auteurs se sont intéressés à l'écriture d'une LBE pour ACE avec des approches locales [85], [94], [95], non-locales [96] ou hybrides [97]. L'utilisation de ACE permet des modèles plus stables que CHE [55], bien que les solutions non-locales soient toutefois moins précises en ce qui concerne le profil de l'interface.

2.3.3 Applications aux milieux poreux

L'utilisation d'une approche LB pour modéliser les écoulements diphasiques en milieu poreux fait l'objet de nombreux articles dans la littérature. Il est possible de les regrouper globalement sous deux objectifs, d'une part des études à l'échelle locale, s'intéressant à la compréhension des régimes d'écoulement, d'autre part des études DRP visant à obtenir des propriétés effectives à l'échelle supérieure.

2.3.3.1 Compréhension des régimes d'écoulement

- Comparaison avec des données d'imagerie

Les études de [74], [98], ont comparé la distribution des phases de sols obtenues par microtomographie X et par simulation d'un état équilibre à partir d'une distribution aléatoire [98] ou d'une mixture homogène et de conditions aux limites forcées [74] avec succès.

Fakhari et al. [99] ont fait une comparaison dynamique du drainage entre simulation et données expérimentales dans une cellule microfluidique.

- Régimes d'écoulement, couplages et instabilités

S'inspirant du diagramme de Lenormand, plusieurs études ont cherché à simuler les digitations visqueuses et/ou capillaires, ainsi que les régimes de transition. Les travaux de [100] se sont intéressés à la transition visco-capillaire, Huang et al. [64] ont réalisé plusieurs simulations en faisant varier nombre capillaire et mobilité, balayant alors les différents régimes du diagramme de Lenormand. Bakhshian et al. [101] se sont aussi intéressés aux régimes d'écoulement pour différents nombre capillaires et mobilité mais pour une roche à mouillabilité mixte. Dans ses travaux, Taghilou et al. [102] ont étudié l'infiltration d'une bulle dans un milieu poreux sous différentes conditions opératoires (nombres de Reynolds, Froude, Weber, mobilité, ratio de densité). Zhang et al. [72] se sont concentrés sur la transition entre le déplacement de la phase non-mouillante dans un milieu poreux sous forme percolante ou de ganglions.

2.3.3.2 Evaluation des propriétés macroscopiques par changement d'échelle numérique

- La courbe de rétention

Les protocoles utilisés dans la littérature pour évaluer la courbe de rétention sont variés. Le plus classiquement utilisé est cependant basé sur une simulation d'une expérience de type « hanging column », le milieu poreux étant adossé à un réservoir d'entrée et de sortie dont les pressions sont variables dans le temps, permettant l'établissement des courbes de drainage comme d'imbibition. Les différents auteurs appliquent ce protocole avec quelques variations dans le choix des conditions aux limites (e.g. [48], [81], [95], [103], [104], [105], [106]). Ce protocole de simulation est particulièrement coûteux numériquement, en particulier en 3D. Si certaines modifications du protocole, comme l'utilisation d'une évolution linéaire de la pression d'entrée [105] ou l'utilisation de conditions périodiques [95] peuvent améliorer dans une certaine mesure les performances numériques, le développement de protocoles alternatifs, plus efficaces est une source d'intérêt.

Dans leurs travaux, Galindo-Torres et al. [70] s'intéressent à l'effet des conditions aux limites sur la courbe de rétention et comparent une simulation « 1D » similaire aux simulations classiques et une simulation « 3D » où l'ensemble des faces du milieu poreux est à pression constante, avec 3 faces d'entrée et 3 faces de sortie. Ils présentent aussi des travaux en co-injection, selon différents régimes. Leurs travaux montrent une certaine variabilité des résultats en fonction des conditions aux limites et des protocoles de simulation et ouvrent la discussion sur l'unicité de la courbe de rétention (pression capillaire – saturation – surface spécifique) et de la taille du VER.

Li et al. [107] utilisent une simulation basée sur des expériences d'écoulements fractionnés, ce qui leur permet d'utiliser la même simulation pour le calcul des perméabilités relatives. Dans cette configuration, le milieu poreux est initialement rempli par couches successives en phase mouillante et non mouillante, les conditions aux limites sont périodiques et une force motrice est utilisée pour générer l'écoulement. Les auteurs indiquent que, sous ces conditions, dites de régime permanent, il y a alors unicité de la courbe de rétention et absence de dépendance de l'historicité.

Ces différents travaux ont été réalisés soit sur des milieux poreux modèles, des packs de billes, des sols réels ou grès imagés par micro-tomographie. Des comparaisons avec des données expérimentales sont proposées par [48], [81], [103] (pack de billes), [105] (sable), et donnent des résultats globalement satisfaisants. Ansarinassab et al. [106] étudient l'effet de la tension d'interface et de l'angle de contact sur la courbe de rétention, Bakhshian et al. [101] proposent des courbes de rétention avec une hétérogénéité spatiale de l'angle de contact (roche à mouillabilité mixte) et Zhang et al. [72] s'intéressent au déplacement de ganglions dans un milieu nanoporeux modèle.

- Les courbes de perméabilités relatives

Dans la littérature, on retrouve globalement trois approches de simulations de la courbe de perméabilité relative [108]:

- .1 L'approche « régime permanent » : Le système est initialisé à une saturation cible (de manière aléatoire (e.g. [78], [109]), par une mixture homogène (e.g. [43]) ou encore à partir de résultats de modèles morphologiques (e.g. [110]), soumis à des conditions périodiques et à une force motrice sur une des deux phases (« single current » [43]) ou les deux phases (« co-current » ou « counter-current » (e.g. [78]). Il s'agit de l'approche la plus simple et la plus couramment utilisée. [108] notent qu'alors les conditions initiales « réalistes » ne sont pas respectées, or, la saturation est une variable au premier ordre pour calculer la perméabilité relative. Cette méthode a été utilisée pour la comparaison avec des données expérimentales [111], [112], des études paramétriques (nombre capillaire, mouillabilité, ratio de viscosité [77], [78], [111], taille des grains [112], hétérogénéité structurelle [113], hétérogénéité de mouillabilité [114])
- .2 L'approche via drainage / imbibition [101], [109], [115], [116]: Cette approche consiste à simuler un drainage et/ou une imbibition (cf. courbe de rétention), les perméabilités relatives peuvent être alors calculées via la loi de Darcy-Buckingham sous certaines hypothèses (en particulier que la chute de pression liée à l'écoulement est grande devant la pression capillaire) grâce à la méthode JBN (d'après Johnson, Bossler & Naumann [117]).
- .3 L'approche par écoulements fractionnés [107], [108], [118]: On injecte alors les deux phases dans le système. [107] utilisent la même simulation que pour la courbe de rétention. [108]

initialisent la distribution des phases via une approche morphologique permettant à la phase non-mouillante d'occuper les pores préférentiellement les plus grands et se situant plutôt au centre des pores quand la phase mouillante est localisée dans les pores fins ou sous forme de films. De façon à permettre un écoulement en régime permanent, ils proposent un système de rétroaction permettant de contrôler les pressions d'injection.

Ces différents travaux ont été réalisés soit sur des milieux poreux modèles, des packs de billes, des sols réels ou des grès imagés par micro-tomographie. Des comparaisons avec des données expérimentales, principalement sur des milieux granulaires simples ou des roches réservoirs, sont proposées par [111] (pack de billes), [109] (grès de Berea et de Bentheimer), [110] (grès de Bentheimer et sable compacté) mais restent rares ou partielles (pas de comparaison locale des champs de vitesse par exemple). Plusieurs auteurs se sont intéressés à l'effet de différents paramètres sur les courbes de perméabilités relatives, en particulier le nombre capillaire [77], [78], [107], la mobilité [78], [112], l'angle de contact [77], [78] et sa variabilité dans l'espace [101], [114], [118], [119]. Sur ce dernier point, Zhao et al. [120] proposent une relation liant la perméabilité relative à différentes propriétés morphométriques : la saturation en fluide, l'interface spécifique, une longueur d'interface et la tortuosité du fluide. Ghassemi et al. [112] se sont intéressés à la taille des grains et Dou et al. [113] à l'hétérogénéité structurelle. Ils montrent entre autres une importance significative de cette dernière sur la perméabilité relative et sur le phénomène de lubrification par lequel la perméabilité en phase non mouillante peut dépasser la perméabilité à saturation du fait du glissement sur les films de phase mouillante.

2.4 LBM – Interactions Fluide-Solide

Un des atouts de la méthode Lattice Boltzmann est la simplicité de traitement des conditions à la limite des interfaces fluides-solides, en particulier la condition classique de non-glissement. A contrario, une des limites de la méthode est qu'elle s'appuie sur une lattice, i.e. une grille cartésienne, ce qui est intéressant pour la modélisation d'images pixelisées mais peut poser problème à la fois pour la représentation d'interfaces courbes et pour la simulation de limites fluides-solides évolutives. Ces différentes problématiques sont explicitées ci-après.

2.4.1 Condition de non-glissement

La condition de non-glissement est réalisée par des méthodes dites de bounce-back, qui consistent à inverser les directions des distributions après collision avec le mur et qui sont particulièrement simple d'implémentation. Il existe plusieurs méthodes de bounce-back, dont les méthodes full-way

et half-way. La méthode half-way présente l'avantage d'être au second ordre en précision [25]. Pour des interfaces non-conformes, les méthodes bounce-back perdent en précision [121].

2.4.2 Condition de glissement

La majorité de la littérature s'intéressant aux conditions de glissement concerne l'écoulement des gaz raréfiés et donc l'effet Knudsen. Le comportement des gaz raréfiés peut s'éloigner de la description continue prédite par l'équation de Navier-Stokes. Pour caractériser cela, on utilise le nombre de Knudsen, rapport de la longueur de parcours moyen d'une molécule de gaz sur une longueur caractéristique du système, en général la taille des pores. Lorsque ce rapport est élevé les interactions avec les molécules de surfaces deviennent importantes au regard de celles entre molécules de gaz. On distingue alors 4 régimes d'écoulement. Le régime continu ($Kn < 0.01$), qui correspond au comportement classique, modélisable par l'équation de Navier-Stokes. Le régime de glissement ($0.001 < Kn < 0.1$) pour lequel les effets non-continus sont limités à une fine couche proche du mur. Pour le régime de transition ($0.1 < Kn < 10$), cette couche, appelée couche de Knudsen, occupe une part plus importante du domaine d'écoulement. Au-delà de ces valeurs, les équations en milieu continu de Navier-Stokes ne sont plus applicables et c'est alors la théorie cinétique des gaz qui s'applique, on parle alors de régime d'écoulement moléculaire libre. Les méthodes présentées ci-après ont pour but de modéliser le régime de glissement et, pour certaines, le régime transitoire.

On note cependant d'autres cas d'applications nécessitant un glissement aux parois, comme la simulation d'un écoulement en conditions cisailantes (e.g. [122], [123]) ou l'écoulement sur une surface non-mouillante (hydrophobicité) (e.g. [124], [125], [126]). Dans ce dernier cas, la condition de glissement est en fait traitée via un modèle multiphasique.

2.4.2.1 Glissement de Maxwell

La condition de glissement de Maxwell peut être exprimée à l'ordre 2 comme suit :

$$u_{wall}^{slip} = A_1 Kn \left(\frac{\partial u}{\partial n} \right)_{wall} + A_2 Kn^2 \left(\frac{\partial^2 u}{\partial n^2} \right)_{wall} \quad (14)$$

Avec u la vitesse, n la normale au mur, Kn le nombre de Knudsen et A_1 et A_2 des paramètres.

Il existe différentes approches pour satisfaire cette condition avec la méthode de Lattice Boltzmann. La première catégorie consiste à s'inspirer de la théorie cinétique des gaz. On trouve parmi ces méthodes [127] :

- La Diffusive Bounce-back wall Boundary Condition (DBBC) qui consiste en une combinaison entre la condition de non-glissement (Bounce-back) et une condition de glissement qui représente le comportement des molécules à l'interface fluide-solide [127], [128], [129]. Plus précisément, le principe représenté ici est que les molécules de gaz impactant le mur perdent la mémoire de leur direction et sont dispersées selon une distribution de Maxwell-Boltzmann à la température et à la vitesse du mur.
- La Bounce-back Specular-reflection Boundary Condition (BSBC) qui consiste en une combinaison entre la condition de non-glissement et une condition de réflexion spéculaire (i.e. « miroir ») [127], [130].

Le coefficient assurant la pondération entre les conditions de non-glissement et les autres conditions est appelé coefficient de combinaison. Ce coefficient, s'il est calculable de manière analytique pour l'écoulement entre deux plaques planes, devient très difficile à estimer pour une géométrie complexe (e.g. en milieu poreux) [131]. Par ailleurs, ces méthodes sont complétées par une dépendance du temps de relaxation avec le nombre de Knudsen.

Un des points particulièrement critique de ces méthodes est leur difficulté à traiter des interfaces non-conformes (e.g. interfaces courbes) [127], [132], [133]. Une solution alternative, appliquée à la condition de glissement de Maxwell à l'ordre 1 (ou glissement de Navier) consiste à utiliser l'expansion de Taylor pour exprimer la condition à la limite. On trouve parmi ces méthodes les interpolations linéaires amont (MGULI = upwind linear interpolation) et aval (MGDLI = downwind linear interpolation), le schéma linéaire centré (CLI = central linear interpolation) ou encore le schéma à l'ordre 2 LSOB (Local Second-Order Boundary) [133].

2.4.2.2 Glissement de Langmuir

Pour le modèle de glissement de Langmuir (e.g. [134], [135], [136]), on considère que les molécules de gaz ne se réfléchissent pas directement, mais résident pour une brève période de temps au niveau de l'interface fluide-solide du fait des forces intermoléculaires entre les molécules de gaz et les atomes en surface du solide, autrement dit, il y a adsorption d'une partie du gaz. Après ce laps de temps, les molécules rebondissent sur la surface. C'est alors ce décalage temporel qui génère une vitesse de glissement.

La condition de glissement de Langmuir peut être exprimée comme suit :

$$\mathbf{u}_{wall}^{slip} = (1 - \alpha)\mathbf{u}_{gas} + \alpha\mathbf{u}_{wall} \quad (15)$$

Avec \mathbf{u}_{gas} la vitesse du gaz à proximité du mur et \mathbf{u}_{wall} la vitesse du mur.

Ren et al. [137] ont associé un glissement de Langmuir pour modéliser les interactions entre les molécules de gaz libres et celles adsorbées avec une condition de glissement de Maxwell (modèle BSBC) pour modéliser les interactions entre molécules de gaz et solide.

2.4.2.3 Applications en milieu poreux

Dans la majorité des articles, des écoulements en canaux, avec éventuellement un obstacle sont étudiés. Chai et al. [129] se sont intéressés à un milieu poreux simplifié (arrangement régulier de billes) pour étudier l'effet du glissement et l'applicabilité de la correction de Klinkenberg sur la perméabilité intrinsèque. Ils ont démontré que pour un nombre de Knudsen suffisamment élevé, une correction de second ordre était nécessaire. Chen et al. [138] se sont intéressés à l'écoulement dans des shales mais ont utilisé des conditions de non-glissement et un modèle de type Dusty Gas pour obtenir l'effet Klinkenberg. Zhao et al. [139] ont modélisé les champs de vitesse dans une image reconstituée à partir de coupes MEB d'une roche de schiste du Sichuan.

2.4.3 Interfaces non-conformes

2.4.3.1 Méthodes

Des états de l'art des méthodes associées à l'approche LBM pour la prise en compte des interfaces non-conformes à la grille cartésienne utilisée en LBM sont présentées dans [140], [141]. On dénote en particulier les approches suivantes :

- Méthodes d'interpolation (IBB = Interpolated Bounce Back) : Cette méthode, qui réalise une interpolation pour mieux prendre en compte la position du rebond, est particulièrement simple d'utilisation. Elle est en général appliquée pour représenter des interfaces non-conformes qui n'évoluent pas (e.g. [142], [143]). Arnoult et al. [144] utilisent la méthode IBB pour l'étude de la dissolution d'un solide. Cette méthode est considérée comme moins précise, en particulier elle est sujette à des erreurs dépendantes de la viscosité, pouvant être atténuées par un modèle de collision MRT.
- Méthodes de frontières immergées (IBM = Immersed Boundary Methods). Les méthodes de frontières immergées sont basées sur l'utilisation d'un set de nœuds lagrangiens, permettant de représenter la frontière concernée [140]. Il existe de nombreuses méthodes de frontières immergées, utilisant notamment différentes approches de pénalisation et de forçage (e.g. [145], [146], [147], [148], [149]).
- Méthodes Volume of Pixel (VOP) et Immersed Moving Boundary (IMB) : Ces méthodes sont basées sur le même concept : mixer la condition de bounce-back et la collision-propagation avec une pondération liée à la proportion du voxel occupé par les phases

solides et fluides. La méthode IMB est en général utilisée dans le contexte du couplage hydro-mécanique avec déplacement de particules [150] et la méthode VOP est plus classiquement utilisée dans le contexte du transport réactif (e.g. dissolution / précipitation) [151], [152].

- Méthodes de raffinement [153], [154].

2.4.3.2 Applications aux milieux poreux

Un premier champ d'application communément trouvé pour les milieux poreux est le déplacement de particules, qu'il s'agisse de la sédimentation de particules [145], [150], du transport de particules ou encore de l'érosion [155] ou du dépôt de particules [156]. Il s'agit alors souvent d'un couplage HM (Hydro-Mécanique) et alors la méthode LB est en général couplée avec une méthode de modélisation du comportement mécanique des particules comme les DEM (méthodes des éléments discrets) (e.g. [155], [157]), ou un modèle de collision [146], [158]. Dans le cas de milieux plus consolidés, des études se sont intéressées à la compaction de proppant et au transport d'hydrocarbures [157], ou encore à l'hydrofracturation [159].

Un second champ d'application est le domaine du transport réactif. Des études ont été réalisées sur le transport réactif de plusieurs espèces avec des réactions de dissolution et de précipitation [151], [160], la dissolution dans un milieu fracturé [152] ou encore à la dissolution dans un milieu poreux hétérogène en se basant sur une image associant microscopie électronique à balayage (MEB) et spectroscopie (EDS – energy dispersive x-ray spectroscopy) d'un grès [161]. Gao et al. [162] ont étudié la dissolution de la calcite avec un mélange eau-CO₂ et ont comparé les simulations avec des données expérimentales. Szymczak et al. [163], à l'aide d'un modèle couplant LBM et marche aléatoire, ont étudié la dissolution de fractures et la formation de wormholes associés.

Dans leurs travaux, Derksen et al. [164] étudient ces deux champs d'applications simultanément en s'intéressant à l'écoulement de particules se dissolvant.

2.5 Couplages

Ainsi que présenté ci-avant, plusieurs champs d'applications existent pour des systèmes couplés, pouvant inclure des mécanismes hydrodynamiques, thermiques (e.g. [165]), chimiques, géophysiques (e.g. [166]), mécaniques, biologiques ou encore électriques. Il existe plusieurs approches de couplage :

- Les couplages LBM purs

Dans ce cas de figure, plusieurs approches LBM sont associées pour modéliser différents mécanismes. Ce type de couplage est particulièrement utilisé pour la modélisation du transport de masse, réactif ou non [28], [141]. On retrouve ainsi plusieurs travaux couplant écoulement et transport par des méthodes LBM pour la simulation de la dissolution (e.g. [152], [154], [167]), de la précipitation (e.g. [168]) ou encore de la fusion ou solidification (e.g. [169]). Hao et al. [170] s'intéressent à la dissolution par de l'acide du K-feldspath, incluant des réactions secondaires, en incluant les effets de température, en couplant des méthodes de Lattice Boltzmann associées à l'écoulement, au transfert de masse et de chaleur dans le contexte du stockage de CO₂. Zhang et al. [171] ont aussi utilisé un modèle THC (Thermo-Hydro-Chimique) pour l'étude de la dissociation des hydrates de méthane.

- Les couplages hybrides

Les modèles LBM peuvent être aussi associés à des méthodes classiques de CFD (Computational Fluid Dynamics) comme les volumes finis (e.g. [161], [172]) ou encore les différences finies (e.g. [26], [173]) pour la modélisation du transport réactif. Dapelo et al. [26] utilisent un couplage avec la méthode des différences finies pour le transport pour pallier aux instabilités de la méthode LBM à simple temps de relaxation pour les hauts Péclet. D'autres solutions, comme la marche aléatoire [163] ont été utilisées. Par ailleurs, la méthode LBM peut bénéficier de couplages avec des méthodes numériques particulièrement adaptées à certains mécanismes. On notera par exemple les couplages avec des méthodes numériques de mécanique du solide, en particulier la méthode DEM mais aussi des méthodes de collision, qui ont été utilisées pour la simulation de la fracturation [157], [174], de l'érosion [155] ou encore du transport de particules [150]. En ce qui concerne la prise en compte de modèles géochimiques complexes, Patel et al. [175] ont proposé un couplage avec PHREEQC. Enfin, des couplages avec des modèles biologiques ont été aussi développés pour l'étude des biofilms [176], par exemple pour l'étude de la biodégradation des contaminants [172]. Vogel et al. [177] ont aussi couplé un modèle biologique avec un modèle LBM de diffusion pour l'étude de la biodégradation de la matière organique dans les sols.

2.6 Conclusion

Les modèles LBM peuvent donc s'appliquer dans de nombreux problèmes de transferts en milieu poreux qu'il s'agisse d'écoulement, de transport réactif, de suivi d'interface mais aussi de transferts thermiques, de couplages hydromécaniques et même du déplacement des ondes sismiques. Enfin, des modèles de milieu continu (échelle de Darcy) ont été développés permettant, par exemple, l'étude des systèmes fracturés (e.g. [178], [179]). Il est cependant essentiel de noter que les modèles

LBM présentent plusieurs faiblesses dont le coût de calcul, malgré la parallélisation massive possible, mais aussi des limites (e.g. haut Reynolds, haut Péclet) toutefois sans cesse repoussées par les développements numériques.

Le développement et l'utilisation des modèles Lattice Boltzmann présente donc encore de nombreux challenges. On peut par exemple noter que beaucoup d'utilisations sont réalisées sur des géométries simplifiées, comme un capillaire droit ou encore des milieux poreux modèles, et donc que l'application de ces méthodes à des milieux poreux réalistes, tant en ce qui concerne leur hétérogénéités mais aussi des mécanismes qui y adviennent et de leur couplages reste un domaine de recherche actif. Pour pouvoir choisir les hypothèses de modélisation mais aussi les évaluer, l'utilisation d'expérimentations, et en particulier de l'imagerie, tant pour la caractérisation des milieux poreux que pour la compréhension de leur évolution est importante. Enfin, si les modèles à l'échelle des pores permettent de mieux comprendre les mécanismes élémentaires et leurs interactions, l'étude de certains impacts ne peut se faire qu'aux échelles supérieures, d'où la complémentarité entre travaux à de multiples échelles.

Dans le cadre de mes travaux, j'ai développé depuis plus de 10 ans, un code LBM 'maison' utilisé pour l'ensemble des études présentées dans les sections suivantes. Cet outil, ainsi que des travaux expérimentaux associés à l'imagerie ou à plus grande échelle et des modélisations à plus grande échelle me permettent d'étudier ces différents questionnements, en particulier appliqués à différentes thématiques des géosciences environnementale. Dans le chapitre 3, l'imagerie est utilisée pour mieux comprendre et caractériser la microstructure et son évolution de milieux poreux. Dans le chapitre 4, l'utilisation de la méthode Lattice Boltzmann est appliquée à différents mécanismes de la migration des gaz de corrosion dans le contexte du stockage de déchets radioactifs. Enfin, la complémentarité de travaux à de multiples échelles est illustrée dans le chapitre 5, dans le contexte des sites et sols pollués.

3 IMAGE : Application aux sols et roches réactives

3.1 Introduction

Les techniques d'imageries sont de plus en plus avancées et permettent non seulement de décrire la microstructure des milieux poreux mais de comprendre leur évolution. Une première approche expérimentale permettant d'imager de manière non destructive le comportement des fluides à l'échelle des pores s'appuie sur la microfluidique (e.g. [180], [181]). Il s'agit alors d'étudier des réseaux poreux transparents en pseudo-2D pour lesquels l'observation visuelle est aisée. Une technique d'imagerie particulièrement populaire pour les milieux poreux tels que les échantillons rocheux et de sols est la micro-tomographie aux rayons X (μ CT). Cette technique permet d'imager en 3D des échantillons de manière non destructive. Dans leur état de l'art, Cnudde et al. [182] relèvent des utilisations pour la caractérisation de l'espace poral (porosité, distribution de tailles de pores, géométrie des pores), des grains, des fractures, ainsi que certaines applications dynamiques (e.g. fracturation, écoulement) si les processus étudiés sont plus lents que le temps d'acquisition. Une autre approche, particulièrement utilisée pour les milieux nanoporeux comme les shales ou l'argilite sont les méthodes BIB-SEM et FIB-SEM qui permettent d'atteindre des résolutions encore plus fines [183]. Toutes ces techniques, couplées au traitement d'image permettent de mieux comprendre l'organisation structurelle des milieux poreux (microstructure, saturation, etc.) et son évolution.

3.2 Objectifs et verrous scientifiques

Dans ce chapitre, je m'intéresse aux questionnements suivants :

- **Explicitation des liens en microstructure des sols, propriétés morphologiques et physiques**

Les transferts de fluides, en particulier l'infiltration de l'eau mais aussi la filtration des contaminants, qu'ils soient solubles ou non font partie des fonctionnalités essentielles des sols. Pour les caractériser, une bonne connaissance des propriétés hydrodynamiques, comme la perméabilité relative, la courbe de rétention, la dispersion ou encore les coefficients de transferts entre phases est fondamentale. Ces propriétés sont dépendantes entre autres de la microstructure du sol. Cette dernière est particulièrement complexe à la fois par son hétérogénéité (e.g. porosité inter et intra-agrégats, macropores issus de l'activité de la macrofaune, etc.) mais aussi de son évolutivité (e.g. impact des racines, de la macrofaune, de l'usage des sols, etc.). Dès lors, une meilleure capacité de

prédiction de ces propriétés en fonction de la microstructure est essentielle. Dans ce but, l'approche DRP est une approche pertinente.

L'acquisition d'image de sols, nécessaire à l'approche, présente ses propres défis, à la fois liés à l'étalement des tailles de pores, mais aussi, et surtout, à la présence de matière organique pouvant poser des difficultés d'identification, entre autre vis-à-vis de la phase aqueuse. L'identification de la matière organique est aussi essentielle pour associer les propriétés physiques locales adaptées, en particulier l'angle de mouillage. De manière plus générale, l'identification des propriétés physiques et/ou chimiques locales à une image de microtomographie fait partie des défis à venir.

L'utilisation de modèles numériques locaux peut être limitée par leur coût important. Dès lors, l'établissement de liens entre caractéristiques morphologiques (e.g. la porosité, la tortuosité, les surfaces spécifiques, etc.), souvent rapides à évaluer, et propriétés physiques est une source d'intérêt (cf section 3.3). L'utilisation de modèles morphologiques (cf section 3.3), basés sur des traitements d'images, au prix d'hypothèses simplificatrices importantes, peuvent aussi présenter une alternative efficace à des modèles numériques plus complets, mais plus coûteux. Il est cependant essentiel d'en identifier les limites.

- **Compréhension et observation directe du comportement de systèmes réactifs couplés**

Les systèmes réactifs couplés sont monnaie courante en géosciences et s'associent à de nombreuses applications (e.g. stockage de gaz, pollution-remédiation du sous-sol, etc.). La compréhension de ces systèmes nécessite, entre autres, une meilleure caractérisation, tant qualitative que quantitative, des mécanismes à petite échelle, en particulier aux interfaces entre phases et/ou milieux. Si la microtomographie aux rayons X permet d'observer la microstructure de manière non destructive, cette technique nécessite un temps d'acquisition significatif et de fait souvent incompatible avec l'observation de dynamiques réactives, trop rapides. Des améliorations récentes s'intéressent d'ailleurs à l'accélération de l'acquisition [184]. Actuellement, l'observation directe de la dynamique des systèmes réactifs peut se faire à l'aide de techniques de microfluidique [180]. L'étude de l'impact de certains couplages, comme par exemple le rôle des forces gravitaires lors de la dissolution (cf section 3.4), peut alors être étudiée en termes de phénoménologie mais aussi quantifiée à l'aide de techniques d'analyse d'image. Un défi reste alors ouvert quant à la transférabilité de ces informations, obtenues en quasi-2D, vers la 3D [180]. A plus long terme, le couplage avec des techniques de modélisation, dont celles développées dans les chapitres 2 et 4, est une solution.

3.3 Applications en science du sol

3.3.1 Caractérisation des sols

Les travaux présentés ci-après sont issus du projet H2020 PROTINUS, et ont été publiés dans les articles suivants :

Sbiota, E., Mukunoki, T., Oxarango, L., Tinet, A. J., Golfier, F. (2019). Micro- and macro-scale water retention properties of granular soils: contribution of the X-Rat CT-based voxel percolation method. Soil Research, 57 (6), 575-588.

Dunwig, C., Prado, B., Tinet, A. J., Delmas, P., Dal Ferro, N., Vandervaere, J. P., ... & Morari, F. (2019). Impacts of land use on hydrodynamic properties and pore architecture of volcanic soils from the Mexican Highlands. Soil Research, 57(6), 629-641.

Müller, K., Dunwig, C., Tinet, A. J., Strozzi, A. G., Spadini, L., Morel, M. C., & Charrier, P. (2019). Orchard management and preferential flow in Andosols—comparing two kiwifruit orchards in New Zealand. Soil Research, 57(6), 615-628.

Les données issues d'imagerie peuvent être traitées de diverses manières de façon à obtenir des propriétés morphologiques telles que la taille des pores ou encore la tortuosité. Des modèles morphologiques, basés sur le traitement d'image, permettent d'évaluer, très rapidement, la courbe de rétention [185]. Ces modèles sont en général basés sur l'équation de Laplace, qui relie pression capillaire et taille de pores. Dans [186], un modèle morphologique, dénommé Voxel Percolation Method (VPM) est évalué au regard de données expérimentales et d'images μ CT. Trois milieux granulaires sont étudiés, le sable de Toyoura, le sable de Keisa et des billes de verres. Dans les trois cas, les résultats obtenus par VPM sont très satisfaisants, sur l'ensemble de la courbe de rétention (cf Figure 1a).

Une comparaison de la répartition des différentes phases (Figure 1b) montre cependant certaines limites, entre autres liés au sous-échantillonnage, la taille du domaine modélisé, bien que grand devant le Volume Élémentaire Représentatif, étant différent du domaine expérimental, générant des différences dans les conditions aux limites locales. Par ailleurs, l'approche est limitée pour la prise en compte d'écoulements préférentiels, et plus particulièrement des couplages visqueux. Malgré tout, les comparaisons locales restent globalement satisfaisantes, en particulier pour les milieux les plus homogènes. Ainsi qu'indiqué par [187], des questionnements toutefois se posent sur la capacité de tels modèles de reproduire la courbe en imbibition.

