

Contributions à la modélisation hydrodynamique et géochimique des fluides : des approches numériques aux applications

Mémoire

présenté et soutenu publiquement le 12 novembre 2012

pour l'obtention de l'

**Habilitation à Diriger des Recherches
de l'Université de Versailles Saint-Quentin-en-Yvelines**

Spécialité : Sciences - Mécanique, génie mécanique, génie civil

par

Claude MÜGLER

Composition du jury

<i>Rapporteurs :</i>	Patrick GOBLET	Mines-ParisTech, Fontainebleau
	Philippe GOUZE	CNRS, Montpellier
	Roger MOUSSA	INRA, Montpellier
<i>Examineurs :</i>	Laurent DUMAS	Université Versailles Saint-Quentin-en-Yvelines
	Serge GAUTHIER	CEA, Bruyères-le-Châtel
	Claudio PANICONI	INRS, Québec (Canada)

Mis en page avec la classe thloria.

*Savoir qu'il y a quelque chose de plus important que les réussites ou les échecs :
ce sont les sensations fines, la participation à ce qui est à partir de rien,
une aile qui passe, une roche moussue, un chaland sur le fleuve,
les mille révélations que le choc du monde fait sur le corps
qui allument une petite flamme intérieure...*

Le coeur de tous Georges Haldas

À ma mère

Remerciements

Les travaux présentés dans ce manuscrit n'auraient peut-être pas vu le jour sans l'aide précieuse de nombreuses personnes que je voudrais remercier ici.

Je voudrais commencer par mon responsable de stage de fin d'études, Paolo Mariani qui m'a transmis le goût pour la recherche par son enthousiasme passionné et communicatif. Puis j'ai eu la chance de croiser la route de plusieurs scientifiques ayant le souci permanent de transmettre leurs connaissances. Je pense ici tout d'abord à Gérard Pépy pour ses conseils et son soutien tout au long de ma thèse. Puis à Serge Gauthier qui m'a initiée à la modélisation des instabilités hydrodynamiques au début de ma carrière au CEA. Je remercie également Emmanuel Mouche de m'avoir accueillie dans son équipe pour participer à la modélisation de systèmes naturels, et avec qui j'ai aujourd'hui encore beaucoup de plaisir à travailler.

Je ne pourrai bien sûr pas nommer ici tous les collègues avec lesquels j'ai eu la chance de collaborer depuis mon embauche au CEA. Dans l'ordre chronologique, je pense d'abord à mes collègues de la Direction des Applications Militaires, et tout particulièrement à Marc Vandenkooy, Olivier Grégoire, Ludovic Hallo et Denis Souffland. J'ai certes depuis longtemps vogué vers d'autres horizons mais je garde un très bon souvenir de nos modélisations communes d'expériences en tubes à chocs.

À la Direction de l'Énergie Nucléaire, j'ai ensuite eu le plaisir de travailler avec Philippe Montarnal, Estelle Deville, Alain Genty, Michael Descostes, Benoît Bary, et de profiter des conseils avisés en analyse numérique de Frédéric Dabbene, Alberto Beccantini et Christophe Le Potier. Merci, Fred, pour ton humour décapant et les nombreux « dépannages » Castem, et merci, Alberto, pour les « opérateurs » dont les noms mystérieux laisseront sûrement de nombreux utilisateurs assez rêveurs !

À la Direction des Sciences de la Matière, j'ai pu confronter les résultats de la modélisation de systèmes naturels à des résultats expérimentaux, et cela dans différents domaines, grâce à Christophe Rabouille, Dominique Genty, Philippe Jean-Baptiste, Jean Luc Charlou de l'Ifremer et Olivier Planchon de l'IRD. Et pour la vie de tous les jours au Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, notamment pendant la rédaction de ce manuscrit, je tiens à décerner une mention spéciale à Christophe Grenier, Edwige Pons-Branchu, et aux nombreux stagiaires et doctorants de l'équipe de modélisation hydrologique. Merci, Marie-Alice, pour ta bonne humeur et pour les délicieux gâteaux et truffes en chocolat ...

Je voudrais bien sûr également remercier chaleureusement Patrick Goblet, Philippe Gouze, Roger Moussa, Laurent Dumas, Serge Gauthier et Claudio Paniconi d'avoir accepté de faire partie de mon jury. Un grand merci, Claudio, d'avoir traversé l'Atlantique pour venir à ma soutenance !

Je tiens également à profiter de cette occasion pour exprimer toute ma reconnaissance au CEA et aux différents laboratoires qui m'ont accueillie au cours de ma carrière. Par sa pluridisciplinarité et les moyens offerts à ses chercheurs, cet organisme constitue à mes yeux le cadre idéal pour réaliser dans de bonnes conditions une recherche de qualité.

Résumé

Les équations de la Mécanique des Fluides sont des équations fortement non linéaires pour lesquelles, en général, on ne dispose pas de solutions analytiques. Elles doivent donc être résolues numériquement en utilisant des méthodes adaptées. Ce mémoire présente une sélection de mes activités de recherche ayant consisté à mettre en équations des problèmes d'écoulements de fluides ou de transport d'espèces chimiques, puis à résoudre ces systèmes d'équations en utilisant des techniques d'analyse numérique. Le fil conducteur de ces travaux est donc l'utilisation de la modélisation et de la simulation numérique pour la compréhension de phénomènes complexes.