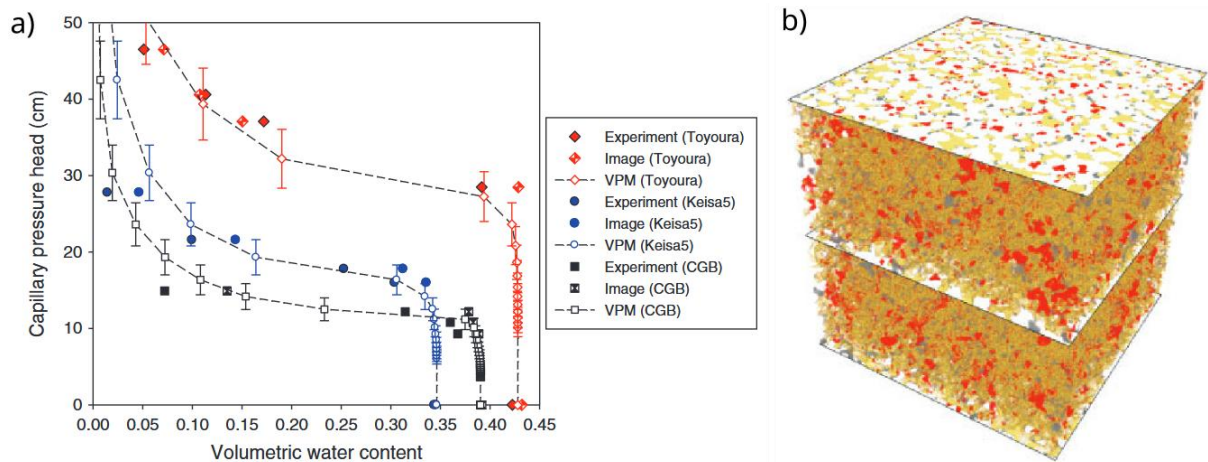


Figure 1 a) Courbes de rétention expérimentales, calculées à partir des images μ CT et issues du modèle VPM. b) Comparaison locale de distribution de la phase gazeuse (jaune = correspondance image et VPM, rouge et gris = non correspondance), appliquée au sable de Toyoura (issu de [186])

Dans un contexte agronomique, la microstructure du sol joue un rôle significatif dans la promotion ou la dégradation de fonctionnalités essentielles du sol. En effet, la microstructure affecte, par exemple, l'accessibilité de l'eau et des nutriments aux plantes, la capacité des sols à soutenir une culture, sa performance et sa durabilité. Dès lors, dans le cadre du projet Européen PROTINUS, plusieurs études ont été menées pour étudier les différences de microstructure des sols sous différents usages et les liens entre propriétés physiques et morphologiques. Pour cela les différents échantillons ont été caractérisés expérimentalement, imagés via microtomographie aux rayons X (μ CT) et les images ont ensuite été traitées par analyse d'image.

Une première étude s'est intéressée aux sols volcaniques [188], qui représentent une ressource essentielle et sont parmi les sols les plus fertiles au monde. Ces propriétés peuvent cependant être dégradées lors de leur exploitation agricole. L'étude s'est intéressée à différentes pratiques agricoles, en particulier au Mexique, dont l'alternance entre cultures (maïs et blé) et la mise en jachère sur deux types de sols dont un Andosol (sol volcanique). L'analyse morphologique s'est en particulier concentrée sur la porosité percolante, les tailles de pores, leur tortuosité, leur connectivité et la surface spécifique. Les propriétés hydrodynamiques mesurées expérimentalement incluent la courbe de rétention, les conductivités hydrauliques et la distribution de tailles de pores. Les données d'imagerie ont permis d'apporter un nouvel éclairage sur la taille, la forme ou la connectivité des macropores (en jaune sur la Figure 2).

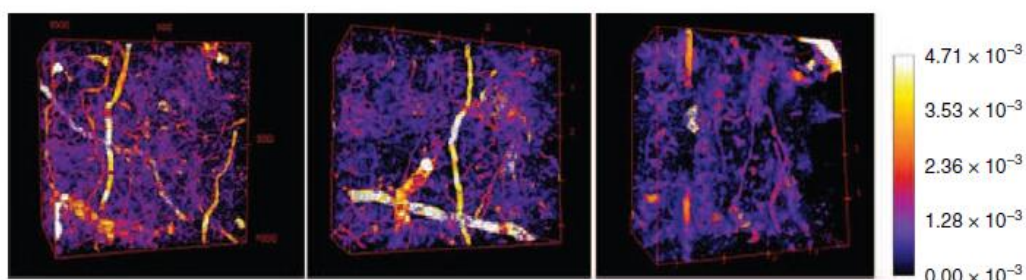


Figure 2 Images μ CT recolorisées selon les tailles de pores pour différents échantillons de sols (Andosol avec culture de maïs à deux profondeurs (0-5cm – à gauche et 30-35cm – au centre) et terre indurée sous jachère (à droite) (issu de [188])

L'étude des propriétés physiques et morphologiques ont mis en avant les différences entre pratiques agricoles et ont permis d'établir des recommandations, comme de minimiser le labour (car il affecte le réseau poral) ou de préférer les rotations maïs – jachère à maïs – blé (moins d'impact sur la rétention d'eau et la conductivité hydraulique).

Une seconde étude s'est intéressée aux vergers de kiwi en Nouvelle-Zélande [189] et plus particulièrement au déplacement du cuivre, traditionnellement utilisé comme fongicide. L'objectif était de comprendre comment les modifications de la microstructure, observables grâce au μ CT (Figure 3) ainsi que l'évolution des propriétés du sol (teneur en matière organique, etc.) affectent la capacité de transport et de filtrage du sol et par conséquent comment l'améliorer via des pratiques agricoles.

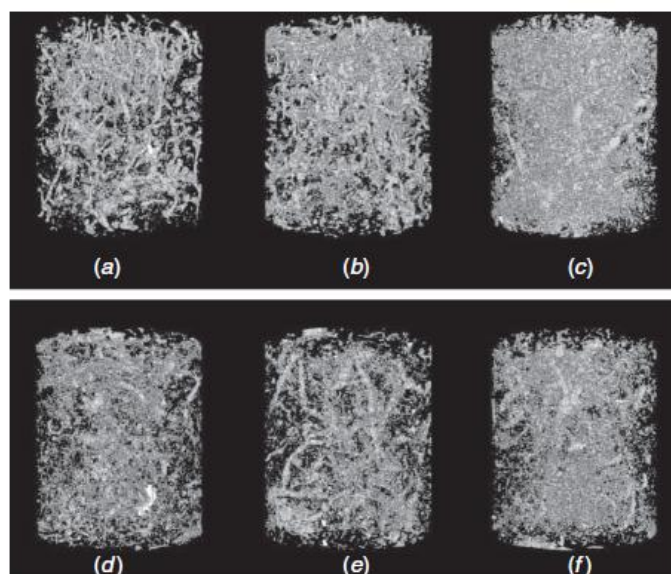


Figure 3 Images μ CT pour différents échantillons de sols et modes de culture (biologique – haut et raisonnée – bas) (issu de [189])

Dans cette étude, les courbes de percée d'un traceur (Figure 4) ont été analysées à l'aide du logiciel OM-MADE [190], initialement développé pour les systèmes karstiques, permettant de modéliser des milieux multimodaux. Ce logiciel a permis d'obtenir les propriétés hydrodynamiques permettant de modéliser les courbes de percées, dont, en particulier, les différentes gammes de pores, leurs proportions et leurs caractéristiques (vitesse de déplacement, dispersivité, termes d'échange, etc.).

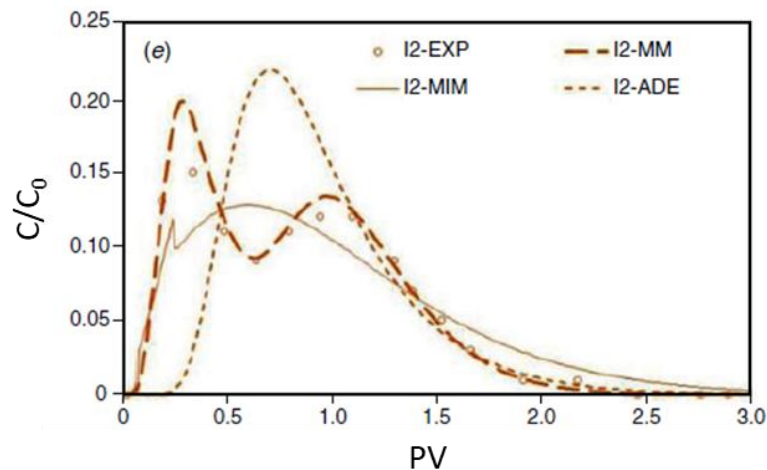


Figure 4 Courbe de percée pour un échantillon de sol d'un verger de kiwi sous agriculture raisonnée, concentration normalisée par la concentration initiale vs volume de pore injecté. Comparaison des données expérimentales (EXP), analytiques (ADE) et obtenue par OM-MADE avec un modèle bimodal Mobile-Immobilisé (MIM) et Mobile-Mobile (MM) (issu de [189])

Il a ensuite été possible d'établir des liens entre ces propriétés et la microstructure. Par exemple, les caractéristiques morphologiques mesurées via la μ CT peuvent permettre de prédire le temps d'arrivée à 5% des composés en solution ainsi que le facteur de retenue (quantité de fluide initial restant dans le milieu après l'infiltration d'un volume de pore de fluide injecté). Quand ces propriétés microstructurelles sont couplées avec les données telles que la teneur en matière organique et le pH, la prédiction de la distribution du cuivre dans le sol est améliorée.

Pour ces deux études, il est important de noter qu'elles doivent être consolidées par d'autres études, sur plus de sols, pour gagner en représentativité. Cependant, ces travaux peuvent être lourds à mener, l'échantillonnage de sols, non consolidé, n'est pas évident et la variabilité et la nature évolutive des sols en proche surface rendent le nombre d'étude nécessaire potentiellement très important. C'est pourquoi il peut être intéressant de proposer des milieux analogues, à géométrie et à constitution contrôlée. Pour cela, l'impression 3D est un outil particulièrement intéressant.

3.3.2 Impression 3D

Les travaux présentés ci-après sont issus des projets de l'université de Lorraine 3DSoils, et ont été publiés dans les articles suivants :

Arrieta-Escobar, J. A., Derrien, D., Ouwrad, S., Asadollahi-Yazdi, E., Hassan, A., Boly, V., Tinet, A.J., Dignac, M. F. (2020). 3D printing: An emerging opportunity for soil science. Geoderma, 378, 114588.

Bedell, R., Hassan, A., Tinet, A. J., Arrieta-Escobar, J., Derrien, D., Dignac, M. F., ... & Pearce, J. M. (2021). Open-Source Script for Design and 3D Printing of Porous Structures for Soil Science. Technologies, 9(3), 67.

Dans l'article de revue [191], récapitulant les articles de 2000 à 2019 sur les applications en sciences du sol et en agronomie de l'impression 3D, sont discutées les différentes techniques (e.g. impression par fils (Fused deposition modeling – FDM), stéréolithographie, impression par poudres (Laser sintering – SLS), mais aussi les matériaux et en particulier des matériaux biocompatibles (e.g. cellulose, lignine, etc.)). Il est entre autres identifié que l'impression 3D peut servir à la conception d'appareils de mesures dont les biocapteurs. Une application particulièrement intéressante est l'utilisation de l'impression 3D pour créer des analogues de sols, à géométrie et composition contrôlée et reproductibles. Les limitations évoquées sont le colmatage des pores par de la matière (e.g. poudre) résiduelle et la précision accessible, en particulier la capacité à reproduire la microporosité. La taille minimale évoquée en termes de précision des tailles de pores étant 60 μm . Enfin, la nature des matériaux peut poser questions en ce qui concerne leur comportement physico-chimique, qu'il s'agisse de la biocompatibilité, ou encore de l'hydrophobicité.

Dans le cadre des projets 3DSoils, une première étude de faisabilité quant à l'impression 3D pour représenter des sols, tant le milieu granulaire que des zones d'écoulements préférentiels comme l'espace poral généré par des racines a été étudié. Dans un premier temps, l'impression 3D avec trois techniques du commerce a été réalisée à partir d'une image 3D de sable grossier obtenue par μCT (Figure 5). On y observe les limites des différentes techniques quant à la capacité à reproduire la porosité mais aussi la connectivité. L'échantillon imprimé par SLS est complètement colmaté par la poudre, qui n'a pu être évacuée. L'échantillon imprimé par FDM, s'il semble le plus proche en termes de microstructure, présente une microporosité intra-granulaire non contrôlée.

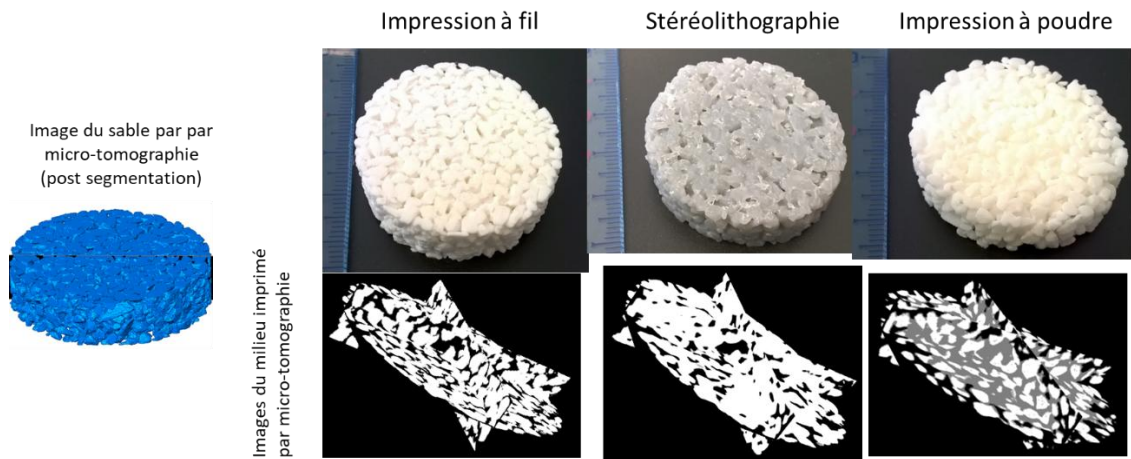


Figure 5 Résultats d'impression 3D d'un sable grossier, comparaison de trois techniques différentes.

Dans un second temps, un outil numérique a été développé pour générer des microstructures représentatives des sols dans un format compatible avec les imprimantes 3D. Pour cela, une extension du logiciel IceSL a été développée [192]. L'outil permet la sélection d'une ou plusieurs tailles de grains, l'ajout de rugosité de surface ou encore l'intégration d'un espace poral correspondant à un système racinaire (Figure 6). Plusieurs échantillons d'analogues ont été imprimés puis analysés en termes de caractéristiques morphologiques à partir d'une image μ CT et leurs propriétés physiques ont été calculées à l'aide d'une approche DRP en utilisant un modèle LBM.

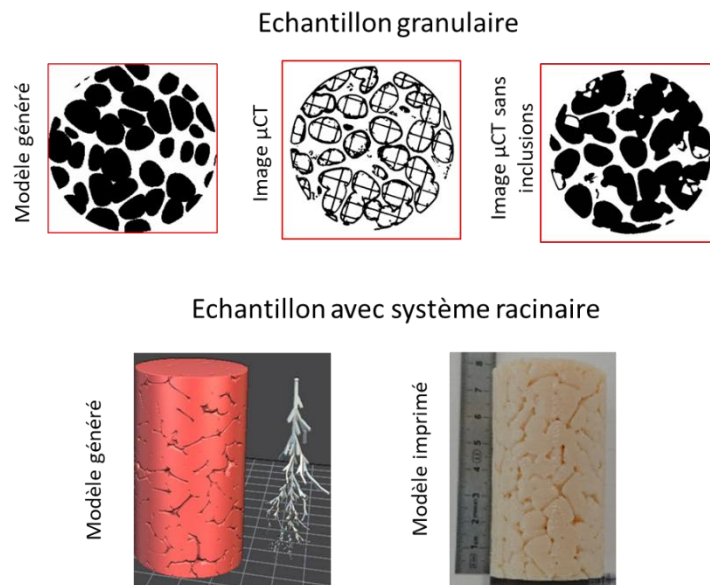


Figure 6 Modèle généré pour impression et milieu imprimé, avec imagerie μ CT. Un milieu sans inclusion est redéfini pour les calculs morphologiques et la simulation des propriétés physiques.

3.4 Applications aux roches réactives et wormholing

L'étude de l'évolution de l'espace poral sous l'effet du transport réactif est un sujet vaste et source d'intérêt, qu'il s'agisse de la compréhension de la formation des karsts [193] ou encore de la séquestration du CO₂ [3], [4]. Diverses études, tant expérimentales que numériques, se sont intéressées à l'évolution de l'espace poral lors de l'injection d'un « acide », c'est-à-dire d'un fluide favorisant la dissolution de la matrice solide, mettant en avant l'existence de plusieurs régimes caractérisant cette évolution. Plusieurs travaux [194], [195] ont déterminé un diagramme de régime en fonctions des quantités adimensionnelles (nombres de Péclet et de Dämmkohler) intégrant l'impact de plusieurs propriétés opérationnelles. Ce diagramme illustre le régime compact, présentant un front net de dissolution, où les effets réactifs sont dominants, le régime uniforme, présentant une dissolution graduelle et uniforme du milieu, où les effets diffusifs sont dominants et enfin les régimes de wormholing (wormhole conique, dominant ou ramifié). D'autres propriétés du milieu poreux ont par la suite été étudiées. On notera par exemple les travaux de [196] mettant en avant le régime de channelling, provoqué par l'hétérogénéité initiale du milieu. Roded et al. [197] s'est intéressé, grâce à des simulations, au rôle de l'anisotropie sur les formes et la compétition entre wormholes. Enfin, plusieurs études se sont concentrées au rôle des effets gravitaires, en particulier dans une configuration où l'écoulement dans le milieu poreux est orthogonal ou quasi-orthogonal au champ de gravité (e.g. [198], [199]). Enfin, les travaux de [200] ont établi l'existence d'un régime contrôlé par la flottabilité dans le cas d'un écoulement vertical (sens opposé au champ gravitaire) dans une fracture. Ce régime peut être illustré via l'apparition d'un troisième axe dans le diagramme de régime, selon le nombre de Richardson, qui compare les effets gravitationnels aux effets cinétiques.

Dans le cadre d'un financement de thèse ministérielle, d'un projet Jeune Chercheur (financement de l'université) et du projet H2020 PROTINUS, une étude, principalement expérimentale, a été développée pour approfondir la compréhension du rôle des effets gravitaires, dans le cas d'un écoulement vertical et pour un milieu poreux non fracturé. La méthodologie appliquée associe imagerie et traitement d'image et se concentre sur la dissolution d'un massif de sel (éventuellement associé à du plâtre pour une meilleure cohésion mécanique) sous différentes conditions opérationnelles (concentration et débit d'injection, orientation).

Les travaux présentés ci-après sont l'objet de la thèse de W. Ahoulou ainsi que de l'article suivant:

Ahoulou, A.W.A. (2020). Etude expérimentale du transport réactif en milieu poreux : application à la dissolution couplée à des gradients de masse volumique (Doctoral dissertation, Université de Lorraine).

Aboulou, A. W. A., Tinet, A. J., Oltéan, C., & Golfier, F. (2020). *Experimental insights into the interplay between buoyancy, convection, and dissolution reaction*. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth*, 125(11), e2020JB020854.

Une première partie de cette étude a été réalisée dans des conditions pseudo-2D, dans une cellule de type Hele-Shaw remplie par un massif de grains de sel de granulométrie contrôlée et de plâtre avec un ratio 90/10. Une acquisition d'image par photographie permet de suivre l'avancée dynamique et le développement du faciès de dissolution. Un traitement d'image a permis d'extraire les données morphométriques dynamiques, comme la quantité dissoute, l'interface zone altérée / zone non dissoute, la vitesse du front de dissolution, mais aussi les propriétés des wormholes, lorsqu'ils apparaissent, comme leur taille, tortuosité ou encore l'inclinaison des ramifications. Ces travaux ont amené 4 conclusions majeures qui ont pu être confortées et complétées par des simulations numériques sur le logiciel Comsol Multiphysics :

- Les régimes de dissolution observés sont identiques à ceux déjà établis par la littérature, quelle que soit l'orientation de la cellule. Il est possible qu'un décalage de certaines limites entre régimes existent, mais les résultats ne permettent pas de le garantir (cf Figure 7).

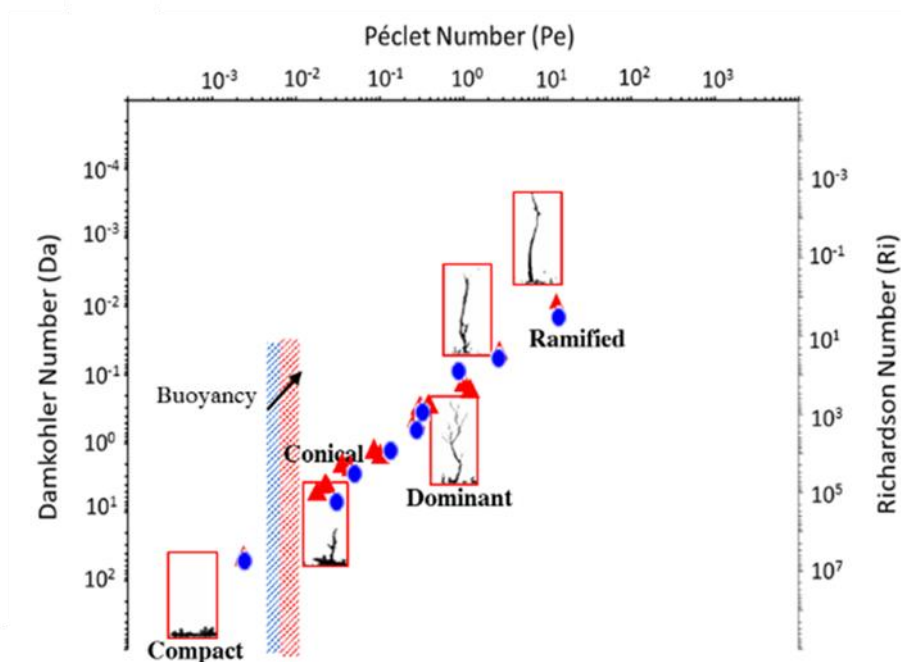


Figure 7 Diagramme de régime Pécelet – Dämkohler. La valeur du nombre de Richardson est ajoutée pour la configuration verticale. En rouge : résultats de la configuration vertical illustrée par des miniatures des essais. En bleu : résultats de la configuration horizontale (issu de [201]).

- La courbe PVBT (volume de pores à la percée) (Figure 8), communément utilisée dans le domaine [202] et dont il a déjà établi sa dépendance avec la température ou encore l'hétérogénéité du milieu, est déplacée pour les faibles valeurs de débit (correspondant aux régimes coniques et compact, à faible Péclet). Ce déplacement indique que pour un même débit d'injection, le volume de pore dissous est plus important dans la configuration horizontale. On note cependant que l'optimum est sensiblement identique.

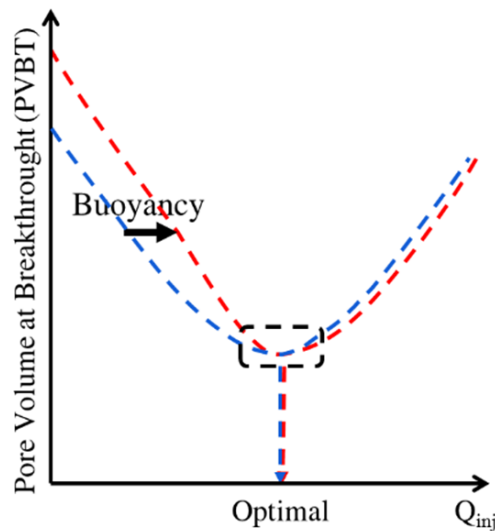


Figure 8 Courbe PVBT, en rouge: configuration verticale, en bleu: configuration horizontale (issu de [201])

- Si les quantités dissoutes sont globalement similaires pour les deux configurations, les interfaces entre zone dissoute et non dissoute ont une surface significativement plus élevée dans la configuration verticale indiquant une augmentation de la rugosité de l'interface du fait des couplages avec les gradients de masse volumique (Figure 9). Cette analyse est appuyée par les données de simulation, illustrant la présence de cellules de convection dans le régime compact (Figure 9c). Ces cellules de convection sont aussi visibles dans les régimes à plus fort Péclet, latéralement au wormhole (régime dominant) et à la base du wormhole (régime ramifié), sans impact significatif sur les propriétés morphométriques.

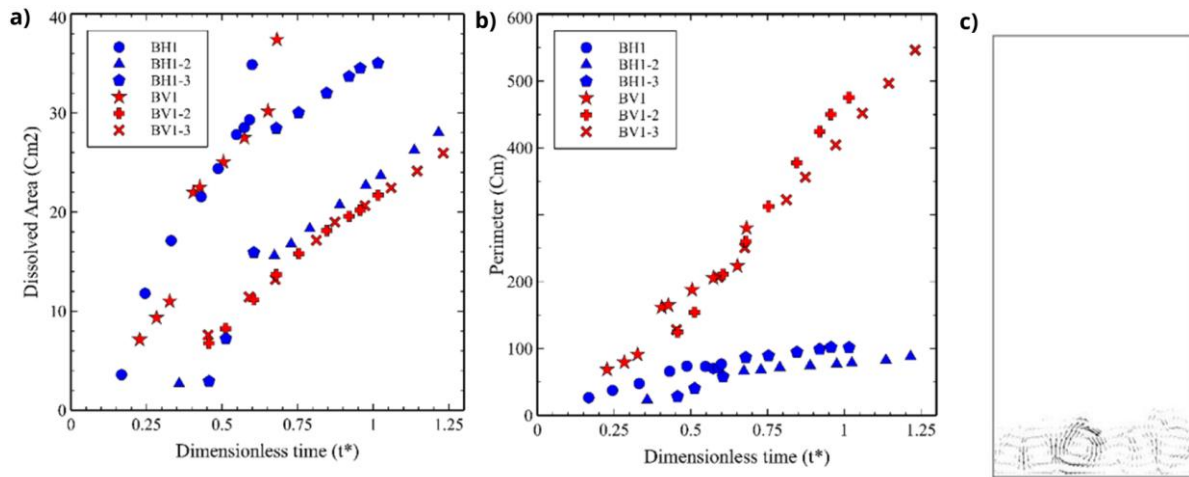


Figure 9 a) Quantité dissoute (aire dissoute de l'image) et b) Longueur de l'interface zone dissoute – zone non dissoute des essais expérimentaux. c) Cellules de convection apparaissant dans la zone dissoute, données de simulation – régime compact (d'après [201], [203])

- Les données expérimentales ne permettent pas d'évaluer l'évolution de la concentration en sel de la saumure, en particulier dans le wormhole, contrairement aux données de simulation. Si, conformément aux résultats d'expérimentation, l'évolution de la porosité n'est pas impactée par l'orientation pour les régimes à fort Péclet, il est notable que, pour le régime dominant, le champ de concentration est significativement différent (Figure 10).

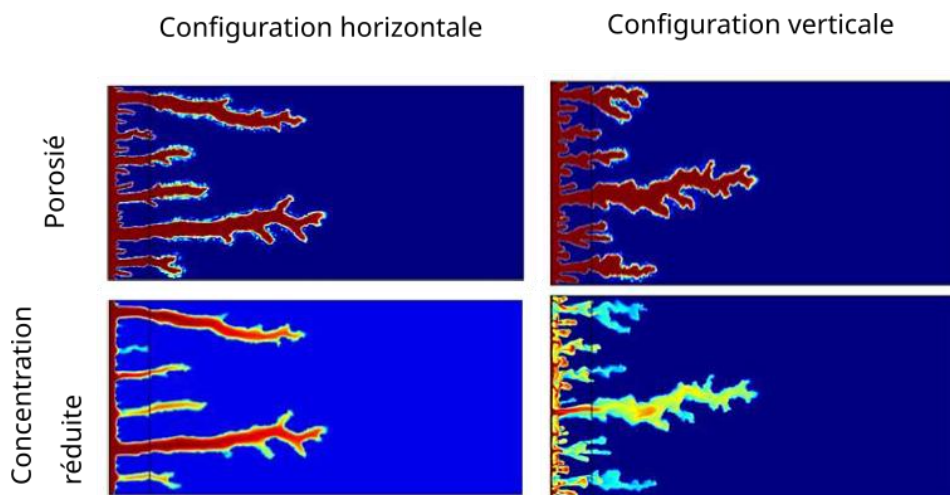


Figure 10 Comparaison des champs de porosité et de concentration pour les configurations verticales et horizontale. Régime de wormhole dominant (issu de [203]).

- Enfin, comme le plâtre et le sel ont des propriétés physico-chimique distinctes et plus particulièrement des solubilités différentes, sous certaines conditions opératoires, une

dissolution en deux temps se fait, générant une zone partiellement dissoute. Cette zone est visible nettement dans le régime conique (Figure 11).

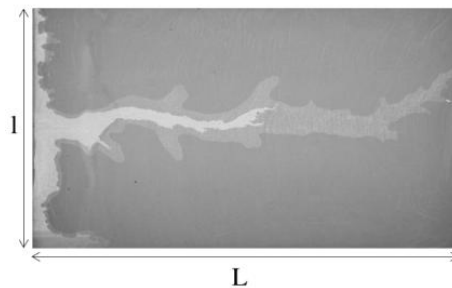


Figure 11 Illustration de l'apparition d'une zone partiellement dissoute – régime conique (d'après [201]).

On notera les travaux récents de [204], utilisant nos résultats, complétés principalement par des résultats de simulation, qui ont établi un diagramme de régime ($Pe - Ri$) mettant en avant un nombre de Richardson critique séparant régime dominé par la convection naturelle et régime dominé par la convection forcée, le régime uniforme, dominé par la diffusion, apparaissant toujours.

Les travaux expérimentaux en quasi-2D ont été complétés par une étude en 3D sur des carottes de sel (Figure 12), avec là encore une étude avec un écoulement transverse ou opposé au champ gravitaire. Cependant cette étude réalisée sur un nombre modeste d'échantillons ne montre pas d'impact significatif de l'orientation, en particulier au regard des variabilités structurelles initiales des échantillons.

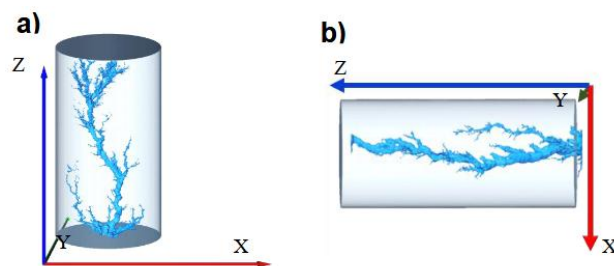


Figure 12 Image CT post-dissolution d'une carotte de sel, après segmentation. Un régime de wormhole dominant est observé (issu de [203]).

3.5 Conclusion

En conclusion de cette section, on peut émettre deux éléments de perspectives en particulier :

- Les techniques d'imagerie sont toujours en évolution, on peut noter en particulier l'impression 3D multimatériaux, la microtomographie 4D, plus rapide et ouvrant donc plus de possibilités quant à l'étude de phénomènes dynamiques (e.g. [205], [206]) ou encore la fusion de données entre imagerie et caractérisation chimique [207].
- Le développement des modèles à l'échelle des pores, en particulier pour le transport réactif, complémentaire aux données expérimentales (e.g. [180] [204], etc.). On notera par exemple les travaux de [46] qui se sont intéressés à l'effet gravitaire dans une fracture avec un modèle de transport mais sans dissolution. Gao et al. [162] ont étudié grâce à un modèle la dissolution de la calcite sur du grès de Hutton. Liu et al. [161] ont étudié l'effet de l'hétérogénéité minérale sur les schémas de dissolution à faible Péclet.

4 COMPUTE : Approche DRP appliquée au stockage géologique de déchets radioactifs

4.1 Contexte général

En France, la solution pour gérer les déchets radioactifs les plus dangereux est le stockage en formation géologique profonde. La formation ciblée est celle des argilites du Callovo-Oxfordien, qui présente plusieurs intérêts, dont sa très faible perméabilité (de l'ordre de 10^{-13} à 10^{-14} , avec un coefficient d'anisotropie de 1.5 à 3 [1]). Les argilites ont une porosité d'environ 18%, saturée en eau, répartie sous forme d'eau porale libre (pores de taille supérieure à 20 nm, environ 50% de la porosité), faiblement liée (entre 3 et 20 nm), fortement liée (pour laquelle les forces électrochimiques surpassent les forces capillaires) et l'eau structurale et interfoliaire (non mobilisable) [208]. Deux phases, lors de la gestion du stockage, sont intéressantes au regard des transferts de gaz. Lors de l'exploitation du stockage, ce dernier est ventilé, ce qui génère une désaturation de la roche environnante, qui se resaturera progressivement par la suite. Par ailleurs, plusieurs sources de gaz, liées à divers mécanismes physico-chimiques vont générer une désaturation des galeries, ce gaz devant alors s'évacuer via des transferts dans les roches environnantes. Ces sources de gaz sont très principalement liées à la corrosion anaérobie des métaux utilisés dans le stockage, mais aussi, dans une moindre mesure, à la radiolyse et à la dégradation des composés organiques [1], [208].

Les études relatives aux transferts de gaz visent principalement à répondre aux questions opérationnelles suivantes :

- Comment le gaz se déplace dans le stockage géologique et quel transport de radionucléide soluble / volatile peut lui être associé?
- Est-ce que les perturbations hydromécaniques associées au transport de gaz peut impacter l'intégrité des barrières et la performance à long-terme du stockage?

Ces travaux représentent un intérêt scientifique fort, tant au regard des enjeux sociétaux que de la compréhension des mécanismes fondamentaux des transferts de fluides dans les milieux très faiblement perméables et de leur importance relative, et des questionnements méthodologiques quant à l'applicabilité des approches DRP à des milieux nanoporeux, difficilement accessibles aux techniques d'imagerie et présentant des mécanismes physiques, des couplages, qui leur sont propres. C'est pour cela, entre autres, que ces travaux ont fait l'objet de plusieurs sources de

financement, en particulier via la cellule Energie du CNRS (programme NEEDS, projets RPM, MECHE et PACEM) et du programme européen EURATOM (projet EURAD, WP GAS et EURAD2, WP HERMES), on notera aussi le financement du Carnot ICEEL (projet MultiEcHydro).

4.2 Les mécanismes de transport du gaz

Les différents travaux [1], [208], [209] ont permis d'établir un état des lieux des mécanismes de production et du transport des gaz générés après la fermeture du stockage.

Les mécanismes de corrosion anaérobie, et dans une moindre mesure, de radiolyse et de dégradation des composés organiques, participent à la génération de dihydrogène dans la période post-fermeture du site de stockage. La production est estimée s'étendre sur 100 000 ans avec la moitié du H₂ produit sur les 4 à 5 000 premières années, puis une diminution estimée d'un ordre de grandeur tous les 10 000 ans [1], [208].

Dans un premier temps, quand la quantité, et donc la pression de gaz, est suffisamment faible, le gaz sature d'abord les alvéoles. A l'interface des alvéoles avec la roche mère, les compositions de la phase liquide (dans la roche) et de la phase gazeuse (dans l'alvéole) s'équilibrent chimiquement avec, d'une part, la dissolution du gaz dans l'eau et, d'autre part, l'évaporation de l'eau dans le gaz (Figure 13). A l'échelle macroscopique, la dissolution du gaz dans l'eau porale suit la loi de Henry, jusqu'à la saturation du gaz dissous, mais un facteur correctif est nécessaire. Ce coefficient varie de manière exponentielle avec la pression capillaire [210]. Le gaz dissous peut alors être transporté dans la phase eau par diffusion moléculaire (contrôlé par le gradient de concentration), électroosmose (contrôlé par le gradient de potentiel électrique), thermoosmose (contrôlé par le gradient de température) et osmose chimique. Il est classiquement considéré que les mécanismes de thermoosmose et d'osmose chimique sont faibles du fait d'un gradient thermique faible (à l'échelle du stockage) et d'une stabilité chimique observée pour les argilites du CO_x. En ce qui concerne l'électroosmose, à l'échelle macroscopique, elle est considérée comme une composante de la diffusion [208], les variations de gradient de potentiel électriques se limitant à l'échelle microscopique. Il est à noter que les effets retards, dus à l'adsorption du H₂ sur les composés argileux, sont considérés comme faibles pour l'argilite du CO_x [211].

Au fur et à mesure que le gaz est généré, la diffusion, à elle seule, ne permet plus d'évacuer le gaz, il y a alors développement d'une phase gazeuse dans la roche. Dans le cas où il n'y a pas de couplage mécanique, l'interface liquide – gaz dans la roche est contrôlée à la fois par les phénomènes capillaires et les échanges éventuels entre les phases (dissolution et évaporation) (Figure 13).

L'équilibre liquide / vapeur au niveau de l'interface est impacté par l'effet Kelvin, qui provoque une diminution de la vapeur saturante avec la diminution de la taille des pores, et qui est donc particulièrement significatif pour des pores inférieurs à 50nm. L'écoulement diphasique peut montrer des caractéristiques particulières aux milieux fins, comme l'écoulement ganglionnaire [72], dans les films d'eau ou encore le drainage hyperlent [212] ainsi que des mécanismes de glissement aux interfaces (effet Knudsen). Ce dernier point est particulièrement important aux interfaces gaz-solide. Il est intéressant de noter que, dans [1], [208], [210], la description des écoulements diphasiques à l'échelle macroscopique est classique (modélisation via le modèle de Darcy généralisé et des courbes de rétention et de perméabilité relatives utilisant le modèle de Van Genuchten – Mualem). Il faut cependant relever que la transférabilité des concepts classiques pour le transport de gaz dans les milieux argileux est questionnée. Ceci inclut tant l'utilisation des relations de Van-Genuchten et Mualem que la validité de la loi de Darcy généralisée ou encore la pertinence du concept de perméabilité intrinsèque. Dans l'état de l'art présenté par [209], il est par exemple noté qu'un modèle de Van Genuchten modifié, utilisant une pression d'entrée d'air non nulle, permet une meilleure reproduction des résultats expérimentaux.

Si l'augmentation de pression est suffisante, un couplage hydro-mécanique apparaît (Figure 13). Ce couplage est suggéré par un déplacement du gaz sans expulsion d'eau, ce qui impliquerait la création de porosité [210]. Il existe deux explications phénoménologiques, soit de la microfissuration, soit la dilatation des pores existants. L'apparition, locale, de pores de taille plus importante que la porosité préexistante, favorise alors la pénétration de la phase gazeuse. Il est important de noter, cependant, qu'il reste difficile de savoir si les observations expérimentales sont liées à des microfissures apparues lors de la préparation des échantillons ou liées à l'hétérogénéité naturelle du milieu à l'échelle microscopique [1].

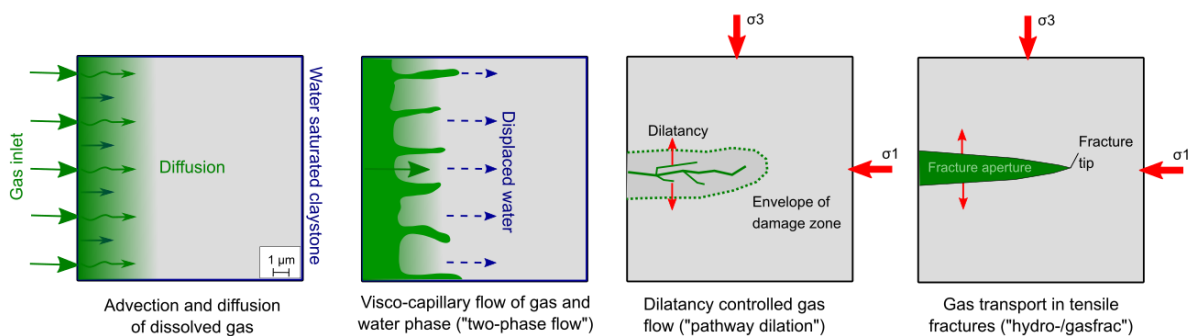


Figure 13 Mécanismes de migration du gaz, de gauche à droite la pression de gaz augmente (d'après [213])

4.3 Verrous scientifiques

Les travaux développés sur cette thématique ont pour but de répondre globalement à deux questions scientifiques :

- **Peut-on et comment appliquer la méthode DRP aux milieux nanoporeux ?**

L'approche de la méthode DRP s'est largement développée pour les milieux granulaires et les roches réservoirs, son extension à des systèmes nanoporeux reste plus récente. Cette question soulève d'une part la difficulté de l'acquisition d'images 3D, nécessaire à l'approche DRP, avec la possibilité de l'utilisation de solutions alternatives pour reconstruire les données (cf section 4.4.1) et donc de pallier aux limites actuelles de l'acquisition d'image. En effet, la technique μ CT, la plus communément utilisée en DRP, peut atteindre des résolutions au mieux submicrométrique (quelques centaines de nanomètres, le plus souvent), supérieures à une partie significative de la porosité des roches nanoporeuses. Plus spécifiquement, les chemins percolants peuvent alors être invisibles avec la microtomographie. D'autre part, l'étude de la transférabilité des simulations de changement d'échelle des roches réservoirs aux roches argileuses et la capacité de ces approches à reproduire les données expérimentales (cf section 4.4.2 pour la perméabilité intrinsèque et 4.4.3 pour la courbe de rétention et la courbe de perméabilité relative) sont étudiées. Cette question soulève aussi la problématique de l'incertitude associée aux différentes étapes de l'approche (imagerie, traitement d'image, simulation et changement d'échelle). En effet, contrairement aux milieux les plus couramment utilisés en DRP (e.g. billes de verre, sables ou grès), le ratio entre résolution et taille caractéristique (e.g. taille des pores) est beaucoup plus important pour les milieux nanoporeux, du fait des technologies d'imagerie 3D accessibles. Dès lors, l'incertitude liée à l'image est plus importante et influe donc sur les étapes qui suivent (traitement d'image, simulation et changement d'échelle).

- **Quels impacts ont les mécanismes associés aux nanopores sur le transfert du gaz ?**

Ainsi que présenté dans la section précédente, les transferts en milieux nanoporeux mettent en jeu des mécanismes spécifiques généralement absents ou négligés dans les roches réservoirs (e.g. glissement aux parois, effet Kelvin, couplage électroosmotique), plus classiquement étudiées. Dès lors, il est particulièrement essentiel de mieux comprendre quel est l'impact de ces mécanismes qu'ils soient locaux (e.g. sur les champs de vitesses, patterns d'écoulement, etc.) ou globaux (e.g. sur la modification de propriétés effectives, ajouts de couplages, etc.) et leur importance relative aux modes de transferts plus classiques. A terme, cette meilleure compréhension, à l'échelle des pores, doit permettre de mieux renseigner et d'améliorer les modèles macroscopiques dont

L'utilisation est essentielle pour la compréhension du fonctionnement et la prévention des risques liés aux ouvrages de stockage géologiques de déchets radioactifs. Par exemple, une meilleure compréhension des champs de vitesses locaux et des patterns d'écoulement peut, à terme, améliorer la prédiction des temps de transferts des radionucléides ou de l'hydrogène dans les argilites. Pour cela, plusieurs mécanismes ont été étudiés « individuellement » : le glissement aux parois (effet Knudsen) (cf section 4.4.2), l'effet Kelvin et la compétition entre drainage et évaporation (cf section 4.4.3) et enfin le couplage électroosmotique (cf section 4.4.4).

4.4 Description des travaux réalisés

4.4.1 Imagerie et reconstruction

Les travaux présentés ci-après sont issus des projets NEEDS RPM et ICEEL MultiEcHydro, et ont été publiés dans l'article suivant :

Tinet, A-J, Corlay, Q., Collon, P., Golfier, F., Kalo, K., 2020, Comparison of various 3D pore space reconstruction methods and implications on transport properties of nanoporous rocks. Advances in Water Resources, 141, 103615.

Un des problèmes pour utiliser une approche DRP sur des milieux de type COx est la résolution accessible par les méthodes d'imagerie actuelles. La technique d'imagerie préférentiellement utilisée dans la DRP est la microtomographie aux rayons X (μ CT), cette approche présente l'intérêt de fournir des images en trois dimensions et est non-destructive. Malheureusement, la meilleure résolution accessible est de l'ordre de quelques centaines de nanomètres, soit supérieure à la majorité des tailles de pores du COx. Même pour un milieu synthétique, i.e. de la poudre d'illite recompactée, la résolution du μ CT est insuffisante pour caractériser précisément l'espace poral. Une technique d'imagerie permettant une meilleure résolution est la microscopie électronique à balayage (SEM). Associée à la technique FIB (focused-ion beam), il est alors possible d'obtenir des images 3D avec une résolution de quelques nanomètres. Cependant, cette technique est difficile à mettre en œuvre (e.g. préparation de l'échantillon) et coûteuse. Par conséquent, les images accessibles pour appliquer la méthode DRP restent rares, les coupes SEM 2D étant quant à elles plus communes. Une solution alternative envisagée est alors l'utilisation de méthodes statistiques pour reconstruire les informations manquantes. Par exemple, Chen et al. [138] ont utilisé les chaînes de Markov pour générer un milieu 3D à partir d'images 2D, puis appliquent un modèle LBM. Dans [24], on compare plusieurs approches statistiques (méthode Two-Point Statistics (SIS), méthodes MultiPoint Statistics (3DA-MPS, s2Dcd*, weighted 3DA-MPS) associées ou non à des techniques de post-processing (ouverture-fermeture, filtre median) afin de savoir quelle méthode permet

d'obtenir les propriétés morphologiques et physiques les plus réalistes et avec quelle quantité d'information (Figure 15). Les propriétés physiques ciblées sont obtenues grâce au changement d'échelle numérique à partir de simulations LBM d'écoulement (perméabilité) et de transport (diffusion et dispersion) (Figure 14).

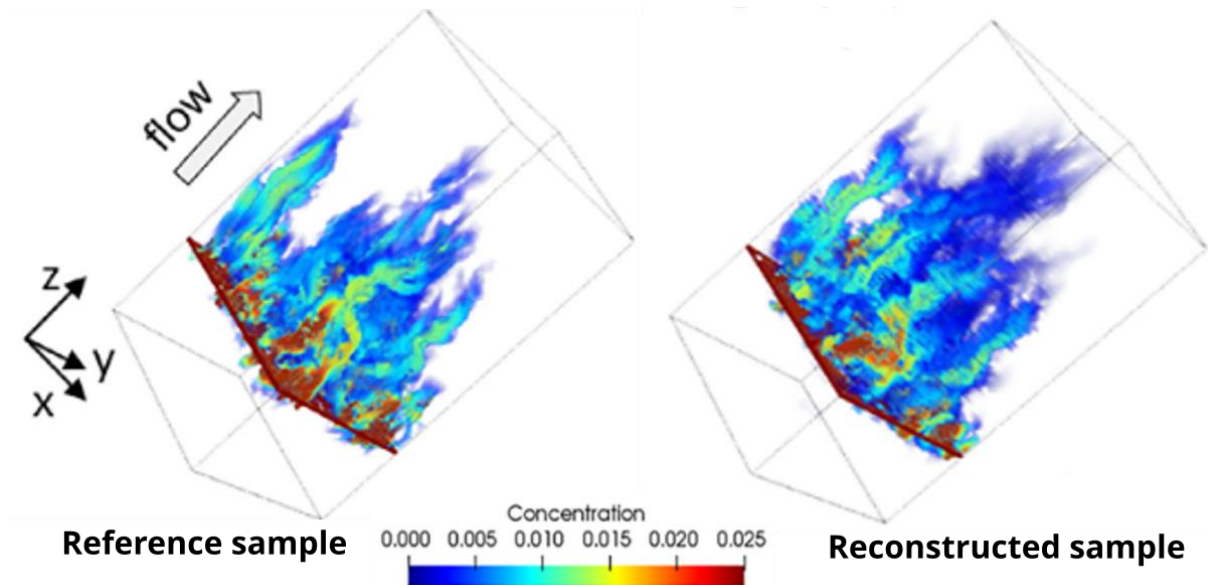


Figure 14 Champs de concentration pour l'échantillon de référence et un échantillon reconstruit suite à une simulation de transport avec LBM. La reconstruction illustrée correspond à l'algorithme Weighted 3DA-MPS avec des coupes de données imposées toutes les 5 coupes (issu de [24]).

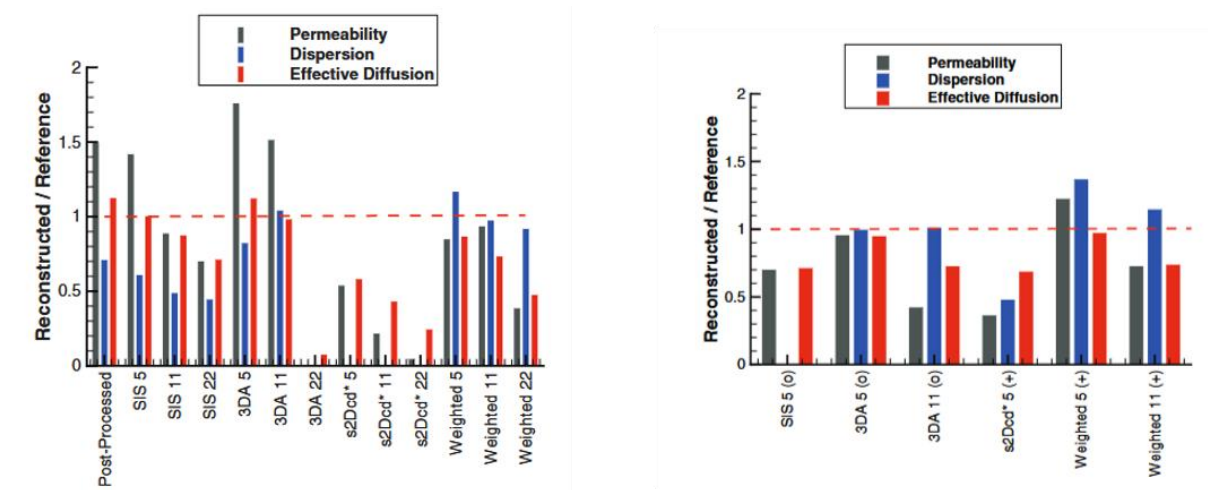


Figure 15 Ratio des propriétés effectives des échantillons reconstruits vs échantillon de référence. Modèles de reconstructions : SIS, 3DA-MPS (3DA), s2Dcd*, weighted 3DA-MPS (Weighted). Post-processing du cas de référence et sans symboles : ouverture – fermeture. (o) indique l'absence de post-processing et (+) l'application d'un filtre médian. Les chiffres (5, 11 et 22) indiquent la fréquence des coupes de données de contrainte (toutes les 5, 11 ou 22 coupes) (issu de [24]).

Ces travaux ont mis en avant la capacité des approches MPS à reconstruire des échantillons de façon à calculer raisonnablement des données effectives, sous couvert que suffisamment de données soient disponibles. D'autres approches, dont en particulier, celles basées sur l'intelligence artificielle, ont depuis été étudiées pour améliorer les reconstructions [44].

4.4.2 Ecoulement monophasique de la phase gazeuse

Les travaux présentés ci-après sont issus des projets NEEDS RPM et ICEEL MultiEcHydro, et ont été publiés dans l'article suivant :

Pazdriakou, A., Tinet, A-J., Golfier, F., Kalo, K., Gaboreau, S., Gaire, P., 2018, Numerical efficiency assessment of the lattice Boltzmann model for digital nano-porous rock applications. Advances in Water Resources.

L'objectif de cette étude était d'explorer la capacité de la méthode Lattice Boltzmann à simuler les écoulements de gaz raréfié dans un milieu poreux complexe. Le nombre de Knudsen (Kn) permet d'identifier les différents régimes d'écoulement. Pour une valeur de Kn faible (< 0.001), on retrouve le régime d'écoulement classique avec des conditions de non-glissement aux parois. Pour des valeurs plus importantes, on passe d'un régime d'écoulement nécessitant un glissement aux parois ($0.001 < Kn < 0.1$), à un régime de transition ($0.1 < Kn < 10$) avant d'atteindre un régime de déplacement moléculaire libre. Dans ce dernier cas, les équations classiques de milieu continu ne sont plus valables. Un modèle Lattice Boltzmann en trois dimensions (D3Q19), à deux temps de relaxation (TRT) associé à la prise en compte de la condition à la limite de glissement aux parois « Diffuse Bounce-back » (DBBC) a été utilisé. On notera que les méthodes de Lattice Boltzmann peuvent simuler les régimes continus, de glissement et, selon les méthodes, le début du régime de transition. Pour des gammes de tailles de pores correspondant au COx (majoritairement inférieures à 20 nm) et à l'illite (en moyenne 25 nm), on s'attend, pour des conditions de pression et de température pertinentes dans le contexte du stockage, à l'apparition de régimes de glissement et de transition.

Le modèle développé a été appliqué à des images FIB-SEM d'illite recompressée, suivant différentes techniques de segmentation ainsi que différentes localisations (Figure 16). Les valeurs du nombre de Knudsen nécessaires à l'ajustement du temps de relaxation sont calculées localement à chaque pore, mais il est noté que, pour les images utilisées, les simulations utilisant un Knudsen variable et celles utilisant un Knudsen moyen, sont très proches. Les valeurs de perméabilité effective, après changement d'échelle numérique, ainsi que du coefficient de Klinkenberg, qui caractérise l'évolution de la perméabilité intrinsèque en fonction de l'inverse de la pression de gaz et qui est une conséquence du glissement aux parois, ont été comparés à des mesures expérimentales réalisées

sur un échantillon avec les mêmes caractéristiques (matériau, compaction) que celui imagé (Figure 17).

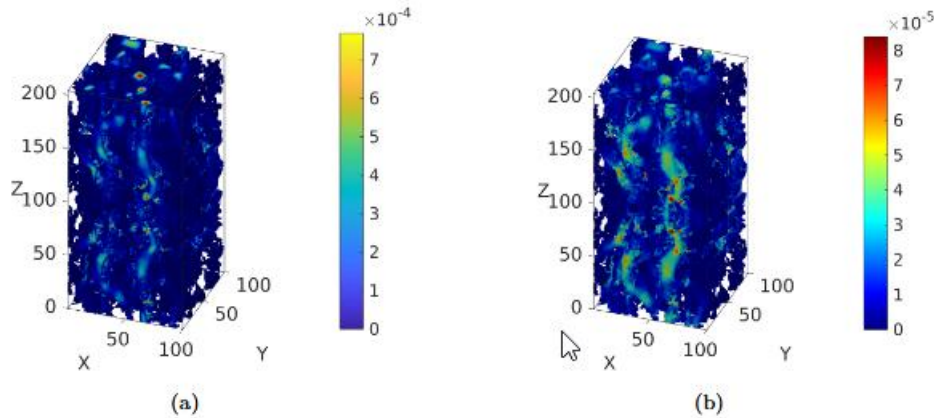


Figure 16 Champ de vitesse normalisé par la vitesse maximale calculé par simulation LBM sur une image FIB-SEM segmentée d'une illite recompactée. (a) Début du régime de glissement : $Kn = 0.01$, (b) Régime transitoire : $Kn = 0.4$ (issu de [23])

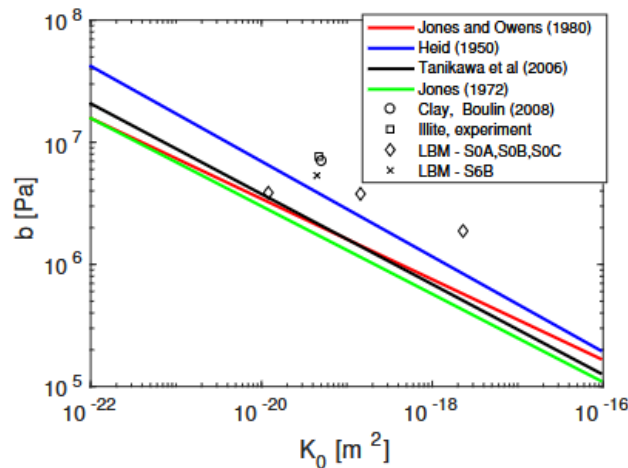


Figure 17 Coefficient de Klinkenberg obtenu par changement d'échelle numérique sur différents échantillons en fonction de la perméabilité absolue K_0 . Comparaison avec des données expérimentales de l'illite recompactée et du COx (données de [214]) ainsi qu'avec plusieurs corrélations de la littérature (issu de [23]).

Une première observation majeure (Figure 16) est le changement de comportement de l'écoulement local selon la valeur de Knudsen. Pour des faibles Kn , on retrouve une morphologie d'écoulement classique avec des chemins d'écoulement préférentiel, correspondant globalement aux pores les plus grands, et une répartition parabolique de la vitesse dans les pores. Pour une valeur élevée de Kn , par contre, la vitesse augmente aux parois (vitesse de glissement) ainsi que dans les espaces plus étroits, ce qui tend à l'uniformisation du champ de vitesse. Un second résultat (Figure 17) permet de montrer l'applicabilité de l'approche DRP dans le cas présent, en effet, les

coefficients de Klinkenberg obtenus par changement d'échelle numérique sont consistants avec les données expérimentales et celles de la littérature.

Discussion complémentaire :

Les travaux ci-avant ont été réalisés en considérant le fluide comme du gaz. Dans ce cas, les modèles théoriques, bien que soulevant encore des questions, sont plus établis [215]. Pour le glissement de la phase aqueuse, sa compréhension est encore difficile. Dans son état de l'art sur la condition de glissement, Hadjiconstatinou [215] indique que c'est le développement de travaux de dynamique moléculaire qui a permis d'avancer dans la compréhension des mécanismes de glissement pour les liquides, mettant en avant le concept de limite hydrodynamique et sa difficulté de localisation. Dans le contexte du stockage, il est anticipé que les valeurs de saturations en eau resteront globalement élevées, y compris lors de la dissipation des gaz de corrosion dans la roche. Dès lors, les conditions d'écoulement monophasique de gaz ne peuvent alors qu'exister très localement. La compréhension physique des mécanismes de glissement du gaz comme de l'eau en conditions multiphasiques et en particulier proche des interfaces fluide-fluide reste un sujet ouvert de recherche. L'utilisation des méthodes de dynamique moléculaire peut alors être un atout [127].

4.4.3 Ecoulement diphasique

Les travaux présentés ci-après sont issus des projets NEEDS MECHE et EURAD WP GAS et ont été présentés en congrès ainsi que dans les travaux de thèse de N. Amrofel :

Pazdniakou, A., Tinet, A-J., Dymitrowska, M., Vicente, V., Golfier, F., Prat, M. (2019) Numerical estimation of compacted illite multiphase transport properties from pore-scale simulations using FIB-SEM images. Interpore, Valencia, Spain, May 2019

Amrofel, N., Dymitrowska, M., Obliger, A., Tinet, A-J., Golfier, F. (2024) Drying in nanoporous media with Kelvin effect: Capillary imbibition against evaporation by smoothed particle hydrodynamics method. Physics of Fluids, 36, 022028.

L'objectif de cette étude est d'évaluer l'approche DRP pour l'estimation des propriétés multiphasiques, courbe de rétention (WRC) et courbe de perméabilité relative (KR) pour des milieux nanoporeux. Plusieurs questions sont alors soulevées :

- Quel est l'impact des limites de l'acquisition d'image à cette échelle (e.g. faible rapport taille de pore sur résolution, impossibilité d'acquérir l'ensemble de la porosité [216]) ?
- L'approche DRP est-elle applicable au regard de ses limites en terme de performance (temps de calcul en particulier)?

Comme précédemment, les simulations sont réalisées sur les images FIB-SEM d'argile reconstituée (illite compactée) obtenues par [216]. Par rapport à l'argilite du COx, l'illite recompactée présente une hétérogénéité d'échelle moindre, malgré tout, les auteurs estiment le VER à $0.2 \mu\text{m}^3$. Deux méthodes numériques ont été principalement utilisées dans cette étude, la méthode LBM, avec un modèle à pseudopotentiel et la méthode SPH [21], [22]. Ces deux méthodes directes présentent néanmoins des différences : l'interface entre les deux phases fluides est diffuse pour la méthode LBM et raide pour la méthode SPH. La méthode LBM, plus stable, a pu être appliquée pour différentes conditions initiales et aux limites.

Les approches standards de calcul des courbes WRC et KR, développées pour des roches réservoirs, ont été présentées dans le chapitre 2. On peut cependant se poser la question de leur pertinence pour la détermination des propriétés effectives multiphasiques sur des roches nanoporeuses. En effet, les protocoles de simulation ont été développés par analogie avec des techniques expérimentales utilisées pour les roches réservoirs mais ces méthodes ne sont pas applicables aux roches étudiées dans le contexte des roches de couverture et d'autres techniques expérimentales (e.g. automated humidity system [217]), en général délicates à mettre en œuvre, sont utilisées. Par ailleurs les écoulements multiphasiques dans les roches nanoporeuses mettent en jeu des mécanismes peu significatifs dans les réservoirs et, a contrario, certains mécanismes deviennent moins prépondérants. Plus spécifiquement, du fait des très faibles vitesses d'écoulement attendues, on s'attend à des nombres capillaires faibles (de l'ordre de $\text{loc}(\text{Ca}) = -14$), ce qui implique un écoulement très fortement dominé par la capillarité [212].

Pour pouvoir répondre à ce questionnement, deux protocoles de simulation sont étudiés. Les deux méthodes numériques ont été appliquées et la courbe KR, mais aussi la courbe WRC ont été déterminées. La première méthode, correspond à l'approche traditionnellement utilisée pour le calcul de KR dans les roches réservoirs. Il s'agit de réaliser un écoulement co-courant des deux phases fluides dans un échantillon périodique initialisé à une saturation prédéterminée. La deuxième méthode consiste à la simulation d'un drainage jusqu'à la percée, par application de conditions de pression en entrée et sortie, la condition en entrée augmentant par paliers. La courbe WRC et la courbe KR, calculée à partir de la loi de Darcy généralisée, ont été obtenues à l'aide d'une simulation LBM. Enfin l'analyse des courbes WRC et KR du gaz est réalisé à la fois classiquement, c'est-à-dire en considérant les valeurs de saturation, de pression et de flux sur l'ensemble du domaine d'étude, mais aussi en considérant la position du front de drainage, i.e. en limitant le domaine de calcul des propriétés effectives entre la face d'entrée et la face d'avancée maximale du front, de façon à prendre en compte les données avant percée. De façon à limiter le temps de calcul, les nombres capillaires utilisés sont significativement supérieurs à ce qui est attendu sur le terrain mais restent

dans la gamme des écoulements dominés par la capillarité. Les résultats de simulations sont ensuite comparés à des données expérimentales. On peut voir ces résultats sur les figures 18 et 19.

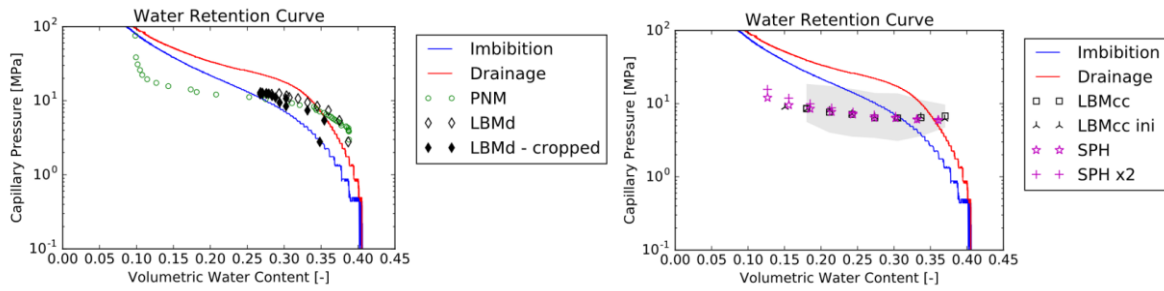


Figure 18 Courbes de rétention (WRC) obtenues avec l'approche par drainage (à gauche) et par écoulement co-courant avec différentes initialisation (ini) et résolutions (x2) (à droite). Comparaison avec les données expérimentales d'imbibition (bleu) et de drainage (rouge).

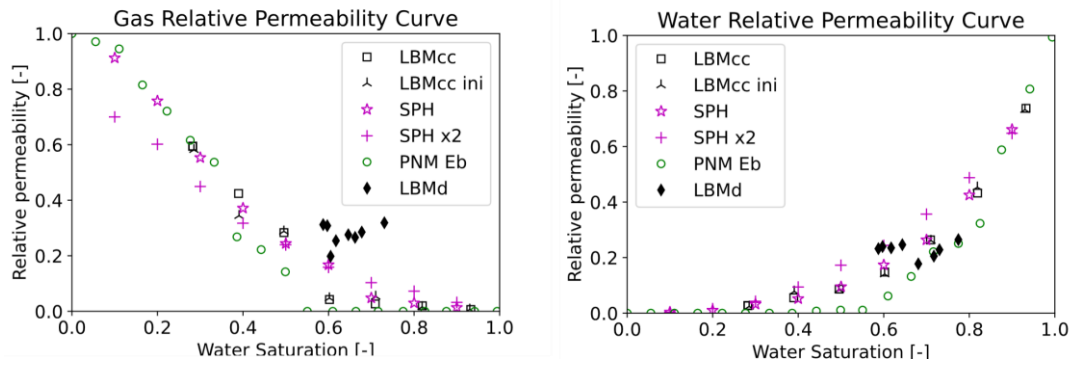


Figure 19 Courbes de perméabilité relative (KR) obtenues avec l'approche par drainage (LBMd) et par écoulement co-courant avec différentes initialisation (ini) et résolutions (x2) (LBMcc et SPH) et modélisation PNM.

Au-delà de la pertinence de l'approche standard, on peut se poser les questions de l'applicabilité de l'approche DRP, dont certaines limites peuvent être précisées comme suit :

- La résolution accessible reste proche de la taille des pores moyenne, par exemple pour l'illite on a, en moyenne, 5 voxels par diamètre de pore, ce qui est inférieur à la résolution préconisée pour les modèles LBM à pseudopotentiel. Une solution, très coûteuse numériquement, est alors d'augmenter le nombre de voxels (LBM) ou de points matériels (SPH). Cette solution a été testée avec la méthode SPH, démontrant des résultats équivalents à forte saturation, mais sensiblement différents à faible saturation. En effet, on peut alors obtenir une meilleure description des films mouillants prépondérants à ces valeurs de saturation. Ceci dit, les conditions d'application pour le stockage géologique étant principalement à forte saturation, ce phénomène doit être relativisé.

- La gamme des pores imagés est limitée, d'une part car les pores sont trop petits pour la résolution accessible, d'autre part car les pores de grande taille ne sont pas nécessairement inclus dans l'échantillon imagé, lui-même très petit (quelques μm^3). En ce qui concerne les pores en sous-résolution, ils ne seront vraisemblablement sollicités par la phase gazeuse au plus à faible saturation. Pour les pores de plus grande taille, non imagés, ils sont non interconnectés, ce qui limite leur impact. Cependant, le faible volume de roche utilisé pour les simulations, inférieur au VER, pose question. Pour avancer un premier élément de réponse, une comparaison avec des simulations PNM, sur le même échantillon, mais aussi sur l'échantillon total, ont été réalisées. Ces comparaisons montrent des résultats proches pour les saturations en eau élevées.

Dans l'étude précédente, le modèle diphasique correspond au modèle classiquement utilisé dans les roches réservoirs, cependant, ainsi que discuté précédemment, d'autres mécanismes, comme l'évaporation et l'effet Kelvin, sont aussi à l'œuvre à l'interface fluide, ce dernier devenant significatif pour des pores de taille nanométrique. Dès lors, on peut s'intéresser à la compétition entre ces différents mécanismes. Pour cela, une étude, utilisant la méthode SPH en collaboration avec l'IRSN, a été réalisée [22]. Les simulations ont été faites sur des géométries 2D simplifiées avec des pores nanométriques. Trois études en particulier ont été mise en œuvre :

- Une étude paramétrique, faisant varier les différents facteurs des nombres adimensionnels suivants: nombre capillaire Ca (ratio des effets visqueux et capillaires) et nombre d'évaporation ϵ (ratio des effets d'évaporation/diffusion et des effets capillaires). Cette étude a permis d'établir un diagramme de régime (Figure 20), différenciant les écoulements dominés par la capillarité (faible nombre d'évaporation) et ceux dominés par l'évaporation – diffusion (fort nombre d'évaporation). Notons que ce dernier régime correspond au régime d'écoulement stable, tel que noté sur les diagrammes de Lenormand [218] pour les régimes d'écoulement diphasique. On notera ceci dit que les valeurs attendues in situ n'ont pas pu être atteintes numériquement [22].

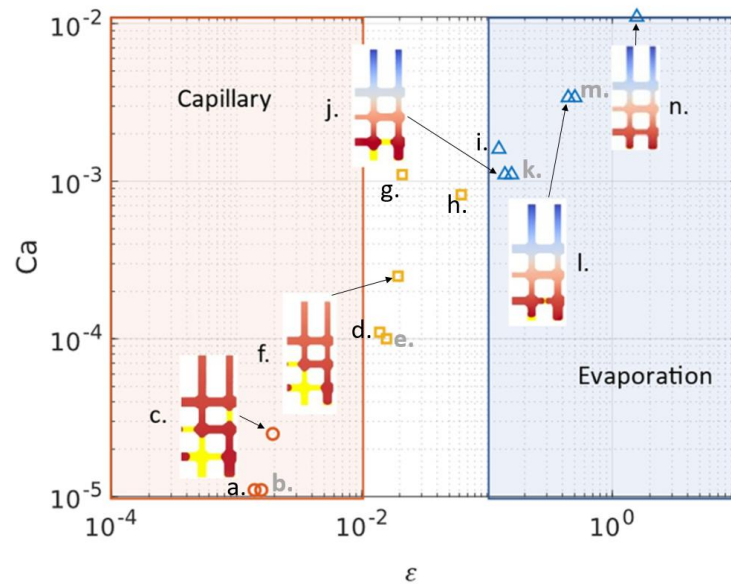


Figure 20 Diagramme de régime établi en faisant varier différents paramètres opérationnels. En gris, les cas d'étude sans effet Kelvin (d'après [22]).

- Une étude de l'effet Kelvin sur les facies d'écoulement, en régime capillaire (Figure 21). Cette étude met en avant deux phénomènes opposés: d'une part une augmentation des écoulements préférentiels de par l'effet Kelvin, accélérant la percée, d'autre part un plus faible taux d'évaporation, ralentissant la percée. Cette compétition permet d'expliquer les résultats contradictoires obtenus dans la littérature [22]

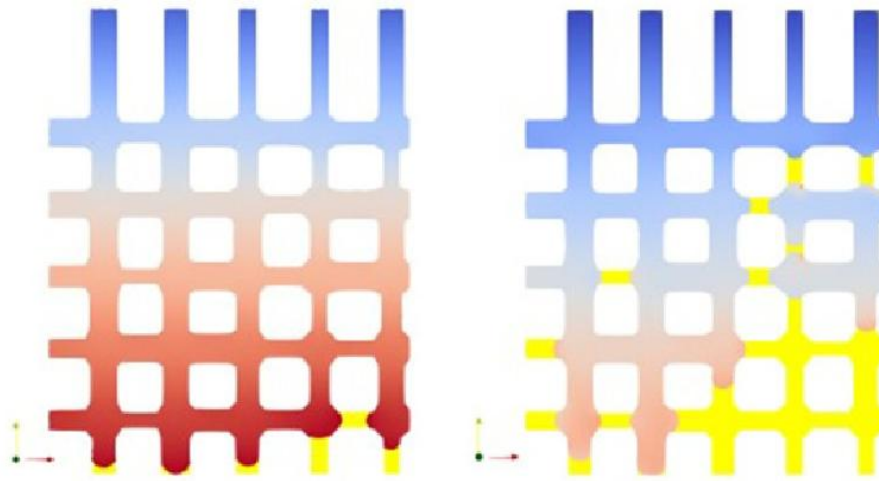


Figure 21 Comparaison du pattern d'invasion du gaz à la percée avec (à droite) et sans (à gauche) effet Kelvin (issu de [22])

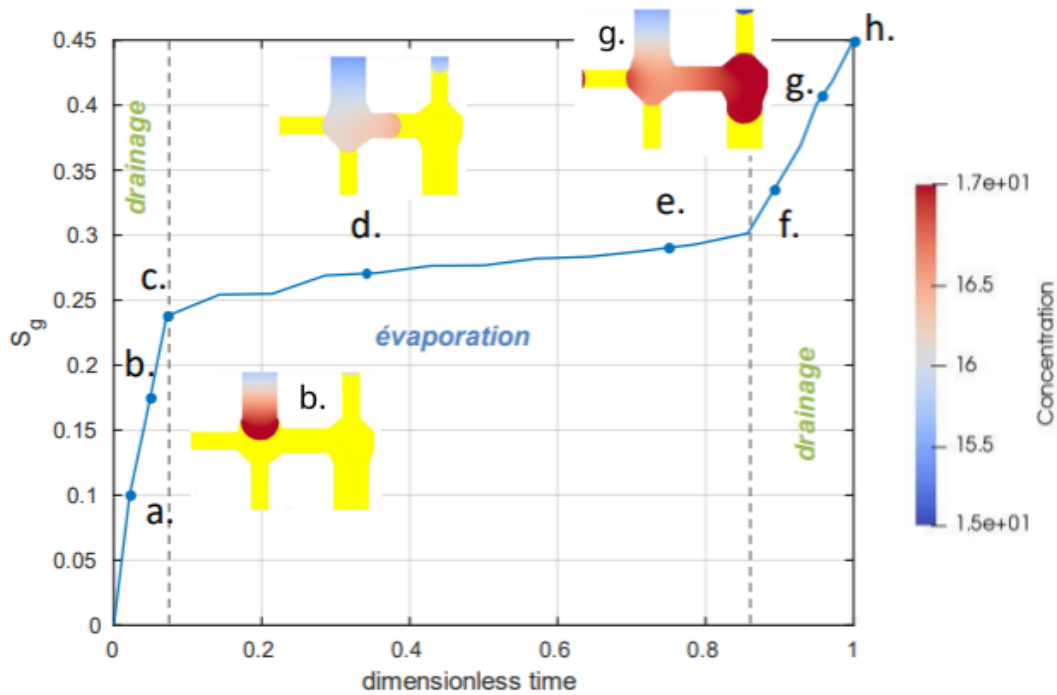


Figure 22 Evolution de la saturation en gaz en fonction du temps adimensionalisé (par rapport au temps de percée) avec illustration des patterns de concentration (en jaune la phase liquide) et indication des mécanismes de déplacement (image construite d'après [219])

- Une étude couplant les mécanismes de drainage et de séchage (Figure 22). La géométrie est choisie avec des pores permettant à la fois le drainage et le séchage, des pores ne permettant que le séchage et enfin des pores ne permettant ni l'un ni l'autre. Ces travaux mettent en avant que les mécanismes d'évaporation peuvent permettre d'atteindre des pores que les simulations classiques de drainage ne peuvent désaturer, soit parce qu'ils sont trop petits, soit parce qu'ils sont connectés via des pores plus petits.

4.4.4 Ecoulement des gaz dissous et électroosmose

Les travaux présentés ci-après sont issus des projets NEEDS MECHE et EURAD WP GAS et sont développés dans le manuscrit de thèse de Nathan Amrofel :

Amrofel, N. (2024). Caractérisation numérique des phénomènes de couplage multiphysique sur la migration de gaz dans une roche argileuse saturée aux échelles mésoscopiques (Doctoral dissertation, Université de Lorraine).

L'état de l'art de [220] sur l'électro-osmose met en avant la capacité de ce mécanisme à favoriser le pompage de fluide vers les pores les plus fins. Dans le cas du stockage de déchets radioactifs, il est établi que la perturbation alcaline et son déplacement génère un champ électrostatique [208]. Si ce dernier est considéré comme négligeable macroscopiquement, il y a cependant des variations à

l'échelle microscopique. De ce fait, l'étude à l'échelle des pores du rôle du couplage électrocinétique et son impact sur le comportement macroscopique est essentiel. Tournassat et al. [221], d'ailleurs, relèvent l'importance de ce type de couplage pour l'étude des milieux nanoporeux. Dans leur étude, Yang et al. [222] ont modélisé la migration des radionucléides dans les argiles et leur impact sur la diffusivité en milieu non-saturé à l'aide d'une approche LBM. Les travaux de [223], [224] ont permis de résoudre, à l'échelle des pores, le modèle Poisson-Nernst-Planck sans approximation en régime transitoire et avec une condition de densité surfacique de charge constante aux interfaces. Les travaux ci-après utilisent un modèle LBM inspiré de [224], appliqué à un milieu poreux complexe.

Une illustration des résultats, présentée Figure 23, compare le champ de vitesse sans couplage électrocinétique, dont le moteur est donc uniquement le gradient hydraulique, et un champ de vitesse avec un couplage électrocinétique significatif, dont le moteur est à la fois le gradient hydraulique et le gradient de potentiel électrostatique. On observe en particulier la sollicitation de plus de pores, et donc moins de zones mortes, avec l'établissement d'un écoulement transverse au gradient hydraulique. On peut aussi voir, quand le couplage électrocinétique est significatif, des zones de recirculation et des inversions de sens d'écoulement à l'intérieur d'un même pore. Cette dernière observation est consistante avec les résultats présentés dans [220].

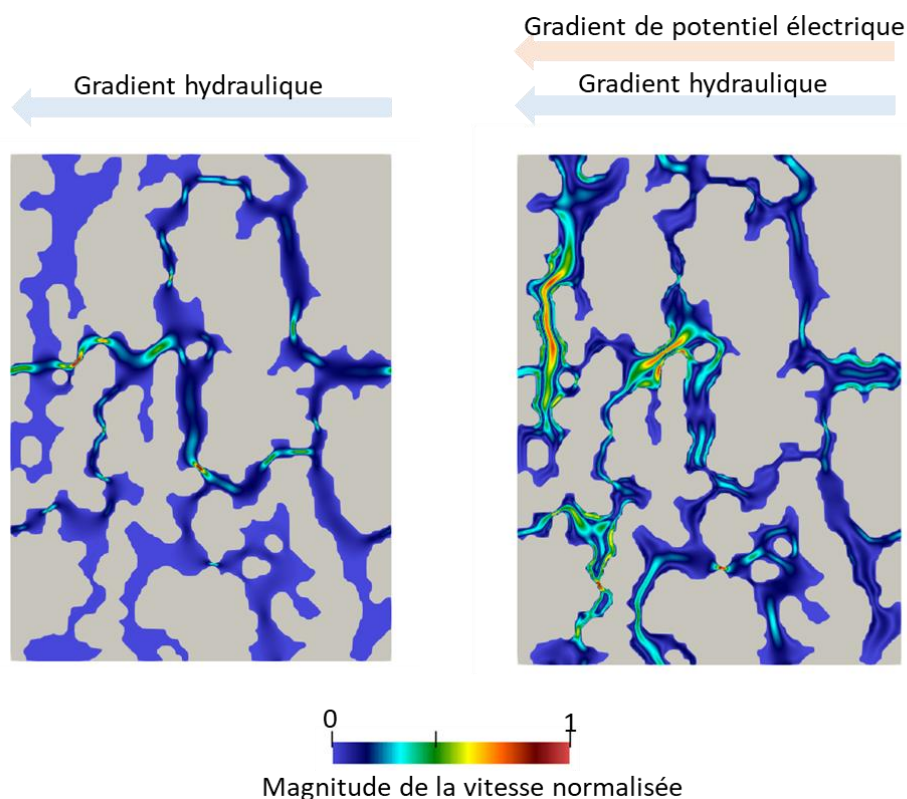


Figure 23 Comparaison des champs de vitesse normalisée avec (à droite) et sans (à gauche) couplage électrocinétique.

4.5 Conclusion et Perspectives

Les travaux présentés montrent l'incrémentation du modèle LBM avec des processus variés, conditions de glissement, changement de phase, couplage électrocinétique. Il est essentiel de bien comprendre le poids relatif de chaque couplage dans ce système particulièrement complexe et à terme de développer les couplages pertinents et d'établir leur champ d'application. L'amélioration des techniques d'imagerie à ces échelles peut à terme permettre l'acquisition de microstructure plus détaillée, pouvant être utilisée dans le modèle. Un enjeu en particulier est de faire le lien avec les modèles aux autres échelles :

- Vers les échelles inférieures: certains phénomènes physiques comme le glissement de la phase aqueuse, ou en conditions diphasiques, restent encore mal compris, la modélisation en dynamique moléculaire peut apporter des connaissances complémentaires qu'il faudra savoir utiliser dans les modèles directs. On peut retrouver quelques exemples dans [127], pour valider son modèle de glissement de la phase gazeuse, ou encore dans l'état de l'art de [225].
- Vers les échelles supérieures: il est essentiel de savoir comment transférer les résultats de l'échelle des pores vers l'échelle du continuum. Si le changement d'échelle numérique permet de calculer des propriétés effectives établies comme la perméabilité relative ou le coefficient de Klinkenberg, cette question reste ouverte pour des systèmes couplés. Par ailleurs, la lourdeur numérique des modèles directs peuvent rendre difficile l'obtention d'un VER, posant de fait les questions à la fois de l'amélioration des performances et de l'approche à utiliser pour le changement d'échelle.

5 SCALE : Approche multi-échelle appliquée à la contamination aux NAPL

5.1 Introduction

Les NAPL (Non Aqueous Phase Liquids) sont une source de contamination du sous-sol et des eaux souterraines majeure. En effet, les hydrocarbures représentent la plus importante source de contamination des sols (à l'échelle européenne : 53% [226]). Cette contamination amène des répercussions sur la santé ainsi que la dégradation à long terme de la qualité des eaux souterraines. Les NAPL sont traditionnellement séparés entre composés légers (LNAPL) et lourds (DNAPL). Les premiers vont majoritairement se déposer à la surface de la nappe, lorsque les seconds vont « couler ». Par conséquent, les études et les techniques de remédiation sont généralement distinctes. Cependant, pour les deux catégories de NAPL, on distinguera les zones où le NAPL est présent en tant que phase fluide sous forme résiduelle ou mobile (zone source) et le NAPL dissous dans les eaux souterraines ou volatile dans l'atmosphère (sous forme de panache dissous ou gazeux). L'étude des panaches est l'objet de nombreuses publications dont on peut trouver des articles d'état de l'art dans [227] (LNAPL) et [228] (DNAPL). La compréhension de la zone source et résiduelle, de sa mise en place, de sa géométrie et de son évolution, bien qu'essentielle à l'établissement des panaches, est par contre moins étudiée [227], [229].

5.2 Objectifs et verrous scientifiques

L'objectif de l'ensemble des travaux présentés ci-après est donc l'étude de la zone source et résiduelle, à différentes échelles et en prenant en compte différents mécanismes de transfert et conditions environnementales. Ces travaux ont été réalisés dans le cadre de divers projets et partenaires, dont des travaux avec l'université de Kumamoto, initiés lors d'un post-doctorat et poursuivis dans le projet H2020 MSCA RISE PROTINUS, mais aussi les projets ADEME Gesipol PURERECUP, QUASPER et BatMobil, le projet financé par le pôle OTELO de l'université de Lorraine EFFECTS, un projet LUE de l'université de Lorraine et le projet ANR BatNap. Ces projets sont entre autres développés via le GISFI (Groupement d'Intérêt Scientifique: requalification des territoires dégradés) dans lequel je suis impliquée depuis une dizaine d'années et s'appuient en particulier sur sa plateforme lysimétrique.

- **Compréhension des mécanismes de transferts associés à la zone source par l'approche DRP**

La zone source d'une contamination au NAPL est particulièrement importante car elle est liée à la contamination au long terme. Les mécanismes physiques contrôlant les transferts dans la zone source et de la zone source vers les panaches dissous ou gazeux font appel à des problématiques d'écoulements multiphasiques avec des systèmes potentiellement ternaires (eau-NAPL-gaz) (e.g. transferts dans la zone non saturée, dans la zone saturée avec dégazage lors d'une remédiation thermique, etc.), mais aussi de transferts réactifs (e.g. volatilisation, dissolution, réactions chimiques, interactions avec le vivant, etc.). La compréhension des transferts est essentielle au développement des modèles de sites conceptuels, pierre angulaire de la gestion des sites et sols pollués [230]. Pour cela, une bonne caractérisation des propriétés de ces systèmes complexes se base sur une meilleure paramétrisation des systèmes à trois phases fluides en milieu poreux (par exemple, quelle est la transférabilité des notions de courbe de rétention, perméabilité relative, établies à l'origine pour des systèmes à 2 phases fluides), la prise en compte de la variabilité de la microstructure (e.g. distribution et connectivité des pores) et des états de surface (e.g. mouillabilité) et enfin une meilleure compréhension des transferts entre phases (e.g. changement d'échelle du coefficient de transfert de masse). Par exemple, les principaux modèles d'écoulement multiphasique utilisés en sites et sols pollués utilisent des formulations basées sur une hypothèse de milieux fortement mouillants à l'eau. Or, selon la composition des sols ou encore l'ancienneté de la contamination, les sols contaminés peuvent à mouillabilité mixte ou fractionnée. Pour tout cela, l'approche DRP est particulièrement intéressante (section 5.3.1).

- **Compréhension des mécanismes de transferts associés à la zone source par une intégration multi-échelle**

L'établissement et l'évolution du profil de NAPL sur site nécessite non seulement la compréhension des mécanismes physiques mais aussi la prise en compte du rôle des hétérogénéités à plus grande échelle, des changements saisonniers incluant les effets du changement climatique, ou encore les modalités opérationnelles (e.g. méthode de remédiation) (section 5.3.2) [230]. Dès lors, la compréhension exclusivement à petite échelle trouve ses limites. Il devient alors nécessaire d'étudier une même problématique à différentes échelles, de celle des pores à celle du site. Un intérêt particulier d'une approche multi-échelle est de mieux comprendre les mécanismes de rétroaction inter-échelles, à la fois l'impact des processus à petite échelle sur le comportement à grande échelle (par exemple, les mécanismes de piégeage, contrôlés par des processus locaux comme la capillarité, impactent la contamination à long terme ou encore l'accessibilité des NAPL aux techniques de remédiation), à l'inverse, des phénomènes à grande échelle influent sur les conditions locales (par exemple, le changement climatique modifie les gradients thermiques

locaux). Une deuxième problématique est d'améliorer le transfert d'information d'une échelle à l'autre.

5.3 Description des travaux réalisés

5.3.1 Echelle des pores

Les travaux suivants sur issues de mes travaux de post-doctorat à l'université de Kumamoto, ainsi que de travaux réalisés dans le projet ADEME Gesipol QUASPER. Ils ont fait l'objet des publications et communications suivantes :

Sbiota, E., Mukunoki, T., Tinet, A-J. (2016), Estimation of water – LNAPL transfer with different granular materials using X-ray CT image analysis. Japanese Geotechnical Society Special Publication 4(7), 150-153

Tinet A-J. (2015), Pore-scale multiphase flow: Comparison between micromodel drainage experiment and pseudopotential MRT Lattice Boltzmann Model, Interpore, Padova, Italy, May 2015 (poster presentation)

Dashtbesh, N., Golfier, F., Tinet, A-J., Oltéan, C., Quintard, M. (2022) Non-Aqueous Phase Liquid dissolution in porous media: Upscaling the mass exchange coefficient. LAMG, Nancy, France, September 2022

Dans les systèmes multiphasiques, le piégeage et le déplacement de NAPL est relié au comportement (saturation, pression) des autres phases en place via des courbes telles que la courbe de rétention et la courbe de perméabilité relative. Ces courbes sont dépendantes des propriétés microstructurelles du milieu ainsi que de la répartition des phases, via des propriétés telles que la saturation et les interfaces spécifiques [81]. Dans l'objectif de mieux comprendre la répartition des différentes phases lors du déplacement de NAPL lors de la contamination, de l'infiltration d'eau (eaux de pluie ou du battement de nappe) ou encore de l'injection d'air (remédiation par air sparging), une approche par imagerie a été réalisée. A l'université de Kumamoto, une succession d'injection de NAPL dans un système saturé en eau puis d'eau dans le système contaminé a été réalisée sur plusieurs milieux granulaires (pack de billes homogènes et hétérogènes et sables) sous μ CT (Figure 24a) [231].

Comme le prédit la loi de Laplace, le NAPL tend à se loger dans les pores plutôt larges, même si la connection entre les pores peut limiter l'accessibilité de certains (Figure 24b). Dans le cas 3, la forme des grains, plus anguleuse, génère une plus grande rétention du NAPL (Figure 24).

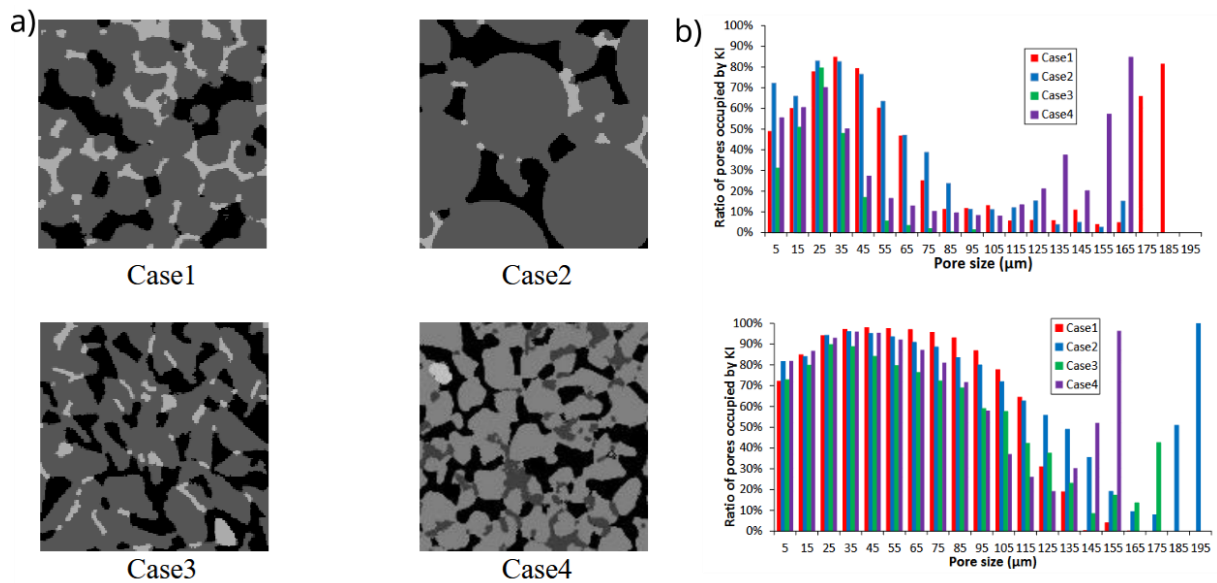


Figure 24 a) Images segmentées de différents sols (billes de verres (cas 1 & 2), billes broyées (cas 3), sable de Toyoura (cas 4), en gris clair, l'eau chargée en KI, en gris, le solide, en noir le LNAPL (NB : dans le cas 4, les couleurs gris et gris foncé sont inversées, le blanc correspondant à du sable magnétique). b) Teneur en eau chargée en KI. Haut : Après la phase de drainage par le LNAPL, Bas : Après la phase d'imbibition par l'eau (issu de [231])

Une étude en micromodèle a aussi été réalisée avec 2 et 3 phases fluides (NAPL et/ou eau et/ou air) (Figure 25a). Dans le cadre d'un système diphasique, les résultats ont pu être confrontés à des simulations LBM (Figure 25b et 25c) [232].

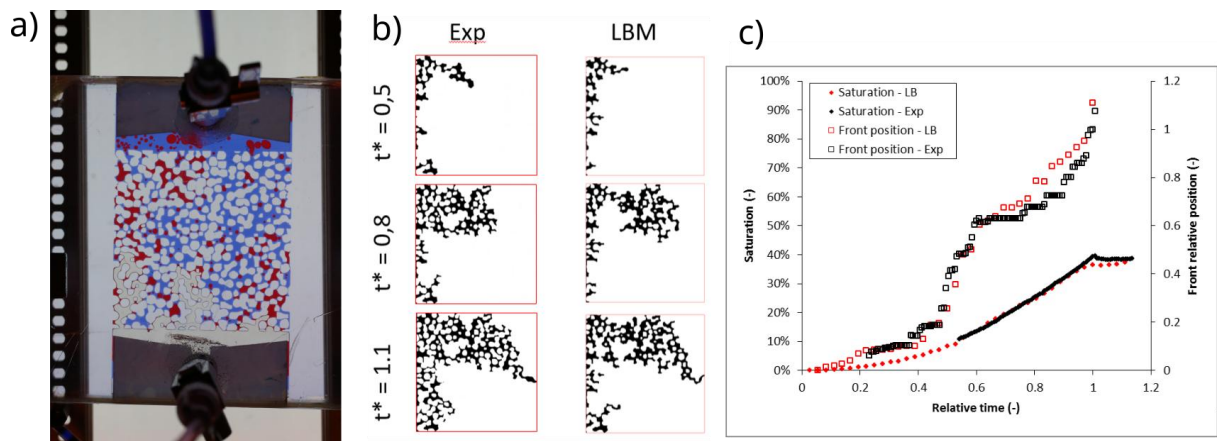


Figure 25 a) Image du micromodèle pendant une injection d'air, l'eau est colorée en bleu, le NAPL en rouge. b) Comparaison de la distribution de phase NAPL lors d'une injection entre expérimentation (images segmentée) et LBM, les temps sont relatifs au temps de percée. c) Comparaison entre expérimentation et modélisation de l'évolution de la saturation en LNAPL et du front d'injection lors de l'injection de LNAPL.

Au-delà du déplacement de la phase NAPL, la bonne modélisation de la génération des panaches via les processus de dissolution et de volatilisation est essentielle. Pour cela, il est important de bien connaître les coefficients de transferts de masse, qui établissent les flux interfaciaux entre les différentes phases. Or, ces coefficients sont généralement construits via des corrélations phénoménologiques (e.g. corrélations de Gilland-Sherwood) disponibles dans la littérature (e.g. [233]). Ces corrélations ne prennent cependant pas en compte l'impact de la géométrie et de la connectivité de la phase NAPL [7], [234] et peuvent varier de plusieurs ordres de grandeur en fonction de la microstructure du milieu. L'utilisation de modèles à l'échelle des pores peut donc permettre de mieux comprendre et prédire les liens entre flux interfaciaux, coefficients de transfert de masse et les propriétés morphologiques du milieu poreux et des phases qui l'occupent. Enfin, l'évolution du coefficient de transfert de masse dans le temps et selon la composition du NAPL a été peu étudiée [235], [236].

Pour répondre en partie à ces questions, une modélisation à l'échelle des pores a été développée avec le logiciel Comsol Multiphysics à partir d'une géométrie simplifiée constituée de bulles immobiles de NAPL dans un pack de cylindres (Figure 26).

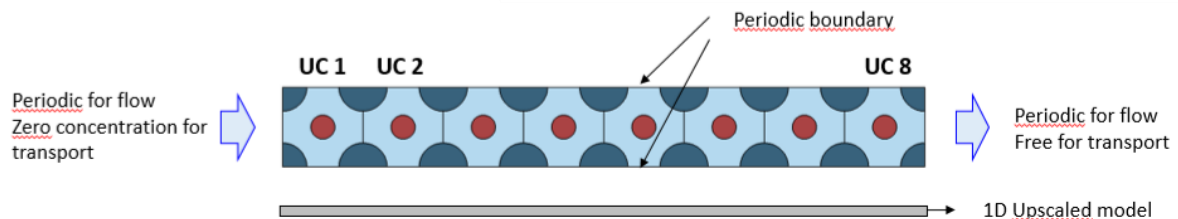


Figure 26 Géométrie et conditions aux limites du cas d'étude. En rouge la bulle de NAPL, en bleu clair, l'eau, en bleu foncé, le solide.

La réactivité étudiée se limite à la dissolution d'un ou plusieurs constituants du NAPL. Plusieurs cas d'études ont été réalisés, avec différentes conditions opérationnelles et compositions du NAPL. Dans le cas de référence, le NAPL est constitué d'un composant non soluble et d'un composant soluble et la géométrie n'évolue pas. Dans le cas d'étude final, le NAPL est constitué de 3 composés solubles et 1 non soluble, la bulle de NAPL s'amenuisant au fur et à mesure de la dissolution sélective de ses composés (Figure 27).

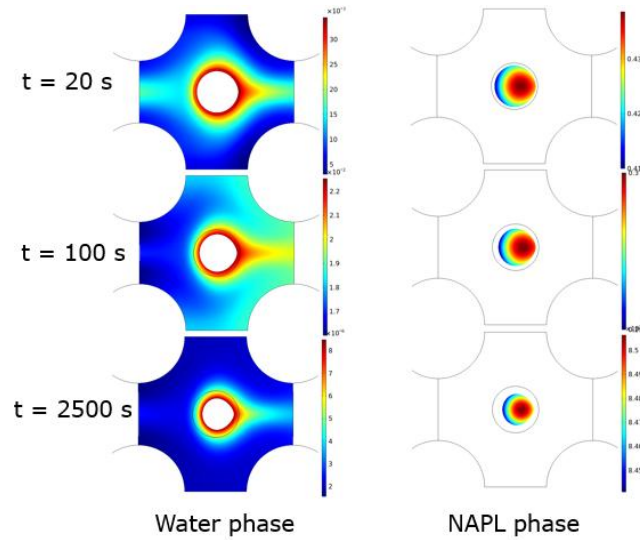


Figure 27 Champ de concentration totale (somme des différentes espèces), dans l'eau et dans le NAPL

Enfin, le coefficient de transfert de masse a été évalué et sa dépendance en fonction de la concentration et de la saturation étudiée, permettant l'établissement de corrélations. Ces dernières ont été évaluées en comparant les résultats de simulation sur un milieu effectif 1D et les résultats de simulations à l'échelle des pores (Figure 28).

Pour le cas de référence, le calcul de coefficient de transfert de masse à l'aide du modèle direct met en évidence son évolution dans le temps, avec l'établissement en particulier de deux plateaux distincts. Une corrélation avec la concentration moyenne a été établie à l'aide d'une loi puissance :

$$\alpha = f(\langle c \rangle) = k_1 \langle c \rangle^{k_2} + k_3 \quad (16)$$

La comparaison entre modèle direct et milieu effectif 1D montre l'efficacité de cette corrélation, en particulier en comparaison avec des constantes et aux temps courts. Par contre, l'utilisation d'une constante, plus simple, est tout à fait pertinente aux temps longs (Figure 28).

Dans le second cas de figure, il est intéressant de noter que, malgré leur différentes concentrations initiales et coefficients de partition, le coefficient de transfert de masse et son évolution sont sensiblement les mêmes pour les trois espèces. Par conséquent, une unique corrélation est établie pour les différentes composants, soit en fonction de la saturation (loi exponentielle), soit en fonction de la concentration moyenne (loi puissance). La corrélation fonction de la concentration permet l'obtention de meilleurs résultats aux temps courts, contrairement aux approches classiques reliant ce paramètre à la saturation (Figure 29).

$$\alpha = f(S) = k_1 \exp(-k_2 S) + k_3 \exp(-k_3 S) \quad (17)$$

$$\alpha = f(\langle c \rangle) = k_1 \langle c \rangle^{k_2} + k_3 \quad (18)$$

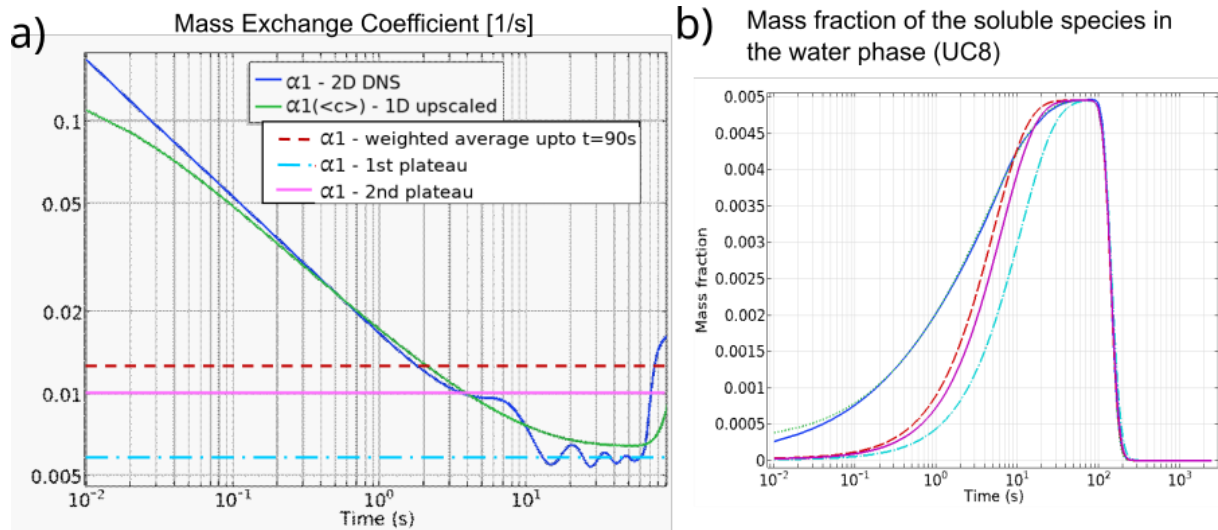


Figure 28 Cas de référence. a) Evolution du coefficient de transfert de masse (DNS) et les différentes corrélations proposées. b) Comparaison du modèle direct (DNS) et des modèles 1D avec les différentes corrélations proposées.

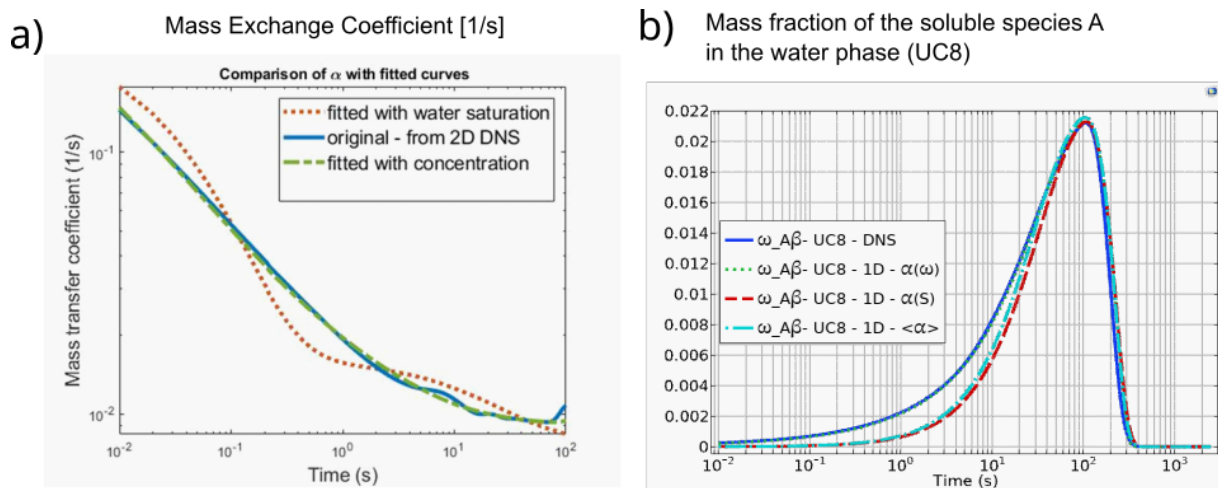


Figure 29 Cas multi-espèces. a) Evolution du coefficient de transfert de masse (DNS) et les différentes corrélations proposées. b) Comparaison du modèle direct (DNS) et des modèles 1D avec les différentes corrélations proposées, exemple de l'espèce A.

5.3.2 Echelle du continuum

Dans le but de mieux comprendre le rôle des conditions opérationnelles et/ou environnementales sur les sols contaminés, il est nécessaire d'étudier ces phénomènes à plus grande échelle, tout en permettant un certain contrôle des conditions d'étude. C'est pourquoi les essais expérimentaux à l'échelle du milieu continu, éventuellement intégrant des hétérogénéités de plus grande taille, sont particulièrement utilisés. Dans les travaux présentés ci-après, des expériences en colonnes et en

lysimètre ont été réalisées pour mieux comprendre l'impact du changement climatique sur les sites contaminés. Ces études demandent une forte implication multidisciplinaire et font donc l'objet d'un consortium de recherche présent dans plusieurs projets de recherche (projet LUE de l'université de Lorraine, projet EFFECT du pôle OTELO de l'université de Lorraine, projet Carnot ICEEL Kapflex, projet Ademe Gesipol BatMobil et projet ANR Batnap).

Le changement climatique et son impact sur la zone critique ont déjà été les objets de nombreuses études (e.g. [237], [238]). Dans la zone ouest-européenne, qui inclut la partie nord de la France, la température de la surface pourrait augmenter de 5 à 7°C en été et de 2.5 à 3.5 °C en hiver d'ici la fin du siècle [239], la température des sols et des eaux souterraines augmentant de manière similaire [240]. Par ailleurs, une augmentation de l'intensité et de la fréquence d'évènements extrêmes tels que les fortes précipitations et les sécheresses est attendue [237], [238]. Or, ces phénomènes auront vraisemblablement un impact sur les sites contaminés. En effet, ils impliquent une évolution des cycles d'imbibition - drainage du fait des battements de nappes successifs dans la zone non-saturée, et par conséquent du piégeage et du lessivage des contaminants. Par ailleurs, les propriétés physiques des contaminants (viscosité, capacité de sorption, etc.), comme les NAPL, et leur interaction avec le sous-sol (e.g. dissolution, biodégradation, volatilisation, etc.) sont dépendantes de la température [241].

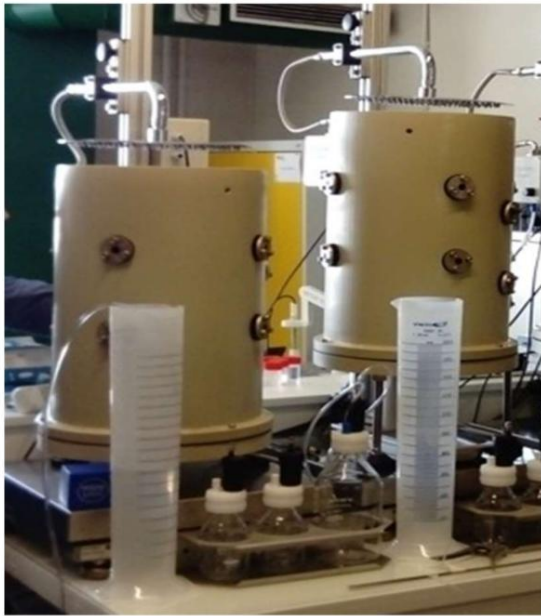
- Impact du changement climatique sur le transfert de contaminant en zone non saturée

Une première étude expérimentale s'est donc intéressée à l'impact de deux scénarios climatiques (actuel et avec prise en compte du changement climatique) sur la contamination résiduelle en zone non-saturée.

Cette étude permet, entre autres, de mieux comprendre les transferts de contaminants par drainage vers la nappe, grâce à l'analyse des effluents. Cette étude a été réalisée sur une colonne de taille intermédiaire (diamètre 30cm, hauteur 50 cm) permettant le suivi de plusieurs propriétés physicochimiques dont la succion, la température, la teneur en eau, le pH, les conditions redox ainsi que des caractérisations plus complètes des effluents tout au long de l'expérience (Figure 30a). Les scénarios climatiques couvraient plusieurs cycles été – hiver incluant la simulation de pluie et une thermorégulation du sol (Figure 30b). Un sol de cokerie contaminé par des HAP (Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques), sous forme solide, et aux métaux a été utilisé. On notera que, dans cette étude, il n'y a pas de phase NAPL distincte. Les premiers résultats semblent indiquer une amplification par le changement climatique des tendances observées sous le climat actuel (Figure 30b). Cependant, au regard du nombre de paramètres observés pour seulement deux scénarios, il

est nécessaire d'obtenir plus de données pour pouvoir établir des corrélations de manière plus certaine.

a)



b)

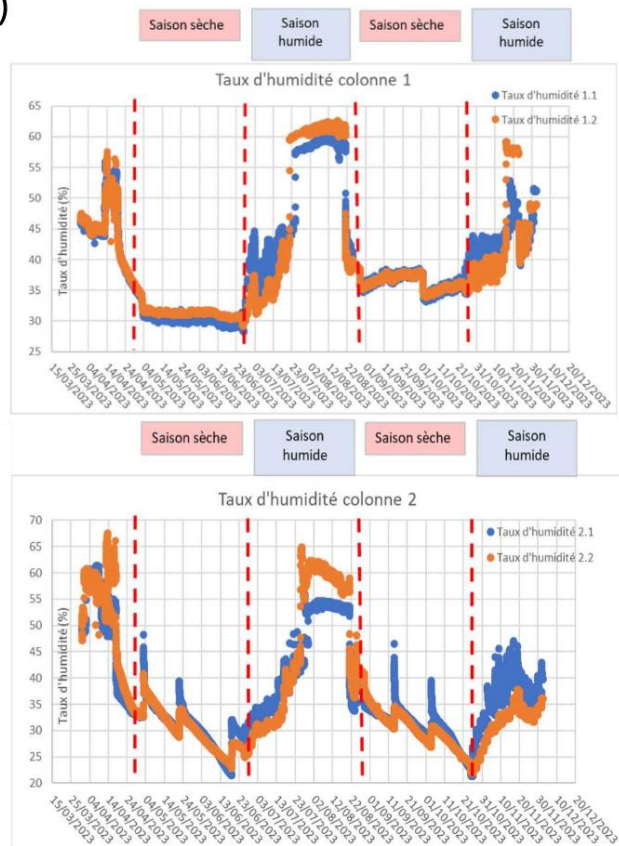


Figure 30 a) Colonnes de mesure. b) Evolution du taux d'humidité d'après les tensiomètres pour chaque essai (haut : climat actuel, bas : avec changement climatique)

- Impact du changement climatique sur le transfert de contaminant dans la zone de battement de nappe

Un autre impact du changement climatique, mais aussi de l'augmentation de la pression sur la ressource en eau, est l'intensification des battements de nappe [237], [242], [243]. Cette augmentation attendue des variations de niveau piézométrique impacte le relargage de LNAPL [244], [245], [246] ainsi que la capacité d'atténuation des sols [247]. En particulier, les battements de nappes saisonniers provoquent un étalement du LNAPL dans la frange capillaire [248] et, par conséquent, augmentent les interfaces d'échange entre le LNAPL et les phases aqueuse et gazeuse du sol [249]. Dans l'objectif de mieux comprendre le lien entre le relargage des contaminants et les variations de niveau piézométrique, en particulier dans un contexte de changement climatique, une étude en lysimètre a été mise en place. Les travaux présentés ci-après ont fait l'objet de la publication suivante :

Cavelan, A., Faure, P., Lorgeoux, C., Colombano, S., Deparis, J., Davarzani, D., Enjelvin, N., Oltéan, C., Tinet, A.J., Domptail, F. & Golfier, F. (2024). An experimental multi-method approach to better characterize the LNAPL fate in soil under fluctuating groundwater levels. *Journal of Contaminant Hydrology*, 262, 104319.

Le lysimètre (1 m de diamètre, 2 m de hauteur) (Figure 31A), est équipé d'un système de régulation du niveau piézométrique, de génération de pluie ainsi que de multiples équipements de mesure permettant l'acquisition de données de poids, pression capillaire, teneur en eau, température, permittivité, pH, conditions redox, mais aussi de mesures des effluents liquides et gazeux ainsi qu'un contrôle du niveau d'eau et de LNAPL dans le piézomètre central (Figure 31A). Deux scénarios climatiques, dont le scénario actuel, présenté dans [250], ont été étudiés (Figure 31B).

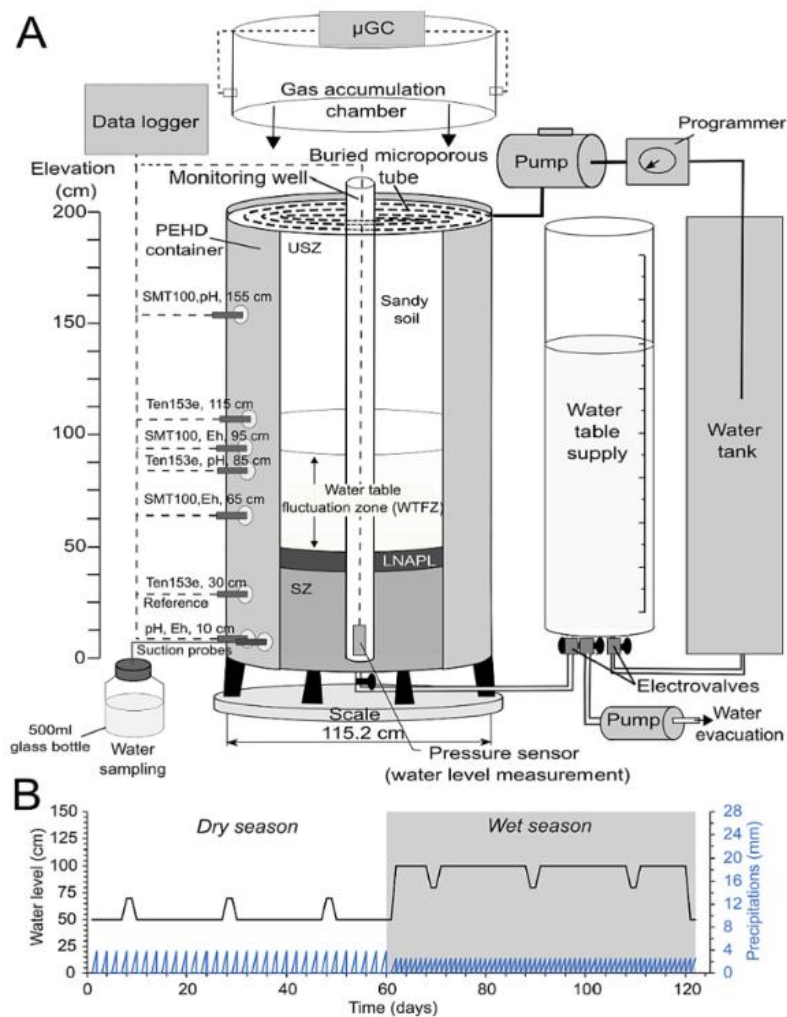


Figure 31 A) Colonne lysimétrique instrumentée. B) Scénarios de battement de nappe et de précipitations pour le climat actuel (issu de [250])

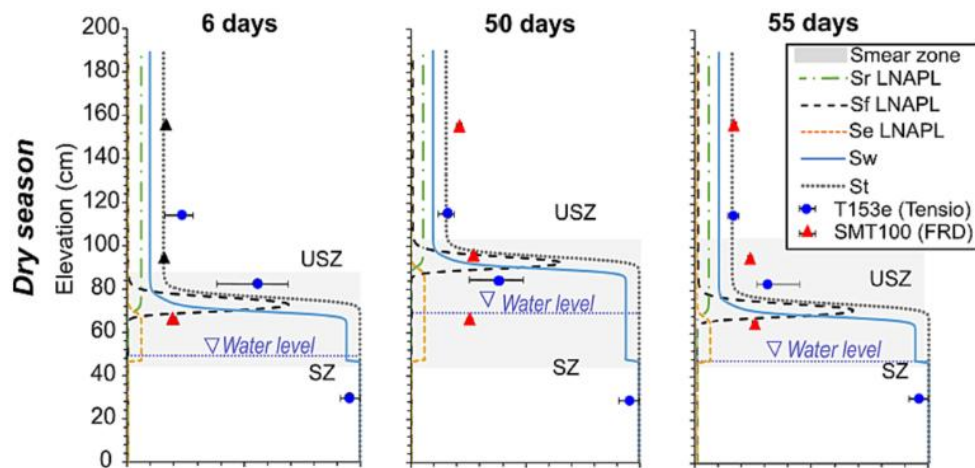


Figure 32 Evolution des distributions de NAPL total (St), piégé (Sr et Se) et libre (Sf), et de la saturation en eau (Sw) lors de la saison sèche pour le climat actuel (issu de [250])

Les données sur l'étude du battement de nappe pour le scénario actuel confortent et complètent les résultats de la littérature. Les variations du niveau piézométrique favorisent en effet un étalement du LNAPL mais cet effet est plus marqué pour la saison sèche que pour la saison humide (Figure 32).

La comparaison entre les deux scénarios climatiques montre que l'augmentation des battements de nappe génère un plus grand étalement des LNAPL et par conséquent des interfaces avec les phases aqueuses et gazeuses (Figure 33). Ceci a pour effet des plus grands taux de volatilisation et de dissolution et implique donc une augmentation des risques pour la qualité de l'air et de l'eau à court terme mais aussi une baisse de la durée de vie de la pollution.

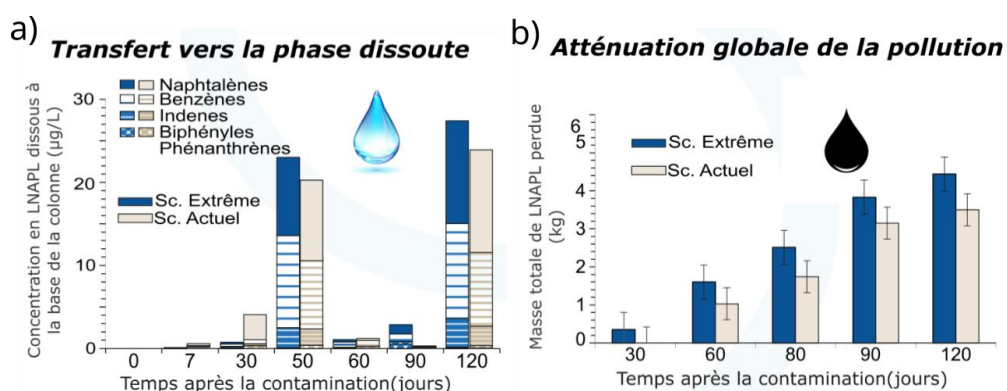


Figure 33 a) Evolution des concentrations de LNAPL mesurées en phase dissoute à la base de la colonne d'eau. b) Masse de LNAPL totale perdue dans la colonne (d'après [251])

Au-delà de la compréhension de l'évolution de la contamination du sous-sol, les études à grande échelle, en particulier de modélisation, peuvent permettre d'évaluer les techniques de remédiation. A ce titre et dans le cadre du projet Ademe Gesipol PURERECUP, un modèle numérique a été développé sous Comsol Multiphysics. Ce modèle, impliquant un système triphasique (eau, air, NAPL), des réactions aux interfaces dont la volatilisation en particulier et un couplage avec les effets thermiques, avait pour but d'évaluer les techniques de remédiation thermique de la zone source pour des DNAPL (solvants chlorés) [252]. Ces techniques impliquent en particulier l'injection d'air chaud, de vapeur d'eau ou d'une mixture favorisant des réactions exothermiques, dans le but de volatiliser le DNAPL, permettant alors une extraction des gaz. Le modèle numérique développé a été évalué avec succès vis-à-vis de résultats de la littérature sous différentes conditions : modélisation de l'injection d'air, sans couplage thermique [253], volatilisation de l'eau dans un système diphasique chauffé (expérience de Mascilia, [254], [255]) (Figure 34).

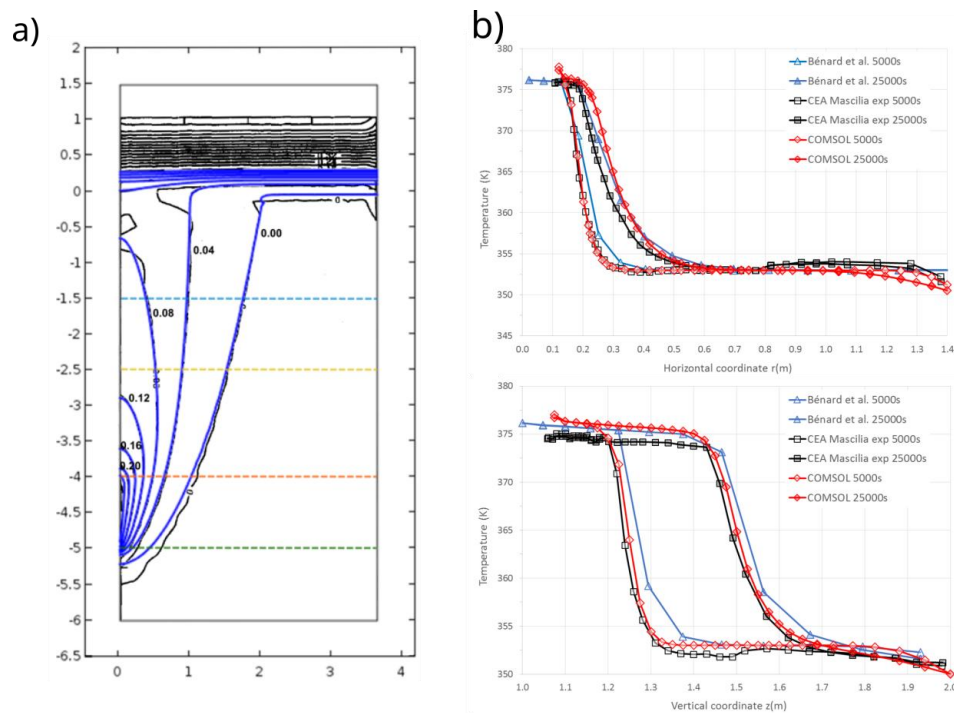


Figure 34 a) Comparaison avec les résultats de [253] des champs de saturation en air (bleu = modèle COMSOL). b) Comparaison des champs de température selon l'axe horizontal (haut) et vertical (bas) pour l'expérience de Mascilia

5.4 Conclusion

Les résultats présentés montrent les enjeux aux différentes échelles autour de la contamination des sols aux NAPL.

A l'échelle des pores, l'expérimentation en micromodèle et la modélisation permet de mieux comprendre à la fois le déplacement des différentes phases mais aussi les échanges entre phases ou encore la biodégradation [172]. Cependant, le champ d'investigation reste vaste. Des premiers modèles numériques se sont déjà intéressés à l'hétérogénéité tant pour les propriétés géométriques que pour la mouillabilité [256], [257] mais la corrélation entre propriétés morphologiques et paramétrisation des courbes de rétention et de perméabilité relative reste à déterminer. Par ailleurs, les interactions dans un système à trois phases fluides restent encore peu étudiées en milieu poreux (e.g. [258]).

A l'échelle continue, des outils expérimentaux fortement couplés ont été mis en place et des premières études réalisées. Cela ouvre la porte à d'autres travaux, qui pourront renforcer les jeux de données et donc la compréhension de l'évolution des sols contaminés en particulier sous contexte du changement climatique. Enfin, une extension à l'échelle de terrain est essentielle pour intégrer d'autres d'incertitudes.

6 Perspectives

Les travaux présentés ont permis des avancées dans la compréhension de différents mécanismes avec un focus particulier sur l'échelle des pores par l'approche Digital Rock Physics (Image and Compute) ainsi qu'une ouverture vers les échelles supérieures, tant par une approche de changement d'échelle numérique à partir des simulations directes que par le développement d'expériences à différentes échelles, des pores au terrain. Ces travaux sont amenés à être poursuivis, permettant, entre autres, l'acquisition de plus de données et, donc, des interprétations plus robustes. Par ailleurs, plusieurs perspectives d'études émergent :

1) Complexification des modélisations à l'échelle des pores

Les méthodes numériques à l'échelle des pores, et en particulier la méthode Lattice Boltzmann, permettent de représenter des physiques diverses (écoulement mono et diphasique, transferts de masse, de chaleur, etc.) ainsi que présenté dans les travaux précédents et la littérature. Des problèmes couplés, en particulier des couplages hydromécanique et relevant du transport réactif ont aussi été développés. Cependant, il reste encore un espace de recherche significatif pour l'étude de systèmes couplés, plus complexes, qui peut permettre non seulement de décrire des comportements à l'échelle continue, via, par exemple, l'établissement de corrélations ou l'évaluation par changement d'échelle numérique de propriétés effectives, mais aussi de mieux comprendre les croisements et les compétitions entre différents mécanismes. L'évolution des techniques d'imageries, comme par exemple l'association entre microtomographie et cartographie chimique, est très prometteuse quant à l'acquisition de nouvelles données expérimentales d'intérêt. On notera, plus particulièrement, les problématiques suivantes :

- Compréhension des mécanismes diphasiques en nanopores: Ainsi que développé précédemment, les mécanismes diphasiques sont aussi encore un sujet de recherche actif. Les simulations de dynamiques moléculaires sont un appui fort pour mieux comprendre les phénomènes à l'œuvre, comme le rôle de la double couche électrique [13], [259], les mécanismes de glissement de l'eau [215] ou la transition entre les phases eau et gaz, générant une viscosité effective [260]. Il existe donc une nécessité de développer des couplages associant écoulement diphasique, incluant les phénomènes spécifiques aux nanopores, et électroosmose. Si des premiers travaux existent, par exemple pour la prise en compte des mécanismes spécifiques aux nanopores [260], [261], les développements numériques sont le plus souvent limités à des géométries simples (e.g. capillaires droit, milieu modèle 2D) et l'extension à des systèmes poreux réalistes reste un défi. Une première collaboration avec

des modélisateurs en dynamique moléculaire a d'ailleurs déjà été établie dans le cadre du projet NEEDS MECHE.

- Modélisation du transport réactif : Si des modèles de transport réactifs existent, incluant des réactions avec ou sans modification de la structure porale, avec plusieurs espèces ou encore en conditions diphasiques, y compris incluant un changement de phase (en général monocomposants), il s'agit encore d'un domaine de recherche actif [3]. Les applications en système ternaire (avec trois phases fluides) en milieu poreux restent peu développées, ainsi que le couplage avec des réactions géochimiques plus complexes [170].
- Couplage entre écoulement multiphasique et géophysique (conductivité et permittivité électrique) : Les méthodes DRP ont déjà été appliquées pour évaluer la conductivité électrique (e.g. [11]), mais uniquement dans un système saturé. Par ailleurs, le couplage entre écoulement et équation d'onde, permettant notamment l'évaluation de la permittivité, est plus rare (e.g. [166]). Des travaux sont d'ailleurs déjà prévus sur cette thématique dans le projet ANR BatNap.
- Prise en compte de l'évolution des propriétés fluides et de la microstructure: Les propriétés des fluides (masse volumique, viscosité) sont dépendantes de leur composition, de la température, etc. La prise en compte de ces dépendances et leurs impacts sur les transferts, les échanges aux interfaces ainsi les propriétés effectives reste rare [2], [261]. Par ailleurs, la microstructure est hétérogène, tant d'un point de vue géométrique que de ses propriétés physico-chimiques (e.g. matière organique et inorganique [261]). L'impact de l'évolution de ces propriétés, dans l'espace et dans le temps, est particulièrement intéressant. Par exemple, la mouillabilité dépend de la répartition entre matière organique et inorganique [261] mais peut évoluer du fait de la dégradation de la matière organique, de l'adsorption d'une phase liquide organique ou encore de l'action de surfactant ou biologique [260]. C'est par exemple le cas lors du stockage d'hydrogène [8].

2) De l'échelle des pores à l'échelle continue pour des systèmes couplés

L'étude des systèmes couplés via des approches à plusieurs échelles, que ce soit expérimentalement ou numériquement, reste un enjeu important. Il est cependant essentiel de faire communiquer les différentes échelles et de ne pas rester sur une approche « en silo ».

En ce qui concerne plus particulièrement les échanges entre échelle des pores et échelle continue, lorsque que l'hétérogénéité (dans sa structure et/ou ses propriétés locales) du milieu étudié est accrue, ou encore lorsque les mécanismes étudiés sont complexes et/ou couplés, le VER peut voir

sa taille considérablement augmenter voire son existence remise en question [262]. Par exemple, un diagramme qui permet d'identifier quand un modèle de transport réactif multiéchelle est nécessaire, par opposition à un modèle équivalent, a été établi [10]. Par ailleurs, les modèles à l'échelle des pores restent coûteux numériquement, que ce soit en temps de calcul ou en espace mémoire. Ce coût numérique dépend des mécanismes étudiés, par exemple, lorsque des mécanismes en proche surface sont significatifs (e.g. film d'eau ou double couche), la résolution utilisée doit être plus fine et donc le coût plus important. En effet, la préservation des processus mis en jeu à petite échelle est souvent essentielle sur le comportement macroscopique [3]. Ces enjeux posent alors la question de l'applicabilité d'un changement d'échelle numérique direct à partir des résultats de modélisation pour les problématiques couplées. La seule amélioration des ressources numériques ne peut permettre de répondre à ces défis [2], il s'agit donc de développer des approches alternatives, avec différentes stratégies, pouvant être éventuellement combinées.

a) L'utilisation d'une échelle intermédiaire

Une approche de modélisation intermédiaire, permettant de représenter un domaine de taille plus importante, peut permettre d'atteindre le VER et/ou intégrer une plus large gamme d'hétérogénéités tout en étant performant numériquement. Les modèles de réseaux poreux (ou PNM) répondent à ces enjeux. Les PNM sont fondés sur des simulations sur des géométries simplifiées du milieu, les réseaux poreux, composés d'une association de pores et de liens. Les simulations quant à elles utilisent une représentation simplifiée des physiques en jeu en général basées sur des corrélations théoriques ou empiriques, comme la relation de Hagen-Poiseuille pour l'écoulement ou la loi de Laplace pour évaluer la pression capillaire d'invasion [30]. Ces corrélations ont cependant leurs limites en particulier en ce qui concerne les impacts de particularités géométriques (e.g. rugosité [30]), la prise en compte de certains comportements (e.g. films d'eau, courbure des interfaces [263], [264], glissement, interactions fluide-solide (mécanique ou réactive), double couche, etc.), la limite d'applicabilité des corrélations et la prise en compte des couplages et de leurs compétitions. Les modèles directs, sur des géométries plus restreintes ou simplifiées, peuvent donc enrichir les PNM, soit indirectement via l'amélioration des corrélations, soit directement via l'utilisation de modèles hybrides.

b) L'hybridation de modèle

Le principe général de l'hybridation est d'associer deux ou plus modèles numériques avec pour but soit l'amélioration des performances numériques, en associant un modèle plus performant sur une partie du problème à un modèle moins performant, soit l'augmentation de la taille de l'échantillon modélisé (ou Field Of View FOV) grâce à une approche multiéchelle. L'hybridation est

particulièrement utilisée pour la modélisation de la porosité sous-résolution (e.g. [179], [265]), des systèmes fracturés (e.g. [178]), du transport réactif ([10], [266]), des écoulements multiphasiques (e.g. [265]) et en particulier du déplacement d'interface (e.g. [264]) ou encore des couplages hydromécaniques. Soulaïne et al. [267] classe les méthodes hybrides selon deux catégories :

- Les méthodes à deux domaines. Les différents modèles numériques sont alors associés à différents domaines géométriques. Une configuration assez classique est les systèmes fracturés, un des domaines représentant la matrice poreuse et un autre les fractures. La modélisation de l'interface entre matrice et fracture est alors essentielle [261]. On peut noter aussi la possibilité de superposer les deux domaines, en particulier pour la représentation d'un grand nombre de fractures (e.g. [268]).
- Les méthodes à un domaine. Dans ce type de méthode, les conditions d'interfaces sont intégrées à l'écriture des équations. Les modèles de microcontinuum [265], [267] font partie de cette catégorie. En ce qui concerne la méthode Lattice Boltzmann, les modèles « Grayscale LBM » ont été développés pour la simulation de l'écoulement de Darcy-Brinkman et ont depuis été appliqués aux systèmes multiphasiques [179]. Leur extension à d'autres applications reste ouverte.

c) Les méthodes d'apprentissage (Machine Learning – ML)

L'intelligence artificielle (IA) est une thématique de recherche très active avec de nombreuses applications. Son utilisation, et particulièrement les techniques d'apprentissage (Machine Learning – ML), dans le contexte des milieux poreux fait l'objet de plus en plus d'études (e.g. [269], [270], [271]). Des premiers travaux dans le domaine de l'IA sont prévus dans le cadre du WP HERMES du projet EURAD2 (interactions avec des modélisateurs IA) et dans le cadre du PEPR Sous-Sol – Digital Earth.

Les méthodes de ML peuvent être classifiées selon qu'elles soient :

- Basées sur les données (data-based ou data-driven) : Les méthodes data-based les plus courantes sont les approches par réseaux neuronaux : CNN (Convolutional Neural Network) (e.g. [44], [272], [273], [274] etc.), ANN (Artificial Neural Network) (e.g. [45], [275], [276], RNN (Recurrent Neural Network) (e.g. [277]), etc.
- Basées sur la physique (physic-based) : Les méthodes les plus courantes sont les PINN (Physics-Informed Neural Network) (e.g. [278], [279]) ou encore les TgNN (Theory-guided Neural Network) [271]

Les approches ML sont entre autres utilisées dans un contexte de modélisation multi-échelle dans de nombreux contextes tels que les écoulements multiphasiques [270], le transport réactif [277] appliqué à la séquestration de CO₂ [3] ou encore au stockage de déchets radioactif [2], [275]. Des modèles à réseaux de neurones (principalement CNN et ANN) ont par exemple été utilisés pour l'estimation multiéchelle de la perméabilité (e.g. carbonates [280], milieu fracturé [274], [281], réservoirs [282], [283]), de la perméabilité relative [45], de la diffusion effective ([273], [277], [284]), de la conductivité thermique effective [285], de la surface spécifique [277] mais aussi pour l'estimation des champs de vitesse [283], de concentration [284], de saturation [286], des états d'équilibres géochimiques [275], [287].

Les liens entre ML et DNS sont donc divers, selon les objectifs et l'approche utilisée. On peut noter en particulier les interactions suivantes :

- **Utilisation du ML en remplacement de simulations directes (DNS) pour alimenter les modèles à l'échelle continue.** Il existe alors différentes manières d'entraîner la méthode ML :
 - Les méthodes ML sont entraînées directement par des images, par exemple, de μ CT ou de SEM, qu'elles soient brutes ou segmentées (e.g. [274], [280]). Les méthodes DNS sont alors utiles pour valider les résultats issus des modèles d'apprentissage.
 - Les méthodes ML sont entraînées à partir d'images et des propriétés morphologiques issues de ses images. Au-delà de la validation des résultats, les méthodes DNS peuvent aussi permettre de mieux choisir les propriétés morphologiques les plus pertinentes (e.g. [276], [288]). Il reste donc fondamental de bien comprendre le lien entre comportement phénoménologique et caractérisation morphologique.
 - Les méthodes ML sont entraînées à partir des résultats de simulation DNS (e.g. [283], [284]). Dans ce cas de figure, il n'est pas nécessaire de réaliser les simulations sur un VER, mais le nombre de simulations DNS nécessaire peut être significatif pour parvenir à un résultat pertinent. Rabbani et al. [45] ou encore Wu et al. [273] ont fait état de plusieurs milliers de simulations directes pour entraîner, valider et tester leur modèle d'apprentissage.
- **Hybridation entre modèle DNS et ML.** Le modèle d'apprentissage remplace alors une partie seulement de la modélisation à l'échelle des pores. Prasianakis et al. [275] ont par exemple couplé un modèle LBM d'écoulement avec un modèle ML de géochimie, en se

basant sur le fait que le couplage géochimique était le plus coûteux numériquement, permettant une accélération de 1 à 4 ordres de grandeur.

- **Utilisation des données ML en entrée d'un modèle DNS pour accélérer les simulations** à l'échelle des pores [44].

Si les études sur les méthodes d'apprentissage basées sur les données sont de plus en plus nombreuses, il existe encore de nombreux défis à relever :

- La grande diversité des approches, même si les CNN semblent les plus courants, provoque nécessairement la question du **choix du « bon » modèle** d'apprentissage pour une problématique donnée.
- Lien entre ML et modélisation physique: **l'intégration de contraintes physiques** lors de l'apprentissage fait l'objet de plusieurs méthodes mais nécessite encore des développements [269], par exemple Prasianakis et al. [275] relève une absence de garantie de conservation de la masse.
- **Déterminer une bonne sélection des données d'entraînement.** Plusieurs limitations sont documentées quant au choix des données d'entraînement, tant en ce qui concerne leur quantité [3] ou encore leur équilibre [269]. Pour améliorer le jeu de données, pouvant être difficiles ou coûteuses à acquérir, le développement de benchmark, ou encore la génération accélérée de données [272] sont des solutions possibles.
- La **capacité des modèles obtenus par ML à être étendus** au-delà de la gamme définie par les données d'entraînement peut être limitée. Par exemple, le modèle développé par [284] sur les sables n'est pas applicable aux tissus biologiques. Wang et al. [3] évoquent le défi d'étendre des modèles entraînés sur des données générées automatiquement, parfois en 2D, à des milieux poreux réalistes. Karimi et al. [277] insistent sur la nécessité de développer des approches de calculs d'incertitudes.
- **Application à des problèmes complexes**, comme par exemple des milieux hétérogènes, des problèmes non-linéaires, couplés, etc.

Enfin, si les modèles basés sur les données font l'objet de nombreuses publications, les modèles basés sur la physique, bien que présentant des avantages certains (prise en compte des contraintes physiques, plus grande capacité à être étendus, moins de données nécessaires à l'apprentissage), restent plus rares. On peut trouver plusieurs applications à l'échelle continue par exemple pour les écoulements multiphasiques [278], [279], les applications à l'échelle des pores restent rares (e.g. [289]). L'extension à des problématiques plus complexes reste ouverte.

Références

- [1] S. Levasseur *et al.*, « Initial State of the Art on Gas Transport in Clayey Materials. Deliverable D6.1 of the HORIZON 2020 project EURAD, Work Package Gas. EC Grant agreement no: 847593. » 2021.
- [2] S. V. Churakov *et al.*, « Position paper on high fidelity simulations for coupled processes, multi-physics and chemistry in geological disposal of nuclear waste », *Environ. Earth Sci.*, vol. 83, n° 17, sept. 2024, doi: 10.1007/s12665-024-11832-7.
- [3] W. Wang *et al.*, « Pore-scale simulation of multiphase flow and reactive transport processes involved in geologic carbon sequestration », *Earth-Sci. Rev.*, vol. 247, déc. 2023, doi: 10.1016/j.earscirev.2023.104602.
- [4] A. Peter, D. Yang, K. I. I. Eshiet, et Y. Sheng, « A Review of the Studies on CO₂–Brine–Rock Interaction in Geological Storage Process », *Geosci. Switz.*, vol. 12, n° 4, avr. 2022, doi: 10.3390/geosciences12040168.
- [5] S. Krevor *et al.*, « Subsurface carbon dioxide and hydrogen storage for a sustainable energy future Subsurface carbon dioxide and hydrogen storage in a sustainable energy future », *Nat. Rev. Earth Environ.*, vol. 4, p. 102-118, 2023, doi: 10.1038/s43017.
- [6] C. Steefel, D. Depaolo, et P. Lichtner, « Reactive transport modeling: An essential tool and a new research approach for the Earth sciences », *Earth Planet. Sci. Lett.*, vol. 240, n° 3-4, p. 539-558, déc. 2005, doi: 10.1016/j.epsl.2005.09.017.
- [7] B. Agaoglu, T. Scheytt, et N. K. Copty, « Impact of NAPL architecture on interphase mass transfer: A pore network study », *Adv. Water Resour.*, vol. 95, p. 138-151, sept. 2016, doi: 10.1016/j.advwatres.2015.11.012.
- [8] J. Wang, Y. Yang, S. Cai, J. Yao, et Q. Xie, « Pore-scale modelling on hydrogen transport in porous media: Implications for hydrogen storage in saline aquifers », *Int. J. Hydrog. Energy*, vol. 48, n° 37, p. 13922-13933, avr. 2023, doi: 10.1016/j.ijhydene.2022.11.299.
- [9] H. Andrä *et al.*, « Digital rock physics benchmarks-Part I: Imaging and segmentation », *Comput. Geosci.*, vol. 50, p. 25-32, 2013, doi: 10.1016/j.cageo.2012.09.005.
- [10] Y. Baqer et X. Chen, « A review on reactive transport model and porosity evolution in the porous media », *Environ. Sci. Pollut. Res.*, vol. 29, n° 32, p. 47873-47901, juill. 2022, doi: 10.1007/s11356-022-20466-w.
- [11] H. Andrä *et al.*, « Digital rock physics benchmarks-part II: Computing effective properties », *Comput. Geosci.*, vol. 50, p. 33-43, 2013, doi: 10.1016/j.cageo.2012.09.008.
- [12] S. Sadeghnejad, F. Enzmann, et M. Kersten, « Digital rock physics, chemistry, and biology: challenges and prospects of pore-scale modelling approach », *Appl. Geochem.*, vol. 131, août 2021, doi: 10.1016/j.apgeochem.2021.105028.
- [13] L. Chen *et al.*, « Pore-scale modeling of complex transport phenomena in porous media », *Prog. Energy Combust. Sci.*, vol. 88, janv. 2022, doi: 10.1016/j.peccs.2021.100968.
- [14] M. J. Blunt *et al.*, « Pore-scale imaging and modelling », *Adv. Water Resour.*, vol. 51, p. 197-216, janv. 2013, doi: <http://dx.doi.org/10.1016/j.advwatres.2012.03.003>.
- [15] J. Su, L. Wang, Z. Gu, Y. Zhang, et C. Chen, « Advances in pore-scale simulation of oil reservoirs », *Energies*, vol. 11, n° 5, p. 1132, 2018, doi: 10.3390/en11051132.
- [16] A. Mehmani, R. Verma, et M. Prodanović, « Pore-scale modeling of carbonates », *Mar. Pet. Geol.*, vol. 114, n° November 2019, p. 104141, 2020, doi: 10.1016/j.marpetgeo.2019.104141.
- [17] A. Golparvar, M. Kästner, et M. Thullner, « Pore-scale modeling of microbial activity: What we have and what we need », *Vadose Zone J.*, vol. 20, n° 1, 2021, doi: 10.1002/vzj2.20087.
- [18] S. Molins *et al.*, « Simulation of mineral dissolution at the pore scale with evolving fluid-solid interfaces: review of approaches and benchmark problem set », *Comput. Geosci.*, vol. 25, n° 4, p. 1285-1318, août 2021, doi: 10.1007/s10596-019-09903-x.

- [19] A. Golparvar, Y. Zhou, K. Wu, J. Ma, et Z. Yu, « A comprehensive review of pore scale modeling methodologies for multiphase flow in porous media », *Adv. Geo-Energy Res.*, vol. 2, n° 4, p. 418-440, 2018, doi: 10.26804/ager.2018.04.07.
- [20] N. Saxena *et al.*, « References and benchmarks for pore-scale flow simulated using micro-CT images of porous media and digital rocks », *Adv. Water Resour.*, vol. 109, p. 211-235, 2017, doi: 10.1016/j.advwatres.2017.09.007.
- [21] A. Pazdniakou et M. Dymitrowska, « Migration of gas in water saturated clays by coupled hydraulic-mechanical model », *Geofluids*, vol. 2018, p. 6873298, 2018, doi: 10.1155/2018/6873298.
- [22] N. Amrofel, M. Dymitrowska, A. Obliger, A. J. Tinnet, et F. Golfier, « Drying in nanoporous media with Kelvin effect: Capillary imbibition against evaporation by smoothed particle hydrodynamics method », *Phys. Fluids*, vol. 36, n° 2, févr. 2024, doi: 10.1063/5.0186916.
- [23] A. Pazdniakou, A.-J. Tinnet, K. Kalo, F. Golfier, S. Gaboreau, et P. Gaire, « Numerical efficiency assessment of the lattice Boltzmann model for digital nano-porous rock applications », *Adv. Water Resour.*, vol. 121, p. 44-56, 2018, doi: 10.1016/j.advwatres.2018.08.001.
- [24] A. J. Tinnet, Q. Corlay, P. Collon, F. Golfier, et K. Kalo, « Comparison of various 3D pore space reconstruction methods and implications on transport properties of nanoporous rocks », *Adv. Water Resour.*, vol. 141, 2020, doi: 10.1016/j.advwatres.2020.103615.
- [25] Z. Guo et C. Shu, *Lattice Boltzmann Method and its applications in engineering*. World Sci. Pub. Co., 2013.
- [26] D. Dapelo, S. Simonis, M. J. Krause, et J. Bridgeman, « Lattice-Boltzmann coupled models for advection–diffusion flow on a wide range of Péclet numbers », *J. Comput. Sci.*, vol. 51, 2021, doi: 10.1016/j.jocs.2021.101363.
- [27] X. Yang *et al.*, « Intercomparison of 3D pore-scale flow and solute transport simulation methods », *Adv. Water Resour.*, p. 1-14, 2015, doi: 10.1016/j.advwatres.2015.09.015.
- [28] M. Oostrom *et al.*, « Pore-scale and continuum simulations of solute transport micromodel benchmark experiments », *Comput. Geosci.*, vol. 20, n° 4, p. 857-879, 2016, doi: 10.1007/s10596-014-9424-0.
- [29] B. Servan-Camas et F. T. C. Tsai, « Lattice Boltzmann method with two relaxation times for advection–diffusion equation: Third order analysis and stability analysis », *Adv. Water Resour.*, vol. 31, n° 8, 2008, doi: 10.1016/j.advwatres.2008.05.001.
- [30] T. Bultreys *et al.*, « Fast laboratory-based micro-computed tomography for pore-scale research: Illustrative experiments and perspectives on the future », *Adv. Water Resour.*, vol. 95, p. 341-351, 2016, doi: 10.1016/j.advwatres.2015.05.012.
- [31] I. Ginzburg, D. d’Humières, et A. Kuzmin, « Optimal stability of advection-diffusion lattice boltzmann models with two relaxation times for positive/negative equilibrium », *J. Stat. Phys.*, vol. 139, n° 6, p. 1090-1143, 2010, doi: 10.1007/s10955-010-9969-9.
- [32] M. Hosseini, M. Siavashi, M. Shirbani, et M. Mousavi Nezhad, « Reliability assessment of the Lattice-Boltzmann Method for modeling and quantification of hydrological attributes of porous media from microtomography images », *Adv. Water Resour.*, vol. 171, janv. 2023, doi: 10.1016/j.advwatres.2022.104351.
- [33] Q. Zou et X. He, « On pressure and velocity flow boundary conditions and bounceback for the lattice Boltzmann BGK model », *Phys. Fluids*, vol. 9, n° 6, p. 1591-1598, 1997.
- [34] M. Hecht et J. Harting, « Implementation of on-site velocity boundary conditions for D3Q19 lattice Boltzmann simulations », *J. Stat. Mech. Theory Exp.*, p. P01018, 2010, doi: 10.1088/1742-5468/2010/01/P01018.
- [35] M. E. Kutay, A. H. Aydilek, et E. Masad, « Laboratory validation of lattice Boltzmann method for modeling pore-scale flow in granular materials », *Comput. Geotech.*, vol. 33, p. 381-395, 2006, doi: 10.1016/j.compgeo.2006.08.002.

- [36] M. Menon, X. Jia, G. J. Lair, P. H. Faraj, et A. Blaud, « Analysing the impact of compaction of soil aggregates using X-ray microtomography and water flow simulations », *Soil Tillage Res.*, vol. 150, p. 147-157, 2015, doi: 10.1016/j.still.2015.02.004.
- [37] M. Chaaban, Y. Heider, et B. Markert, « Upscaling LBM-TPM simulation approach of Darcy and non-Darcy fluid flow in deformable, heterogeneous porous media », *Int. J. Heat Fluid Flow*, vol. 83, p. 108566, juin 2020, doi: 10.1016/j.ijheatfluidflow.2020.108566.
- [38] P. Tiwari, M. Deo, C. L. Lin, et J. D. Miller, « Characterization of oil shale pore structure before and after pyrolysis by using X-ray micro CT », *Fuel*, vol. 107, p. 547-554, mai 2013, doi: 10.1016/j.fuel.2013.01.006.
- [39] H. P. Menke, « Reservoir condition pore-scale imaging of reaction », Imperial College London, 2016. [En ligne]. Disponible sur: <https://spiral.imperial.ac.uk:8443/handle/10044/1/33324>
- [40] H. Daigle et J. S. Reece, « Permeability of two-component granular materials », *Transp. Porous Media*, vol. 106, n° 3, p. 523-544, 2014, doi: 10.1007/s11242-014-0412-6.
- [41] M. Espinoza-Andaluz, A. Moyón, et M. Andersson, « A comparative study between D2Q9 and D2Q5 lattice Boltzmann scheme for mass transport phenomena in porous media », *Comput. Math. Appl.*, vol. 78, n° 9, 2019, doi: 10.1016/j.camwa.2019.02.012.
- [42] S. M. Shah, F. Gray, J. P. Crawshaw, et E. S. Boek, « Micro-computed tomography pore-scale study of flow in porous media: Effect of voxel resolution », *Adv. Water Resour.*, vol. 95, p. 276-287, 2016, doi: 10.1016/j.advwatres.2015.07.012.
- [43] E. S. Boek et M. Venturoli, « Lattice-Boltzmann studies of fluid flow in porous media with realistic rock geometries », *Comput. Math. Appl.*, vol. 59, n° 7, p. 2305-2314, avr. 2010, doi: 10.1016/j.camwa.2009.08.063.
- [44] Y. Da Wang, T. Chung, R. T. Armstrong, et P. Mostaghimi, « ML-LBM: Machine learning aided flow simulation in porous media. », *ArXiv Prepr.*, 2020.
- [45] A. Rabbani et M. Babaei, « Hybrid pore-network and Lattice-Boltzmann permeability modelling accelerated by machine learning », *Adv. Water Resour.*, vol. 126, p. 116-128, 2019, doi: 10.1016/j.advwatres.2019.02.012.
- [46] C. Chen et D. Zhang, « Pore-scale simulation of density-driven convection in fractured porous media during geological CO₂ sequestration », *Water Resour. Res.*, vol. 46, n° 11, p. 1-9, 2010, doi: 10.1029/2010WR009453.
- [47] M. C. Sukop et D. Or, « Lattice Boltzmann method for modeling liquid-vapor interface configurations in porous media », *Water Resour. Res.*, vol. 40, n° 1, 2004, doi: 10.1029/2003WR002333.
- [48] C. Pan, M. Hilpert, et C. T. Miller, « Lattice-Boltzmann simulation of two-phase flow in porous media », *Water Resour. Res.*, vol. 40, n° 1, p. 1-14, janv. 2004, doi: 10.1029/2003WR002120.
- [49] H. Huang, L. Wang, et X. Lu, « Evaluation of three lattice Boltzmann models for multiphase flows in porous media », *Comput. Math. Appl.*, vol. 61, n° 12, p. 3606-3617, 2011.
- [50] J. Yang et E. S. Boek, « A comparison study of multi-component Lattice Boltzmann models for flow in porous media applications », *Comput. Math. Appl.*, vol. 65, n° 6, p. 882-890, 2013, doi: 10.1016/j.camwa.2012.11.022.
- [51] H. Liu *et al.*, « Multiphase lattice Boltzmann simulations for porous media applications: A review », *Comput. Geosci.*, vol. 20, n° 4, 2016, doi: 10.1007/s10596-015-9542-3.
- [52] C. Semprebon, T. Krüger, et H. Kusumaatmaja, « Ternary Free Energy Lattice Boltzmann Model with Tunable Surface Tensions and Contact Angles », *Phys. Rev. E*, vol. 93, n° 3, p. 033305, nov. 2016, doi: 10.1103/PhysRevE.93.033305.
- [53] B. Wei, H. Huang, J. Hou, et M. C. Sukop, « Study on the meniscus-induced motion of droplets and bubbles by a three-phase Lattice Boltzmann model », *Chem. Eng. Sci.*, vol. 176, p. 35-49, 2018, doi: 10.1016/j.ces.2017.10.025.

- [54] R. Haghani Hassan Abadi, A. Fakhari, et M. H. Rahimian, « Numerical simulation of three-component multiphase flows at high density and viscosity ratios using lattice Boltzmann methods », *Phys. Rev. E*, vol. 97, n° 3, p. 033312, 2018, doi: 10.1103/PhysRevE.97.033312.
- [55] H. Wang, X. Yuan, H. Liang, Z. Chai, et B. Shi, « A brief review of the phase-field-based lattice Boltzmann method for multiphase flows », *Capillarity*, vol. 2, n° 3, p. 33-52, sept. 2019, doi: 10.26804/capi.2019.03.01.
- [56] L. Chen, Q. Kang, Y. Mu, Y.-L. He, et W.-Q. Tao, « A critical review of the pseudopotential multiphase lattice Boltzmann model: Methods and applications », *Int. J. Heat Mass Transf.*, vol. 76, p. 210-236, sept. 2014, doi: 10.1016/j.ijheatmasstransfer.2014.04.032.
- [57] L. Scarbolo, D. Molin, P. Perlekar, M. Sbragaglia, A. Soldati, et F. Toschi, « Unified framework for a side-by-side comparison of different multicomponent algorithms: Lattice Boltzmann vs. phasefield model », *J. Comput. Phys.*, vol. 234, p. 263-279, 2013, doi: 10.1016/j.jcp.2012.09.029.
- [58] A. K. Gunstensen, « Lattice Boltzmann studies of multiphase flow through porous media », Massachusetts Institute of Technology, 1992.
- [59] S. Hou, X. Shan, Q. Zou, G. D. Doolen, et W. E. Soll, « Evaluation of two Lattice Boltzmann models for multiphase flows », *J. Comput. Phys.*, vol. 138, n° 2, p. 695-713, déc. 1997, doi: 10.1006/jcph.1997.5839.
- [60] H. Liu, A. J. Valocchi, et Q. Kang, « Three-dimensional lattice Boltzmann model for immiscible two-phase flow simulations », *Phys. Rev. E*, vol. 85, n° 4, p. 046309, avr. 2012, doi: 10.1103/PhysRevE.85.046309.
- [61] M. Latva-Kokko et D. H. Rothman, « Diffusion properties of gradient-based lattice Boltzmann models of immiscible fluids », *Phys. Rev. E - Stat. Nonlinear Soft Matter Phys.*, vol. 71, n° 5, mai 2005, doi: 10.1103/PhysRevE.71.056702.
- [62] S. Leclaire, M. Reggio, et J.-Y. Trépanier, « Isotropic color gradient for simulating very high-density ratios with a two-phase flow lattice Boltzmann model », *Comput. Fluids*, vol. 48, n° 1, p. 98-112, sept. 2011, doi: 10.1016/j.compfluid.2011.04.001.
- [63] S. Leclaire, N. Pellerin, M. Reggio, et J.-Y. Trépanier, « Enhanced equilibrium distribution functions for simulating immiscible multiphase flows with variable density ratios in a class of lattice Boltzmann models », *Int. J. Multiph. Flow*, vol. 57, p. 159-168, déc. 2013, doi: 10.1016/j.ijmultiphaseflow.2013.07.001.
- [64] H. Huang, J.-J. Huang, et X.-Y. Lu, « Study of immiscible displacements in porous media using a color-gradient-based multiphase lattice Boltzmann method », *Comput. Fluids*, vol. 93, p. 164-172, avr. 2014, doi: 10.1016/j.compfluid.2014.01.025.
- [65] T. Reis et T. N. Phillips, « Lattice Boltzmann Model for simulating immiscible two-phase flows LBM », *J. Phys. Math. Theor.*, vol. 40, n° 14, p. 4033, 2007.
- [66] J. Tolke, S. Freudiger, et M. Krafczyk, « An adaptive scheme using hierarchical grids for lattice Boltzmann multi-phase flow simulations », *Comput. Fluids*, vol. 35, n° 8-9, p. 820-830, sept. 2006, doi: 10.1016/j.compfluid.2005.08.010.
- [67] X. Shan et H. Chen, « Simulation of nonideal gases and liquid-gas phase transitions by the lattice Boltzmann equation », *Phys. Rev. E*, vol. 49, n° 4, p. 2941, 1994.
- [68] X. Shan et G. Doolen, « Multicomponent lattice-Boltzmann model with interparticle interaction », *J. Stat. Phys.*, vol. 81, n° 1-2, p. 379-393, oct. 1995, doi: 10.1007/BF02179985.
- [69] P. Yuan et L. Schaefer, « Equations of state in a lattice Boltzmann model », *Phys. Fluids*, vol. 18, n° 4, 2006, doi: 10.1063/1.2187070.
- [70] S. A. Galindo-Torres, A. Scheuermann, et L. Li, « Boundary effects on the Soil Water Characteristic Curves obtained from lattice Boltzmann simulations », *Comput. Geotech.*, vol. 71, 2016, doi: 10.1016/j.compgeo.2015.09.008.
- [71] Z. Yu et L.-S. Fan, « Multirelaxation-time interaction-potential-based lattice Boltzmann model for two-phase flow », *Phys. Rev. E*, vol. 82, n° July, p. 1-14, 2010, doi: 10.1103/PhysRevE.82.046708.

- [72] T. Zhang *et al.*, « Ganglia dynamics during imbibition and drainage processes in nanoporous systems », *Phys. Fluids*, vol. 34, n° 4, 2022, doi: 10.1063/5.0089950.
- [73] A. Kuzmin et A. A. Mohamad, « Multirange multi-relaxation time Shan–Chen model with extended equilibrium », *Comput. Math. Appl.*, vol. 59, n° 7, p. 2260-2270, avr. 2010, doi: 10.1016/j.camwa.2009.08.042.
- [74] V. Pot *et al.*, « Three-dimensional distribution of water and air in soil pores: Comparison of two-phase two-relaxation-times lattice-Boltzmann and morphological model outputs with synchrotron X-ray computed tomography data », *Adv. Water Resour.*, vol. 84, p. 87-102, 2015, doi: 10.1016/j.advwatres.2015.08.006.
- [75] M. Liu, Z. Yu, T. Wang, J. Wang, et L.-S. Fan, « A modified pseudopotential for a lattice Boltzmann simulation of bubbly flow », *Chem. Eng. Sci.*, vol. 65, n° 20, p. 5615-5623, oct. 2010, doi: 10.1016/j.ces.2010.08.014.
- [76] A. Hu, L. Li, S. Chen, Q. Liao, et J. Zeng, « On equations of state in pseudo-potential multiphase lattice Boltzmann model with large density ratio », *Int. J. Heat Mass Transf.*, vol. 67, p. 159-163, déc. 2013, doi: 10.1016/j.ijheatmasstransfer.2013.08.005.
- [77] H. Huang, Z. Li, S. Liu, et X. Lu, « Shan-and-Chen-type multiphase lattice Boltzmann study of viscous coupling effects for two-phase flow in porous media », *Int. J. Numer. Methods Fluids*, vol. 61, n° 3, p. 341-354, 2008.
- [78] H. Huang et X. Y. Lu, « Relative permeabilities and coupling effects in steady-state gas-liquid flow in porous media: A lattice Boltzmann study », in *Physics of Fluids*, 2009. doi: 10.1063/1.3225144.
- [79] X.-P. Chen, C.-W. Zhong, et X.-L. Yuan, « Lattice Boltzmann simulation of cavitating bubble growth with large density ratio », *Comput. Math. Appl.*, vol. 61, n° 12, p. 3577-3584, juin 2011, doi: 10.1016/j.camwa.2010.07.018.
- [80] D. Lycett-Brown et K. H. Luo, « Multiphase cascaded lattice Boltzmann method », *Comput. Math. Appl.*, vol. 67, n° 2, p. 350-362, févr. 2014, doi: 10.1016/j.camwa.2013.08.033.
- [81] M. G. Schaap, M. L. Porter, B. S. B. Christensen, et D. Wildenschild, « Comparison of pressure-saturation characteristics derived from computed tomography and lattice Boltzmann simulations », *Water Resour. Res.*, vol. 43, p. W12S06, 2007, doi: 10.1029/2006WR005730.
- [82] E. T. Coon, M. L. Porter, et Q. Kang, « Taxila LBM: A parallel, modular lattice Boltzmann framework for simulating pore-scale flow in porous media », *Comput. Geosci.*, vol. 18, n° 1, p. 17-27, 2014, doi: 10.1007/s10596-013-9379-6.
- [83] B. Wei, J. Hou, M. C. Sukop, Q. Du, et H. Wang, « Flow behaviors of emulsions in constricted capillaries: A lattice Boltzmann simulation study », *Chem. Eng. Sci.*, vol. 227, 2020, doi: 10.1016/j.ces.2020.115925.
- [84] X. Xin, B. Yang, T. Xu, Y. Xia, et S. Li, « Effect of Hydrate on Gas/Water Relative Permeability of Hydrate-Bearing Sediments: Pore-Scale Microsimulation by the Lattice Boltzmann Method », *Geofluids*, vol. 2021, 2021, doi: 10.1155/2021/1396323.
- [85] M. Geier, A. Fakhari, et T. Lee, « Conservative phase-field lattice Boltzmann model for interface tracking equation », *Phys. Rev. E - Stat. Nonlinear Soft Matter Phys.*, vol. 91, n° 6, juin 2015, doi: 10.1103/PhysRevE.91.063309.
- [86] M. R. Swift, W. R. Osborn, et J. M. Yeomans, « Lattice Boltzmann Simulation of Nonideal Fluids », *Phys. Rev. Lett.*, vol. 75, n° 5, p. 830-833, juill. 1995, doi: 10.1103/PhysRevLett.75.830.
- [87] T. Inamuro, T. Ogata, S. Tajima, et N. Konishi, « A lattice Boltzmann method for incompressible two-phase flows with large density differences », *J. Comput. Phys.*, vol. 198, n° 2, p. 628-644, août 2004, doi: 10.1016/j.jcp.2004.01.019.
- [88] A. Banari, C. F. Janssen, et S. T. Grilli, « An efficient lattice Boltzmann multiphase model for 3D flows with large density ratios at high Reynolds numbers », *Comput. Math. Appl.*, vol. 68, n° 12, p. 1819-1843, 2014, doi: 10.1016/j.camwa.2014.10.009.

- [89] Y. Y. Yan et Y. Q. Zu, « A lattice Boltzmann method for incompressible two-phase flows on partial wetting surface with large density ratio », *J. Comput. Phys.*, vol. 227, n° 1, p. 763-775, nov. 2007, doi: 10.1016/j.jcp.2007.08.010.
- [90] H. W. Zheng, C. Shu, et Y. T. Chew, « A lattice Boltzmann model for multiphase flows with large density ratio », *J. Comput. Phys.*, vol. 218, n° 1, p. 353-371, oct. 2006, doi: 10.1016/j.jcp.2006.02.015.
- [91] A. Fakhari et M. H. Rahimian, « Phase-field modeling by the method of lattice boltzmann equations », *Phys. Rev. E - Stat. Nonlinear Soft Matter Phys.*, vol. 81, n° 3, mars 2010, doi: 10.1103/PhysRevE.81.036707.
- [92] Y. Q. Zu et S. He, « Phase-field-based lattice Boltzmann model for incompressible binary fluid systems with density and viscosity contrasts », *Phys. Rev. E - Stat. Nonlinear Soft Matter Phys.*, vol. 87, n° 4, avr. 2013, doi: 10.1103/PhysRevE.87.043301.
- [93] H. Liang, B. C. Shi, Z. L. Guo, et Z. H. Chai, « Phase-field-based multiple-relaxation-time lattice Boltzmann model for incompressible multiphase flows », *Phys. Rev. E - Stat. Nonlinear Soft Matter Phys.*, vol. 89, n° 5, mai 2014, doi: 10.1103/PhysRevE.89.053320.
- [94] H. Liang, J. Xu, J. Chen, H. Wang, Z. Chai, et B. Shi, « Phase-field-based lattice Boltzmann modeling of large-density-ratio two-phase flows », *Phys. Rev. E*, vol. 97, n° 3, p. 033309, mars 2018, doi: 10.1103/PhysRevE.97.033309.
- [95] S. Zhang, J. Tang, et H. Wu, « Wetting boundary schemes in modified phase-field lattice Boltzmann method for binary fluids with large density ratios », *Comput. Math. Appl.*, vol. 113, p. 243-253, mai 2022, doi: 10.1016/j.camwa.2022.03.023.
- [96] Z. Chai, D. Sun, H. Wang, et B. Shi, « A comparative study of local and nonlocal Allen-Cahn equations with mass conservation », *Int. J. Heat Mass Transf.*, vol. 122, p. 631-642, juill. 2018, doi: 10.1016/j.ijheatmasstransfer.2018.02.013.
- [97] Y. Hu, D. Li, L. Jin, X. Niu, et S. Shu, « Hybrid Allen-Cahn-based lattice Boltzmann model for incompressible two-phase flows: The reduction of numerical dispersion », *Phys. Rev. E*, vol. 99, n° 2, p. 023302, févr. 2019, doi: 10.1103/PhysRevE.99.023302.
- [98] M. C. Sukop, H. Huang, C. L. Lin, M. D. Deo, K. Oh, et J. D. Miller, « Distribution of multiphase fluids in porous media: Comparison between lattice Boltzmann modeling and micro-x-ray tomography », *Phys. Rev. E*, vol. 77, n° 2, p. 1-7, févr. 2008, doi: 10.1103/PhysRevE.77.026710.
- [99] A. Fakhari, Y. Li, D. Bolster, et K. T. Christensen, « A phase-field lattice Boltzmann model for simulating multiphase flows in porous media: Application and comparison to experiments of CO₂ sequestration at pore scale », *Adv. Water Resour.*, vol. 114, p. 119-134, avr. 2018, doi: 10.1016/j.advwatres.2018.02.005.
- [100] H. Liu, A. J. Valocchi, C. Werth, Q. Kang, et M. Oostrom, « Pore-scale simulation of liquid CO₂ displacement of water using a two-phase lattice Boltzmann model », *Adv. Water Resour.*, vol. 73, p. 144-158, 2014, doi: 10.1016/j.advwatres.2014.07.010.
- [101] S. Bakhshian, S. A. Hosseini, et N. Shokri, « Pore-scale characteristics of multiphase flow in heterogeneous porous media using the lattice Boltzmann method », *Sci. Rep.*, vol. 9, n° 1, p. 3377, mars 2019, doi: 10.1038/s41598-019-39741-x.
- [102] M. Taghilou et M. H. Rahimian, « Investigation of two-phase flow in porous media using lattice Boltzmann method », *Comput. Math. Appl.*, vol. 67, n° 2, p. 424-436, 2014, doi: 10.1016/j.camwa.2013.08.005.
- [103] M. L. Porter, M. G. Schaap, et D. Wildenschild, « Lattice-Boltzmann simulations of the capillary pressure-saturation-interfacial area relationship for porous media », *Adv. Water Resour.*, vol. 32, p. 1632-1640, 2009.
- [104] H. J. Vogel, J. Tölke, V. P. Schulz, M. Krafczyk, et K. Roth, « Comparison of a Lattice-Boltzmann Model, a Full-Morphology Model, and a Pore Network Model for determining capillary pressure-saturation relationships », *Vadose Zone J.*, vol. 4, p. 380-388, 2005, doi: 10.2136/vzj2004.0114.

- [105] B. Ahrenholz *et al.*, « Prediction of capillary hysteresis in a porous material using lattice-Boltzmann methods and comparison to experimental data and a morphological pore network model », *Adv. Water Resour.*, vol. 31, n° 9, p. 1151-1173, sept. 2008, doi: 10.1016/j.advwatres.2008.03.009.
- [106] J. Ansarinassab et M. Jamialahmadi, « Investigating the effect of interfacial tension and contact angle on capillary pressure curve, using free energy Lattice Boltzmann Method », *J. Nat. Gas Sci. Eng.*, vol. 35, 2016, doi: 10.1016/j.jngse.2016.09.055.
- [107] Z. Li, S. Galindo-Torres, G. Yan, A. Scheuermann, et L. Li, « A lattice Boltzmann investigation of steady-state fluid distribution, capillary pressure and relative permeability of a porous medium: Effects of fluid and geometrical properties », *Adv. Water Resour.*, vol. 116, 2018, doi: 10.1016/j.advwatres.2018.04.009.
- [108] G. D. Prisco, J. Toelke, M. R. Dernaika, et A. Dhabi, « Computation of Relative Permeability Functions in 3D Digital Rocks By a Fractional Flow Approach Using the Lattice Boltzmann », *SCA*, p. 1-12, 2012.
- [109] T. Ramstad, N. Idowu, C. Nardi, et P. E. Øren, « Relative Permeability Calculations from Two-Phase Flow Simulations Directly on Digital Images of Porous Rocks », *Transp. Porous Media*, vol. 94, n° 2, p. 487-504, 2012, doi: 10.1007/s11242-011-9877-8.
- [110] Y. D. Wang, T. Chung, R. T. Armstrong, J. McClure, T. Ramstad, et P. Mostaghimi, « Accelerated Computation of Relative Permeability by Coupled Morphological and Direct Multiphase Flow Simulation », *J. Comput. Phys.*, vol. 401, p. 108966, 2020, doi: 10.1016/j.jcp.2019.108966.
- [111] H. Li, C. Pan, et C. T. Miller, « Pore-scale investigation of viscous coupling effects for two-phase flow in porous media », *Phys. Rev.*, vol. 72, p. 26705, 2005.
- [112] A. Ghassemi et A. Pak, « Numerical study of factors influencing relative permeabilities of two immiscible fluids flowing through porous media using Lattice Boltzmann method », *J. Pet. Sci. Eng.*, vol. 77, p. 135-145, 2011.
- [113] Z. Dou et Z. F. Zhou, « Numerical study of non-uniqueness of the factors influencing relative permeability in heterogeneous porous media by lattice Boltzmann method », *Int. J. Heat Fluid Flow*, vol. 42, 2013, doi: 10.1016/j.ijheatfluidflow.2013.01.020.
- [114] C. J. Landry, Z. T. Karpyn, et O. Ayala, « Relative permeability of homogenous-wet and mixed-wet porous media as determined by pore-scale lattice Boltzmann modeling », *Water Resour. Res.*, vol. 50, n° 5, 2014, doi: 10.1002/2013WR015148.
- [115] N. S. Martys et H. Chen, « Simulation of multicomponent fluids in complex three-dimensional geometries by the lattice Boltzmann method », *Phys. Rev. E*, vol. 53, p. 743-750, 1996.
- [116] F. O. Alpak, S. Berg, et I. Zacharoudiou, « Prediction of fluid topology and relative permeability in imbibition in sandstone rock by direct numerical simulation », *Adv. Water Resour.*, vol. 122, 2018, doi: 10.1016/j.advwatres.2018.09.001.
- [117] E. F. Johnson, D. P. Bossler, et V. O. Naumann, « Calculation of Relative Permeability from Displacement Experiments », *Trans. AIME*, vol. 216, p. 370-372, 1959.
- [118] M. N. Nemer, P. R. Rao, et L. Schaefer, « Wettability alteration implications on pore-scale multiphase flow in porous media using the lattice Boltzmann method », *Adv. Water Resour.*, vol. 146, 2020, doi: 10.1016/j.advwatres.2020.103790.
- [119] R. Guo *et al.*, « The role of the spatial heterogeneity and correlation length of surface wettability on two-phase flow in a CO₂-water-rock system », *Adv. Water Resour.*, vol. 146, p. 103763, déc. 2020, doi: 10.1016/j.advwatres.2020.103763.
- [120] J. Zhao *et al.*, « The Effect of Wettability Heterogeneity on Relative Permeability of Two-Phase Flow in Porous Media: A Lattice Boltzmann Study », *Water Resour. Res.*, vol. 54, n° 2, p. 1295-1311, févr. 2018, doi: 10.1002/2017WR021443.
- [121] I. Ginzbourg et P. Adler, « Boundary flow condition analysis for the three-dimensional lattice Boltzmann model », *J. Phys. II*, vol. 4, n° 2, p. 194-214, 1994.

- [122] L. S. Kuo et P. H. Chen, « A unified approach for nonslip and slip boundary conditions in the lattice Boltzmann method », *Comput. Fluids*, vol. 38, n° 4, p. 883-887, 2009, doi: 10.1016/j.compfluid.2008.09.008.
- [123] G. Le et J. Zhang, « Boundary slip from the immersed boundary lattice Boltzmann models », *Phys. Rev. E - Stat. Nonlinear Soft Matter Phys.*, vol. 79, n° 2, p. 1-19, 2009, doi: 10.1103/PhysRevE.79.026701.
- [124] L. Zhu, D. Tretheway, L. Petzold, et C. Meinhart, « Simulation of fluid slip at 3D hydrophobic microchannel walls by the lattice Boltzmann method », *J. Comput. Phys.*, vol. 202, n° 1, p. 181-195, 2005, doi: 10.1016/j.jcp.2004.07.004.
- [125] C. Yan-Yan, Y. Hou-Hui, et L. Hua-Bing, « Boundary slip and surface interaction: A Lattice Boltzmann simulation », *Chin. Phys. Lett.*, vol. 25, n° 1, p. 184-187, 2008, doi: 10.1088/0256-307X/25/1/050.
- [126] K. Wang, Y. Zhang, Y. Yu, G. Hou, F. Zhou, et Y. Wu, « Simulation of boundary slip on a liquid-solid surface based on the lattice Boltzmann method », *ScienceAsia*, vol. 41, n° 2, p. 130-135, 2015, doi: 10.2306/scienceasia1513-1874.2015.41.130.
- [127] K. Suga, « Lattice Boltzmann methods for complex micro-flows: applicability and limitations for practical applications », *Fluid Dyn. Res.*, vol. 45, n° 3, p. 034501, 2013, doi: 10.1088/0169-5983/45/3/034501.
- [128] Z. Chai, Z. Guo, L. Zheng, et B. Shi, « Lattice Boltzmann simulation of surface roughness effect on gaseous flow in a microchannel », *J. Appl. Phys.*, vol. 104, n° 1, 2008, doi: 10.1063/1.2949273.
- [129] Z. Chai, B. Shi, Z. Guo, et J. Lu, « Gas flow through square arrays of circular cylinders with Klinkenberg effect: A lattice Boltzmann study », *Commun. Comput. Phys.*, vol. 8, n° 5, p. 1052-1073, 2010, doi: 10.4208/cicp.010809.081209a.
- [130] R. Arabjamaloei et D. W. Ruth, « Lattice Boltzmann based simulation of gas flow regimes in low permeability porous media: Klinkenberg's region and beyond », *J. Nat. Gas Sci. Eng.*, vol. 31, p. 405-416, avr. 2016, doi: 10.1016/j.jngse.2016.03.056.
- [131] J. Wang, L. Chen, Q. Kang, et S. S. Rahman, « The lattice Boltzmann method for isothermal micro-gaseous flow and its application in shale gas flow: A review », *Int. J. Heat Mass Transf.*, vol. 95, p. 94-108, 2016, doi: 10.1016/j.ijheatmasstransfer.2015.12.009.
- [132] S. Tao et Z. Guo, « Boundary condition for lattice Boltzmann modeling of microscale gas flows with curved walls in the slip regime », *Phys. Rev. E - Stat. Nonlinear Soft Matter Phys.*, vol. 91, n° 4, 2015, doi: 10.1103/PhysRevE.91.043305.
- [133] G. Silva et I. Ginzburg, « Slip velocity boundary conditions for the lattice Boltzmann modeling of microchannel flows », *Int. J. Numer. Methods Fluids*, vol. 94, n° 12, p. 2104-2136, déc. 2022, doi: 10.1002/fld.5138.
- [134] S. Chen et Z. Tian, « Simulation of microchannel flow using the lattice Boltzmann method », *Phys. Stat. Mech. Its Appl.*, vol. 388, n° 23, p. 4803-4810, déc. 2009, doi: 10.1016/j.physa.2009.08.015.
- [135] E. Fathi et I. Y. Akkutlu, « Lattice Boltzmann Method for simulation of shale gas transport in kerogen », *SPE J.*, vol. 18, n° 1, p. 27-37, févr. 2013, doi: 10.2118/146821-PA.
- [136] A. A. Avramenko, A. I. Tyrinov, et I. V. Shevchuk, « Theoretical investigation of steady isothermal slip flow in a curved microchannel with a rectangular cross-section and constant radii of wall curvature », *Eur. J. Mech. BFluids*, vol. 54, p. 87-97, août 2015, doi: 10.1016/j.euromechflu.2015.07.002.
- [137] J. Ren, P. Guo, Z. Guo, et Z. Wang, « A Lattice Boltzmann model for simulating gas flow in kerogen pores », *Transp. Porous Media*, vol. 106, n° 2, p. 285-301, 2015, doi: 10.1007/s11242-014-0401-9.
- [138] L. Chen, L. Zhang, Q. Kang, H. S. Viswanathan, J. Yao, et W. Tao, « Nanoscale simulation of shale transport properties using the lattice Boltzmann method: permeability and diffusivity », *Sci. Rep.*, vol. 5, p. 8089, 2015, doi: 10.1038/srep08089.

- [139] J. Zhao *et al.*, « Study of gas flow characteristics in tight porous media with a microscale Lattice Boltzmann Model », *Sci. Rep.*, vol. 6, n° August, p. 1-11, 2016, doi: 10.1038/srep32393.
- [140] Z. Yu et L.-S. Fan, « Lattice Boltzmann method for simulating particle–fluid interactions », *Particuology*, vol. 8, n° 6, p. 539-543, déc. 2010, doi: 10.1016/j.partic.2010.07.012.
- [141] H. Yoon, Q. Kang, et A. J. Valocchi, « Lattice Boltzmann-based approaches for pore-scale reactive transport », *Pore Scale Geochem. Process.*, p. 393-431, sept. 2015, doi: 10.2138/rmg.2015.80.12.
- [142] A. Grucelski et J. Pozorski, « Lattice Boltzmann simulations of flow past a circular cylinder and in simple porous media », *Comput. Fluids*, vol. 71, p. 406-416, janv. 2013, doi: 10.1016/j.compfluid.2012.11.006.
- [143] C. Pan, L.-S. Luo, et C. T. Miller, « An evaluation of lattice Boltzmann schemes for porous medium flow simulation », *Comput. Fluids*, vol. 35, n° 8-9, p. 898-909, sept. 2006, doi: 10.1016/j.compfluid.2005.03.008.
- [144] S. Arnout, F. Verhaeghe, B. Blanpain, et P. Wollants, « Lattice Boltzmann model for diffusion-controlled indirect dissolution », *Comput. Math. Appl.*, vol. 55, n° 7, p. 1377-1391, 2008, doi: 10.1016/j.camwa.2007.08.005.
- [145] Z. G. Feng et E. E. Michaelides, « The immersed boundary-lattice Boltzmann method for solving fluid-particles interaction problems », *J. Comput. Phys.*, vol. 195, n° 2, p. 602-628, 2004, doi: 10.1016/j.jcp.2003.10.013.
- [146] X. D. Niu, C. Shu, Y. T. Chew, et Y. Peng, « A momentum exchange-based immersed boundary-lattice Boltzmann method for simulating incompressible viscous flows », *Phys. Lett. A*, vol. 354, n° 3, p. 173-182, mai 2006, doi: 10.1016/j.physleta.2006.01.060.
- [147] A. Dupuis, P. Chatelain, et P. Koumoutsakos, « An immersed boundary – lattice-Boltzmann method for the simulation of the flow past an impulsively started cylinder », *J. Comput. Phys.*, vol. 227, p. 4486-4498, 2008, doi: 10.1016/j.jcp.2008.01.009.
- [148] K. Suzuki et T. Inamuro, « A higher-order immersed boundary-lattice Boltzmann method using a smooth velocity field near boundaries », *Comput. Fluids*, vol. 76, p. 105-115, mai 2013, doi: 10.1016/j.compfluid.2013.01.029.
- [149] J. Favier, A. Revell, et A. Pinelli, « A Lattice Boltzmann–Immersed Boundary method to simulate the fluid interaction with moving and slender flexible objects », *J. Comput. Phys.*, vol. 261, p. 145-161, mars 2014, doi: 10.1016/j.jcp.2013.12.052.
- [150] D. R. J. Owen, C. R. Leonardi, et Y. T. Feng, « An efficient framework for fluid – structure interaction using the lattice Boltzmann method and immersed moving boundaries », *Int. J. Numer. Methods Eng.*, vol. 87, p. 66-95, 2011, doi: 10.1002/nme.2985.
- [151] C. Huber, B. Shafei, et A. Parmigiani, « A new pore-scale model for linear and non-linear heterogeneous dissolution and precipitation », *Geochim. Cosmochim. Acta*, vol. 124, p. 109-130, 2014.
- [152] M. Jiang, Z. G. Xu, et Z. P. Zhou, « Pore-scale investigation on reactive flow in porous media considering dissolution and precipitation by LBM », *J. Pet. Sci. Eng.*, vol. 204, p. 108712, sept. 2021, doi: 10.1016/j.petrol.2021.108712.
- [153] O. Filippova, « Grid refinement for Lattice-BGK models », *J. Comput. Phys.*, vol. 147, n° 1, p. 219-228, nov. 1998, doi: 10.1006/jcph.1998.6089.
- [154] S. Mahmoudi, S. Ayatollahi, S. Jamshidi, et A. Raoof, « Investigation on reactive flow through porous media by quadtree Lattice Boltzmann », *J. Nat. Gas Sci. Eng.*, vol. 104, août 2022, doi: 10.1016/j.jngse.2022.104674.
- [155] F. Lominé, L. Scholtès, L. Sibille, et P. Poullain, « Modeling of fluid – solid interaction in granular media with coupled lattice Boltzmann / discrete element methods : application to piping erosion », *Int. J. Numer. Anal. Methods Geomech.*, vol. 37, n° 6, p. 577-596, 2011, doi: 10.1002/nag.1109.

- [156] M. Mahdavifar, A. A. Roozshenas, et R. Miri, « Microfluidic experiments and numerical modeling of pore-scale Asphaltene deposition: Insights and predictive capabilities », *Energy*, vol. 283, nov. 2023, doi: 10.1016/j.energy.2023.129210.
- [157] M. Fan, J. McClure, Y. Han, Z. Li, et C. Chen, « Interaction Between Proppant Compaction and Single-/Multiphase Flows in a Hydraulic Fracture », *SPE J.*, vol. 23, n° 04, p. 1290-1303, août 2018, doi: 10.2118/189985-PA.
- [158] J. Wu et C. Shu, « Particulate flow simulation via a boundary condition-enforced immersed boundary-lattice Boltzmann scheme », *Commun. Comput. Phys.*, vol. 7, n° 4, p. 793-812, 2010, doi: 10.4208/cicp.2009.09.054.
- [159] D. F. Boutt, B. K. Cook, B. J. O. L. McPherson, et J. R. Williams, « Direct simulation of fluid-solid mechanics in porous media using the discrete element and lattice-Boltzmann methods », *J. Geophys. Res.*, vol. 112, n° B10, p. B10209, oct. 2007, doi: 10.1029/2004JB003213.
- [160] L. Chen, Q. Kang, B. Carey, et W. Q. Tao, « Pore-scale study of diffusion-reaction processes involving dissolution and precipitation using the lattice Boltzmann method », *Int. J. Heat Mass Transf.*, vol. 75, p. 483-496, 2014, doi: 10.1016/j.ijheatmasstransfer.2014.03.074.
- [161] M. Liu, M. Shabaninejad, et P. Mostaghimi, « Impact of mineralogical heterogeneity on reactive transport modelling », *Comput. Geosci.*, vol. 104, p. 12-19, juill. 2017, doi: 10.1016/j.cageo.2017.03.020.
- [162] J. Gao *et al.*, « Reactive transport in porous media for CO₂ sequestration: Pore scale modeling using the lattice Boltzmann method », *Comput. Geosci.*, vol. 98, n° May 2016, p. 9-20, 2017, doi: 10.1016/j.cageo.2016.09.008.
- [163] P. Szymczak et A. J. C. Ladd, « Wormhole formation in dissolving fractures », *J. Geophys. Res. Solid Earth*, vol. 114, n° B6, juin 2009, doi: 10.1029/2008JB006122.
- [164] J. J. Derksen, G. Reynolds, A. Crampton, Z. Huang, et J. Booth, « Simulations of dissolution of spherical particles in laminar shear flow », *Chem. Eng. Res. Des.*, vol. 93, n° July, p. 66-78, 2015, doi: 10.1016/j.cherd.2014.06.027.
- [165] Y.-L. He, Q. Liu, et Q. Li, « Lattice Boltzmann methods for single-phase and solid-liquid phase-change heat transfer in porous media: A review », *Int. J. Heat Mass Transf.*, vol. 129, p. 160-197, 2019, doi: 10.1016/j.ijheatmasstransfer.2018.08.135.
- [166] M. Xia, H. Zhou, C. Jiang, J. Cui, Y. Zeng, et H. Chen, « Comparative Study of 2D Lattice Boltzmann Models for Simulating Seismic Waves », *Remote Sens.*, vol. 16, n° 2, janv. 2024, doi: 10.3390/rs16020285.
- [167] E. Kashani, A. Mohebbi, A. Ehsan, F. Monfared, E. De Vries, et A. Raouf, « Lattice Boltzmann simulation of dissolution patterns in porous media: single porosity versus dual porosity media », *Adv. Water Resour.*, n° 188, p. 104712, 2024, doi: 10.1016/j.advwatres.2024.104712.
- [168] A. A. Roozshenas, R. Miri, et S. Kord, « Improved Prediction of Hydrologic Properties of Heterogeneous Porous Media at Pore-Scale - a Multi-physics Lattice Boltzmann Study », *Sustain. Energy Technol. Assess.*, vol. 52, août 2022, doi: 10.1016/j.seta.2022.102101.
- [169] Y. Zhao, L. Wang, Z. Chai, et B. Shi, « Comparative study of natural convection melting inside a cubic cavity using an improved two-relaxation-time lattice Boltzmann model », *Int. J. Heat Mass Transf.*, vol. 143, p. 118449, 2019, doi: 10.1016/j.ijheatmasstransfer.2019.118449.
- [170] H. Hao et Z. G. Xu, « Pore-scale investigation on dissolution and precipitation considering secondary reaction in porous media by LBM », *Gas Sci. Eng.*, vol. 110, févr. 2023, doi: 10.1016/j.jgsce.2023.204893.
- [171] L. Zhang *et al.*, « Pore-Scale Investigation of Methane Hydrate Dissociation Using the Lattice Boltzmann Method », *Water Resour. Res.*, vol. 55, n° 11, p. 8422-8444, nov. 2019, doi: 10.1029/2019WR025195.

- [172] M. Benioug, F. Golfier, A.-J. Tinet, M. A. Buès, et C. Oltéan, « Numerical efficiency assessment of IB–LB method for 3D pore-scale modeling of flow and transport », *Transp. Porous Media*, vol. 109, n° 1, p. 1-23, 2015.
- [173] S. Chakraborty et D. Chatterjee, « An enthalpy-based hybrid lattice-Boltzmann method for modelling solid-liquid phase transition in the presence of convective transport », *J. Fluid Mech.*, vol. 592, p. 155-175, 2007, doi: 10.1017/S0022112007008555.
- [174] K. Jiao, D. Han, J. Li, B. Bai, L. Gong, et B. Yu, « A novel LBM-DEM based pore-scale thermal-hydro-mechanical model for the fracture propagation process », *Comput. Geotech.*, vol. 139, nov. 2021, doi: 10.1016/j.compgeo.2021.104418.
- [175] R. A. Patel, J. Perko, D. Jacques, G. De Schutter, K. Van Breugel, et G. Ye, « A versatile pore-scale multicomponent reactive transport approach based on lattice Boltzmann method: Application to portlandite dissolution », *Phys. Chem. Earth*, vol. 70-71, p. 127-137, 2014, doi: 10.1016/j.pce.2014.03.001.
- [176] M. A. Delavar et J. Wang, « Lattice boltzmann method in modeling biofilm formation, growth and detachment », *Sustainability*, vol. 13, n° 14, juill. 2021, doi: 10.3390/su13147968.
- [177] L. E. Vogel *et al.*, « Modeling the effect of soil meso- and macropores topology on the biodegradation of a soluble carbon substrate », *Adv. Water Resour.*, vol. 83, p. 123-136, 2015, doi: 10.1016/j.advwatres.2015.05.020.
- [178] Z. Tian, H. Xing, Y. Tan, S. Gu, et S. D. Golding, « Reactive transport LBM model for CO₂ injection in fractured reservoirs », *Comput. Geosci.*, vol. 86, p. 15-22, 2016, doi: 10.1016/j.cageo.2015.10.002.
- [179] M. P. Lautenschlaeger, J. Weinmiller, B. Kellers, T. Danner, et A. Latz, « Homogenized lattice Boltzmann model for simulating multi-phase flows in heterogeneous porous media », *Adv. Water Resour.*, vol. 170, déc. 2022, doi: 10.1016/j.advwatres.2022.104320.
- [180] C. Soulaine, J. Maes, et S. Roman, « Computational Microfluidics for Geosciences », *Front. Water*, vol. 3, mars 2021, doi: 10.3389/frwa.2021.643714.
- [181] A. Patsoukis Dimou, H. P. Menke, et J. Maes, « Benchmarking the Viability of 3D Printed Micromodels for Single Phase Flow Using Particle Image Velocimetry and Direct Numerical Simulations », *Transp. Porous Media*, vol. 141, n° 2, 2022, doi: 10.1007/s11242-021-01718-8.
- [182] V. Cnudde et M. N. Boone, « High-resolution X-ray computed tomography in geosciences: A review of the current technology and applications », *Earth-Sci. Rev.*, vol. 123, p. 1-17, août 2013, doi: 10.1016/j.earscirev.2013.04.003.
- [183] F. Mura, F. Cognigni, M. Ferroni, V. Morandi, et M. Rossi, « Advances in Focused Ion Beam Tomography for Three-Dimensional Characterization in Materials Science », *Materials*, vol. 16, n° 17, sept. 2023, doi: 10.3390/ma16175808.
- [184] S. Berg *et al.*, « Real-time 3D imaging of Haines jumps in porous media flow », *Proc. Natl. Acad. Sci.*, vol. 110, n° 10, p. 3755-3759, 2013, doi: 10.1073/pnas.1221373110.
- [185] D. Legland, I. Arganda-Carreras, et P. Andrey, « MorphoLibJ: Integrated library and plugins for mathematical morphology with ImageJ », *Bioinformatics*, vol. 32, n° 22, p. 3532-3534, 2016, doi: 10.1093/bioinformatics/btw413.
- [186] E. Shiota, T. Mukunoki, A.-J. Tinet, F. Golfier, et L. Oxarango, « Micro-and macro-scale water retention properties of granular soils: contribution of the X-Ray CT-based voxel percolation method », *Soil Res.*, 2019.
- [187] S. Berg *et al.*, « Connected pathway relative permeability from pore-scale imaging of imbibition », *Adv. Water Resour.*, vol. 90, p. 24-35, avr. 2016, doi: 10.1016/j.advwatres.2016.01.010.
- [188] C. Duwig *et al.*, « Impacts of land use on hydrodynamic properties and pore architecture of volcanic soils from the Mexican Highlands », *Soil Res.*, vol. 57, n° 6, p. 629-641, 2019, doi: 10.1071/SR18271.

- [189] K. Müller *et al.*, « Orchard management and preferential flow in Andosols-comparing two kiwifruit orchards in New Zealand », *Soil Res.*, vol. 57, n° 6, p. 615-628, 2019, doi: 10.1071/SR18293.
- [190] A. J. Tinet, P. Collon, C. Philippe, L. Dewaide, et V. Hallet, « OM-MADE: An open-source program to simulate one-dimensional solute transport in multiple exchanging conduits and storage zones », *Comput. Geosci.*, vol. 127, p. 23-35, juin 2019, doi: 10.1016/j.cageo.2019.03.001.
- [191] J. A. Arrieta-Escobar *et al.*, « 3D printing: An emerging opportunity for soil science », *Geoderma*, vol. 378, nov. 2020, doi: 10.1016/j.geoderma.2020.114588.
- [192] R. Bedell *et al.*, « Open-Source Script for Design and 3D Printing of Porous Structures for Soil Science », *Technologies*, vol. 9, n° 3, sept. 2021, doi: 10.3390/technologies9030067.
- [193] C. Jiang, X. Wang, S. Pu, et H. Jourde, « Karst genesis and wormhole formation in carbonate joint networks: a comparison between 3D and 2D modeling », *J. Hydrol.*, vol. 619, p. 129303, 2023, doi: 10.1016/j.jhydrol.2023.129303.
- [194] F. Golfier, C. Zarcone, B. Bazin, R. Lenormand, D. Lasseux, et M. Quintard, « On the ability of a Darcy-scale model to capture wormhole formation during the dissolution of a porous medium », *J. Fluid Mech.*, vol. 457, p. 213-254, 2002, doi: 10.1017/S0022112002007735.
- [195] G. Daccord, O. Liétard, et R. Lenormand, « Chemical dissolution of a porous medium by a reactive fluid—II. Convection vs reaction, behavior diagram », *Chem. Eng. Sci.*, vol. 48, n° 1, p. 179-186, janv. 1993, doi: 10.1016/0009-2509(93)80294-Z.
- [196] H. P. Menke, J. Maes, et S. Geiger, « Channeling is a distinct class of dissolution in complex porous media », *Sci. Rep.*, vol. 13, n° 1, déc. 2023, doi: 10.1038/s41598-023-37725-6.
- [197] R. Roded, P. Szymczak, et R. Holtzman, « Wormholing in Anisotropic Media: Pore-Scale Effect on Large-Scale Patterns », *Geophys. Res. Lett.*, vol. 48, n° 11, juin 2021, doi: 10.1029/2021GL093659.
- [198] A. Tsinober, R. Rosenzweig, H. Class, R. Helmig, et U. Shavit, « The Role of Mixed Convection and Hydrodynamic Dispersion During CO₂ Dissolution in Saline Aquifers: A Numerical Study », *Water Resour. Res.*, vol. 58, n° 3, mars 2022, doi: 10.1029/2021WR030494.
- [199] C. W. Macminn et R. Juanes, « Buoyant currents arrested by convective dissolution », *Geophys. Res. Lett.*, vol. 40, n° 10, p. 2017-2022, mai 2013, doi: 10.1002/grl.50473.
- [200] C. Oltéan, F. Golfier, et M. A. Buès, « Numerical and experimental investigation of buoyancy-driven dissolution in vertical fracture », *J. Geophys. Res. Solid Earth*, vol. 118, n° 5, p. 2038-2048, 2013, doi: 10.1002/jgrb.50188.
- [201] A. W. A. Ahoulou, A. J. Tinet, C. Oltéan, et F. Golfier, « Experimental Insights Into the Interplay Between Buoyancy, Convection, and Dissolution Reaction », *J. Geophys. Res. Solid Earth*, vol. 125, n° 11, nov. 2020, doi: 10.1029/2020JB020854.
- [202] C. R. dos S. Lucas *et al.*, « Carbonate acidizing – A review on influencing parameters of wormholes formation », *J. Pet. Sci. Eng.*, vol. 220, janv. 2023, doi: 10.1016/j.petrol.2022.111168.
- [203] A. Ahoulou, « Experimental study of reactive transport in porous media : application to dissolution coupled with density gradients », Université de Lorraine, Nancy, France, 2020. [En ligne]. Disponible sur: <https://hal.univ-lorraine.fr/tel-03150910>
- [204] K. Li, R. Hu, X.-S. Chen, Z. Yang, et Y.-F. Chen, « Phase diagram and permeability evolution for dissolving vertical fractures in a gravity field », *Adv. Water Resour.*, vol. 185, 2024, doi: 10.6084/m9.figshare.23833140.v1.
- [205] C. Noiriél et F. Renard, « Four-dimensional X-ray micro-tomography imaging of dynamic processes in geosciences », *Comptes Rendus - Geosci.*, vol. 354, n° G2, p. 255-280, 2022, doi: 10.5802/crgeos.137.
- [206] E. Maire, G. Bonnard, J. Adrien, X. Boulnat, J. M. Létang, et J. Lachambre, « Dual Beam microfocus high-energy tomography: Towards multimodal and faster laboratory

- experiments », *Tomogr. Mater. Struct.*, vol. 5, p. 100030, juin 2024, doi: 10.1016/j.tmater.2024.100030.
- [207] F. Buyse, S. Dewaele, M. N. Boone, et V. Cnudde, « Combining Automated Mineralogy with X-ray Computed Tomography for Internal Characterization of Ore Samples at the Microscopic Scale », *Nat. Resour. Res.*, vol. 32, n° 2, p. 461-478, avr. 2023, doi: 10.1007/s11053-023-10161-z.
- [208] ANDRA, « Dossier 2005 Argile: Evolution ph'énom'énologique du stockage g'eologique », in *Collection Les Rapports*, 2005, p. 520.
- [209] F. Claret *et al.*, « EURAD state-of-the-art report: development and improvement of numerical methods and tools for modeling coupled processes in the field of nuclear waste disposal », *Front. Nucl. Eng.*, vol. 3, 2024, doi: 10.3389/fnuen.2024.1437714.
- [210] S. Levasseur *et al.*, « State of the Art on Gas Transport in Clayey Materials - Update 2023. Deliverable D6.2 of the HORIZON 2020 project EURAD, Work Package Gas. EC Grant agreement no: 847593. » 2024.
- [211] F. Bardelli *et al.*, « Hydrogen uptake and diffusion in Callovo-Oxfordian clay rock for nuclear waste disposal technology », *Appl. Geochem.*, vol. 49, 2014, doi: 10.1016/j.apgeochem.2014.06.019.
- [212] V. Sarrot et M. Prat, « Hyperslow drainage in a porous medium. Influence of retention curve », *Adv. Water Resour.*, vol. 33, n° 9, 2010, doi: 10.1016/j.advwatres.2010.05.007.
- [213] K. Kim, J. Rutqvist, J. F. Harrington, E. Tamayo-Mas, et J. T. Birkholzer, « Discrete Dilatant Pathway Modeling of Gas Migration Through Compacted Bentonite Clay », *Int. J. Rock Mech. Min. Sci.*, vol. 137, 2021, doi: 10.1016/j.ijrmmms.2020.104569.
- [214] P. F. Boulon, R. Angulo-jaramillo, J. Daian, J. Talandier, et P. Berne, « Pore gas connectivity analysis in Callovo-Oxfordian argillite », *Appl. Clay Sci.*, vol. 42, n° 1-2, p. 276-283, 2008, doi: 10.1016/j.clay.2008.01.014.
- [215] N. G. Hadjiconstantinou, « Annual Review of Fluid Mechanics Molecular Mechanics of Liquid and Gas Slip Flow », *Annu Rev Fluid Mech 2024*, vol. 56, p. 435-461, 2024, doi: 10.1146/annurev-fluid-121021.
- [216] S. Gaboreau, J. C. Robinet, et D. Prêt, « Optimization of pore-network characterization of a compacted clay material by TEM and FIB/SEM imaging », *Microporous Mesoporous Mater.*, vol. 224, n° March, p. 116-128, 2016, doi: 10.1016/j.micromeso.2015.11.035.
- [217] D. Jougnot, A. Revil, N. Lu, et A. Wayllace, « Transport properties of the Callovo-Oxfordian clay rock under partially saturated conditions », *Water Resour. Res.*, vol. 46, n° 8, 2010, doi: 10.1029/2009WR008552.
- [218] R. Lenormand, E. Touboul, et C. Zarcone, « Numerical models and experiments on immiscible displacements in porous media », *J. Fluid Mech.*, vol. 189, p. 165-187, 1988.
- [219] N. Amrofel, « Caractérisation numérique des phénomènes de couplage multiphysique sur la migration de gaz dans une roche argileuse saturée aux échelles mésoscopiques », Université de Lorraine, Nancy, 2024.
- [220] A. Alizadeh, W. L. Hsu, M. Wang, et H. Daiguji, « Electroosmotic flow: From microfluidics to nanofluidics », *Electrophoresis*, vol. 42, n° 7-8, p. 834-868, avr. 2021, doi: 10.1002/elps.202000313.
- [221] C. Tournassat et C. I. Steefel, « Reactive Transport Modeling of Coupled Processes in Nanoporous Media », in *Reviews in Mineralogy and Geochemistry*, vol. 85, Mineralogical Society of America, 2019, p. 75-109. doi: 10.2138/rmg.2019.85.4.
- [222] Y. Yang *et al.*, « Pore-Scale Modeling of Water and Ion Diffusion in Partially Saturated Clays », *Water Resour. Res.*, vol. 60, n° 1, janv. 2024, doi: 10.1029/2023WR035595.
- [223] A. Obliger *et al.*, « Numerical homogenization of electrokinetic equations in porous media using lattice-Boltzmann simulations », *Phys. Rev. E Stat. Nonlin. Soft Matter Phys.*, vol. 88, p. 13019, 2013, doi: 10.1103/Phys.

- [224] H. Yoshida, T. Kinjo, et H. Washizu, « Coupled lattice Boltzmann method for simulating electrokinetic flows: A localized scheme for the Nernst-Planck model », *Commun. Nonlinear Sci. Numer. Simul.*, vol. 19, n° 10, p. 3570-3590, 2014, doi: 10.1016/j.cnsns.2014.03.005.
- [225] Y. Luo, H. Xiao, X. Liu, Y. Qin, Z. Wu, et T. Zheng, « Multiphase nanoconfined fluid flow mechanisms in nanopores, insights derived from molecular dynamics », *Chem. Eng. J.*, vol. 474, oct. 2023, doi: 10.1016/j.cej.2023.145946.
- [226] M. van Liedekerke, G. Prokop, S. Rabl-Berger, M. Kibblewhite, et G. Louwagie, « Progress in the management of contaminated sites in Europe. Reference Report by the Joint Research Centre (JRC) of the European Commission », 2014. doi: 10.2788/4658.
- [227] S. Mineo, « Groundwater and soil contamination by LNAPL: State of the art and future challenges », *Sci. Total Environ.*, vol. 874, mai 2023, doi: 10.1016/j.scitotenv.2023.162394.
- [228] A. Guleria, P. K. Gupta, S. Chakma, et B. K. Yadav, « Unraveling the Fate and Transport of DNAPLs in Heterogeneous Aquifer Systems—A Critical Review and Bibliometric Analysis », *Sustain. Switz.*, vol. 15, n° 10, mai 2023, doi: 10.3390/su15108214.
- [229] C. Engelmann *et al.*, « The fate of DNAPL contaminants in non-consolidated subsurface systems – Discussion on the relevance of effective source zone geometries for plume propagation », *J. Hazard. Mater.*, vol. 375, p. 233-240, août 2019, doi: 10.1016/j.jhazmat.2019.04.083.
- [230] Jonas Garcia-Rincon, Evangelos Gatsios, Robert J. Lenhard, Estella A. Atekwana, et Ravi Naidu, *Advances in the characterisation and remediation of sites contaminated with petroleum hydrocarbons (p. 662)*. Springer Nature. Springer Nature, 2024.
- [231] E. Shiota, T. Mukunoki, et A.-J. Tinet, « Estimation of water - LNAPL transfer with different granular materials using X-ray CT image analysis », *Jpn. Geotech. Soc. Spec. Publ.*, vol. 4, n° 7, p. 150-153, 2016, doi: 10.3208/jgssp.v04.j11.
- [232] A.-J. Tinet, « Pore-scale multiphase flow: Comparison between micromodel drainage experiment and pseudopotential MRT Lattice Boltzmann Model », in *Interpore, Padova, Italy*, 2015.
- [233] S. E. Powers, L. M. Abriola, J. S. Dunkin, et W. J. Weber, « Hydrology Phenomenological models for transient NAPL-water mass-transfer processes », 1994.
- [234] M. Mobile *et al.*, « In-situ determination of field-scale NAPL mass transfer coefficients: Performance, simulation and analysis », *J. Contam. Hydrol.*, vol. 187, p. 31-46, avr. 2016, doi: 10.1016/j.jconhyd.2016.01.010.
- [235] H. Y. N. Holman et I. Javandel, « Evaluation of transient dissolution of slightly water-soluble compounds from a light nonaqueous phase liquid pool », *Water Resour. Res.*, vol. 32, n° 4, p. 915-923, avr. 1996, doi: 10.1029/96WR00075.
- [236] M. Vasudevan *et al.*, « Effect of compositional heterogeneity on dissolution of non-ideal LNAPL mixtures », *J. Contam. Hydrol.*, vol. 194, p. 10-16, nov. 2016, doi: 10.1016/j.jconhyd.2016.09.006.
- [237] Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC), *Climate Change 2021 – The Physical Science Basis*. Cambridge University Press, 2021. doi: 10.1017/9781009157896.
- [238] H. M. Fussler, P. Kristensen, A. Jol, A. Marx, et M. Hilden, *Climate change, impacts and vulnerability in Europe 2016. An indicator-based report*. Luxembourg: Publications Office of the European Union, 2017.
- [239] D. Carvalho, S. Cardoso Pereira, et A. Rocha, « Future surface temperatures over Europe according to CMIP6 climate projections: an analysis with original and bias-corrected data », *Clim. Change*, vol. 167, n° 1-2, p. 10, juill. 2021, doi: 10.1007/s10584-021-03159-0.
- [240] K. Menberg, P. Blum, B. L. Kurylyk, et P. Bayer, « Observed groundwater temperature response to recent climate change », *Hydrol. Earth Syst. Sci.*, vol. 18, n° 11, p. 4453-4466, nov. 2014, doi: 10.5194/hess-18-4453-2014.
- [241] A. Cavelan, F. Golfier, S. Colombano, H. Davarzani, J. Deparis, et P. Faure, « A critical review of the influence of groundwater level fluctuations and temperature on LNAPL

- contaminations in the context of climate change », *Sci. Total Environ.*, vol. 806, p. 150412, 2022, doi: 10.1016/j.scitotenv.2021.150412.
- [242] R. Reinecke *et al.*, « Uncertainty of simulated groundwater recharge at different global warming levels: A global-scale multi-model ensemble study », *Hydrol. Earth Syst. Sci.*, vol. 25, n° 2, p. 787-810, févr. 2021, doi: 10.5194/hess-25-787-2021.
- [243] B. D. Smerdon, « A synopsis of climate change effects on groundwater recharge », *J. Hydrol.*, vol. 555, p. 125-128, 2017, doi: doi:%2010.1016/j.jhydrol.2017.09.047.
- [244] P. J. Van Geel et J. F. Sykes, « Contaminant HvcrlOlogv Laboratory and model simulations of a LNAPL spill in a variably-saturated sand, 1. Laboratory experiment and image analysis techniques », 1994.
- [245] E. Gatsios, J. García-Rincón, J. L. Rayner, R. G. McLaughlan, et G. B. Davis, « LNAPL transmissivity as a remediation metric in complex sites under water table fluctuations », *J. Environ. Manage.*, vol. 215, p. 40-48, juin 2018, doi: 10.1016/j.jenvman.2018.03.026.
- [246] C. J. C. Van De Ven, K. H. Scully, M. A. Frame, N. J. Sihota, et K. U. Mayer, « Impacts of water table fluctuations on actual and perceived natural source zone depletion rates », *J. Contam. Hydrol.*, vol. 238, mars 2021, doi: 10.1016/j.jconhyd.2021.103771.
- [247] R. Dagois, C. Schwartz, S. Coussy, C. Lorgeoux, S. Ouvrard, et P. Faure, « Climatic influence on mobility of organic pollutants in Technosols from contrasted industrial activities », *J. Soils Sediments*, vol. 16, n° 4, p. 1306-1315, 2016, doi: 10.1007/s11368-015-1108-4.
- [248] E. H. Teramoto et H. K. Chang, « Field data and numerical simulation of btex concentration trends under water table fluctuations: Example of a jet fuel-contaminated site in Brazil », *J. Contam. Hydrol.*, vol. 198, p. 37-47, 2017, doi: 10.1016/j.jconhyd.2017.01.002.
- [249] H. Yoon, C. J. Werth, C. P. L. Barkan, D. J. Schaeffer, et P. Anand, « An environmental screening model to assess the consequences to soil and groundwater from railroad-tank-car spills of light non-aqueous phase liquids », *J. Hazard. Mater.*, vol. 165, n° 1-3, p. 332-344, juin 2009, doi: 10.1016/j.jhazmat.2008.09.121.
- [250] A. Cavelan *et al.*, « An experimental multi-method approach to better characterize the LNAPL fate in soil under fluctuating groundwater levels », *J. Contam. Hydrol.*, vol. 262, mars 2024, doi: 10.1016/j.jconhyd.2024.104319.
- [251] A. Cavelan *et al.*, « Lysimetric experiments to characterize the multiphase mobilization of LNAPL in contaminated soils by a multi-method monitoring approach under controlled climatic scenarios », *INTERPORE*. Edinburgh, UK, 2023.
- [252] R. S. Baker, S. G. Nielsen, G. Heron, et N. Ploug, « How Effective Is Thermal Remediation of DNAPL Source Zones in Reducing Groundwater Concentrations? », *Groundw. Monit. Remediat.*, vol. 36, n° 1, p. 38-53, déc. 2016, doi: 10.1111/gwmmr.12149.
- [253] M. I. J. van Dijke et S. E. A. T. M. van der Zee, « Multi-phase flow modeling of air sparging », *Adv. Water Resour.*, vol. 18, n° 6, p. 319-333, 1995.
- [254] E. Castelier, O. Gerbaux, D. Jamet, P. Locoge, et P. Maugis, « Rapport de synthèse Mascilia phase I. Confrontation expérimentale d'un modèle thermohydraulique en milieu poreux », Direction de l'Énergie Nucleaire, Centre de Cadarache, 2001.
- [255] J. Bénard, R. Eymard, X. Nicolas, et C. Chavant, « Boiling in porous media: Model and simulations », *Transp. Porous Media*, vol. 60, n° 1, p. 1-31, juill. 2005, doi: 10.1007/s11242-004-2594-9.
- [256] M. Arshadi, M. Geshe, T. Qin, L. Goual, et M. Piri, « Impact of mineralogy and wettability on pore-scale displacement of NAPLs in heterogeneous porous media », *J. Contam. Hydrol.*, vol. 230, p. 103599, mars 2020, doi: 10.1016/j.jconhyd.2020.103599.
- [257] I. L. Molnar, J. I. Gerhard, C. S. Willson, et D. M. O'Carroll, « Wettability Effects on Primary Drainage Mechanisms and NAPL Distribution: A Pore-Scale Study », *Water Resour. Res.*, vol. 56, n° 1, janv. 2020, doi: 10.1029/2019WR025381.

- [258] Y. H. Fu, L. Bai, K. H. Luo, Y. Jin, et Y. Cheng, « Modeling mass transfer and reaction of dilute solutes in a ternary phase system by the lattice Boltzmann method », *Phys. Rev. E*, vol. 95, n° 4, p. 1-21, 2017, doi: 10.1103/PhysRevE.95.043304.
- [259] W. Song, M. Prodanović, J. Yao, et K. Zhang, « Nano-scale Wetting Film Impact on Multiphase Transport Properties in Porous Media », *Transp. Porous Media*, vol. 149, n° 1, p. 5-33, août 2023, doi: 10.1007/s11242-022-01800-9.
- [260] J. Cai *et al.*, « Numerical modeling of multiphase flow in porous media considering micro- and nanoscale effects: A comprehensive review », *Gas Sci. Eng.*, p. 205441, nov. 2024, doi: 10.1016/j.jgsce.2024.205441.
- [261] D. Feng *et al.*, « A comprehensive review on the flow behaviour in shale gas reservoirs: Multi-scale, multi-phase, and multi-physics », *Can. J. Chem. Eng.*, vol. 100, n° 11, p. 3084-3122, nov. 2022, doi: 10.1002/cjce.24439.
- [262] T. Liu et M. Wang, « Critical REV Size of Multiphase Flow in Porous Media for Upscaling by Pore-Scale Modeling », *Transp. Porous Media*, vol. 144, n° 1, p. 111-132, août 2022, doi: 10.1007/s11242-021-01621-2.
- [263] J. Li, S. R. McDougall, et K. S. Sorbie, « Dynamic pore-scale network model (PNM) of water imbibition in porous media », *Adv. Water Resour.*, vol. 107, p. 191-211, sept. 2017, doi: 10.1016/j.advwatres.2017.06.017.
- [264] J. Zhao, F. Qin, Q. Kang, D. Derome, et J. Carmeliet, « Pore-scale simulation of drying in porous media using a hybrid lattice Boltzmann: pore network model », *Dry. Technol.*, vol. 40, n° 4, p. 719-734, mars 2022, doi: 10.1080/07373937.2021.1933017.
- [265] F. J. Carrillo, C. Soulaïne, et I. C. Bourg, « The impact of sub-resolution porosity on numerical simulations of multiphase flow », *Adv. Water Resour.*, vol. 161, mars 2022, doi: 10.1016/j.advwatres.2021.104094.
- [266] Z. Lanetc, A. Zhuravljov, R. T. Armstrong, et P. Mostaghimi, « Estimation of relative permeability curves in fractured media by coupling pore network modelling and volume of fluid methods », *Int. J. Multiph. Flow*, vol. 171, janv. 2024, doi: 10.1016/j.ijmultiphaseflow.2023.104668.
- [267] C. Soulaïne, « Micro-Continuum Modeling: An Hybrid-Scale Approach for Solving Coupled Processes in Porous Media », *Water Resour. Res.*, vol. 60, n° 2, févr. 2024, doi: 10.1029/2023WR035908.
- [268] L. Wang, F. Golfier, A. J. Tinet, W. Chen, et C. Vuik, « An efficient adaptive implicit scheme with equivalent continuum approach for two-phase flow in fractured vuggy porous media », *Adv. Water Resour.*, vol. 163, mai 2022, doi: 10.1016/j.advwatres.2022.104186.
- [269] W. Zhang, X. Gu, L. Tang, Y. Yin, D. Liu, et Y. Zhang, « Application of machine learning, deep learning and optimization algorithms in geoenvironment and geoscience: Comprehensive review and future challenge », *Gondwana Res.*, vol. 109, p. 1-17, sept. 2022, doi: 10.1016/j.gr.2022.03.015.
- [270] P. Liu, J. Zhao, Z. Li, et H. Wang, « Numerical simulation of multiphase multi-physics flow in underground reservoirs: Frontiers and challenges », *Capillarity*, vol. 12, n° 3, p. 72-79, sept. 2024, doi: 10.46690/capi.2024.09.02.
- [271] J. Xu, Q. Fu, et H. Li, « A novel deep learning-based automatic search workflow for CO2 sequestration surrogate flow models », *Fuel*, vol. 354, déc. 2023, doi: 10.1016/j.fuel.2023.129353.
- [272] R. Niekamp, J. Niemann, et J. Schröder, « A surrogate model for the prediction of permeabilities and flow through porous media: a machine learning approach based on stochastic Brownian motion », *Comput. Mech.*, vol. 71, n° 3, p. 563-581, mars 2023, doi: 10.1007/s00466-022-02250-2.
- [273] H. Wu, W. Z. Fang, Q. Kang, W. Q. Tao, et R. Qiao, « Predicting Effective Diffusivity of Porous Media from Images by Deep Learning », *Sci. Rep.*, vol. 9, n° 1, déc. 2019, doi: 10.1038/s41598-019-56309-x.

- [274] A. Kubeyev, « Enhancing multi-physics modelling with deep learning: Predicting permeability through structural discontinuities », *Eng. Appl. Artif. Intell.*, vol. 124, sept. 2023, doi: 10.1016/j.engappai.2023.106562.
- [275] N. I. Prasianakis, R. Haller, M. Mahrous, J. Poonoosamy, W. Pflingsten, et S. V. Churakov, « Neural network based process coupling and parameter upscaling in reactive transport simulations », *Geochim. Cosmochim. Acta*, vol. 291, p. 126-143, déc. 2020, doi: 10.1016/j.gca.2020.07.019.
- [276] Q. Kang, K. Q. Li, J. L. Fu, et Y. Liu, « Hybrid LBM and machine learning algorithms for permeability prediction of porous media: A comparative study », *Comput. Geotech.*, vol. 168, avr. 2024, doi: 10.1016/j.compgeo.2024.106163.
- [277] M. Karimi et K. Bhattacharya, « A Learning-Based Multiscale Model for Reactive Flow in Porous Media », *Water Resour. Res.*, vol. 60, n° 9, sept. 2024, doi: 10.1029/2023WR036303.
- [278] Z. Zhang, X. Yan, P. Liu, K. Zhang, R. Han, et S. Wang, « A physics-informed convolutional neural network for the simulation and prediction of two-phase Darcy flows in heterogeneous porous media », *J. Comput. Phys.*, vol. 477, mars 2023, doi: 10.1016/j.jcp.2023.111919.
- [279] X. Yan *et al.*, « Physics-informed neural network simulation of two-phase flow in heterogeneous and fractured porous media », *Adv. Water Resour.*, vol. 189, juill. 2024, doi: 10.1016/j.advwatres.2024.104731.
- [280] I. Nabipour, A. Raoof, V. Cnudde, H. Aghaei, et J. Qajar, « A computationally efficient modeling of flow in complex porous media by coupling multiscale digital rock physics and deep learning: Improving the tradeoff between resolution and field-of-view », *Adv. Water Resour.*, vol. 188, juin 2024, doi: 10.1016/j.advwatres.2024.104695.
- [281] M. Reinhardt *et al.*, « Benchmarking conventional and machine learning segmentation techniques for digital rock physics analysis of fractured rocks », *Environ. Earth Sci.*, vol. 81, n° 3, févr. 2022, doi: 10.1007/s12665-021-10133-7.
- [282] M. Liu, R. Ahmad, W. Cai, et T. Mukerji, « Hierarchical Homogenization With Deep-Learning-Based Surrogate Model for Rapid Estimation of Effective Permeability From Digital Rocks », *J. Geophys. Res. Solid Earth*, vol. 128, n° 2, févr. 2023, doi: 10.1029/2022JB025378.
- [283] J. M. Gimenez, S. R. Idelsohn, et E. Oñate, « Modeling and simulation of multiphase flow in highly fractured porous media with a data-driven multiscale approach », *Comput. Mech.*, 2025, doi: 10.1007/s00466-024-02594-x.
- [284] K. M. Graczyk, D. Strzelczyk, et M. Matyka, « Deep learning for diffusion in porous media », *Sci. Rep.*, vol. 13, n° 1, déc. 2023, doi: 10.1038/s41598-023-36466-w.
- [285] H. Wei, S. Zhao, Q. Rong, et H. Bao, « Predicting the effective thermal conductivities of composite materials and porous media by machine learning methods », *Int. J. Heat Mass Transf.*, vol. 127, n° Part C, p. 908-916, 2018.
- [286] Z. Wang, H. Jeong, Y. Gan, J.-M. Pereira, Y. Gu, et E. Sauret, « Pore-scale modeling of multiphase flow in porous media using a conditional generative adversarial network (cGAN) », *Phys. Fluid*, vol. 12, n° 34, 2022, doi: 10.1063/5.0133054i.
- [287] H. Wang, M. Zhang, X. Xia, Z. Tian, X. Qin, et J. Cai, « Lattice Boltzmann prediction of CO₂ and CH₄ competitive adsorption in shale porous media accelerated by machine learning for CO₂ sequestration and enhanced CH₄ recovery », *Appl. Energy*, vol. 370, sept. 2024, doi: 10.1016/j.apenergy.2024.123638.
- [288] J. Fu *et al.*, « A data-driven framework for permeability prediction of natural porous rocks via microstructural characterization and pore-scale simulation », *Eng. Comput.*, vol. 39, n° 6, p. 3895-3926, déc. 2023, doi: 10.1007/s00366-023-01841-8.
- [289] A. Kashefi et T. Mukerji, « Prediction of fluid flow in porous media by sparse observations and physics-informed PointNet », *Neural Netw.*, vol. 167, p. 80-91, 2023.