La première partie de ce mémoire présente une notice de mes titres et travaux.

Dans la seconde partie, consacrée au bilan de mes travaux de recherche, j'ai choisi de détailler mes apports dans les trois domaines suivants :

- la modélisation des instabilités hydrodynamiques ;
- la modélisation des écoulements de surface et souterrains ;
- la modélisation du transport réactif en milieu poreux.

Dans le chapitre consacré à la modélisation des instabilités hydrodynamiques, je présente mes activités de recherche sur la phase déterministe de développement de l'instabilité de Richtmyer-Meshkov, instabilité hydrodynamique particulière qui apparaît lorsqu'une interface séparant deux fluides de densités différentes est soumise à une accélération « impulsive » créée, par exemple, par le passage d'une onde de choc.

Dans le chapitre consacré à mes travaux en modélisation des écoulements de surface et souterrains, je présente une nouvelle expression du coefficient de frottement en fonction de la hauteur d'eau dans la lame d'eau qui ruisselle. Cette expression a été établie et validée grâce à des expériences d'écoulement de surface et de transport d'un traceur non réactif sur une parcelle instrumentée. Je rappelle ensuite quelques travaux que j'ai réalisés en hydrogéologie pour la problématique du stockage géologique de déchets nucléaires.

Dans le chapitre consacré à mes apports en modélisation du transport réactif en milieu poreux, je présente dans un premier temps la modélisation du couplage géochimie-transport et les outils numériques que j'ai développés pour la problématique du stockage de déchets nucléaires. Puis je montre l'intérêt de ces outils pour d'autres applications dans le domaine des géosciences.

Finalement, dans la troisième et dernière partie de ce mémoire, je trace quelques perspectives en lien avec les trois volets scientifiques que j'ai choisi de présenter dans le bilan de mes travaux antérieurs. Ces perspectives concernent :

- l'étude des instabilités convectives, sources de l'hydrothermalisme océanique ;
- la modélisation du couplage géochimie-transport conduisant au relâchement d'hydrogène au niveau de la dorsale médio-atlantique ;
- la modélisation du couplage entre écoulements de surface et souterrains.

Table des matières

Introduction	1
--------------	---

Partie 1: NOTICE DE TITRES ET TRAVAUX

1 Résumé des Activités de Recherches (1988-2012)	7
2 Curriculum Vitae	15
3 Liste des publications	21

Partie 2: BILAN DES TRAVAUX DE RECHERCHE

1 Modélisation de l'instabilité hydrodynamique de Richtmyer-Meshkov	29
1.1 Problématique des instabilités pour la fusion par confinement inertiel	29
1.2 Développement d'un outil de simulation numérique directe	30
1.2.1 Équations de Navier-Stokes compressibles	30
1.2.2 Modèle de mélange	31
1.2.3 Modèle algébrique de turbulence pour les couches limites	32
1.2.4 Méthodes numériques	32
1.2.5 Validation du code CADMÉE	33
1.3 Simulation d'une instabilité de Richtmyer-Meshkov monomode	34
1.4 Régime linéaire: nouvelle formulation du modèle impulsional	35
1.5 Régime non linéaire: méthode des perturbations simplifiée	36
1.6 Transition à la turbulence	37
1.6.1 Analyse statistique	38
1.6.2 Comportement de l'enstrophie	40
2 Modélisation des écoulements de surface et souterrains	43
2.1 Du modèle de Manning pour la modélisation des écoulements de surface	43
2.1.1 Problématique	43
2.1.2 Un nouveau modèle de rugosité	44
2.1.3 Validation du modèle sur une expérience de ruissellement et de traçage . .	46
2.2 Modélisation des écoulements souterrains	50
2.2.1 Problématique du stockage de déchets radioactifs	50

2.2.2	Modélisation des écoulements autour d'un ouvrage	51
3	Modélisation du transport réactif en milieu poreux	55
3.1	Du colis de déchets nucléaires au site de stockage	56
3.1.1	À l'échelle du colis: modèle simplifié de dégradation	56
3.1.2	À l'échelle du site: la plate-forme numérique ALLIANCES	58
3.2	Transport réactif dans des systèmes géochimiques naturels	60
3.2.1	Influence des conditions redox sur la migration de l'uranium	60
3.2.2	Recyclage de la matière organique dans les sédiments en milieu côtier . .	62

Partie 3: PROJETS DE RECHERCHE

1	Modélisation des instabilités convectives en milieu poreux	69
1.1	Contexte de la circulation hydrothermale océanique	69
1.2	Développement d'un outil de simulation numérique	70
1.2.1	Équations du couplage entre l'hydraulique et la thermique	70
1.2.2	Approximation d'Oberbeck-Boussinesq	70
1.2.3	Propriétés des fluides	71
1.2.4	Méthodes numériques	72
1.3	Questions scientifiques et moyens envisagés pour les résoudre	72
1.3.1	Plage de validité de l'approximation d'Oberbeck-Boussinesq	72
1.3.2	Circulation hydrothermale du site de Rainbow	72
2	Transport réactif et circulation hydrothermale	75
2.1	Problématique	75
2.2	Choix de modélisation	76
2.2.1	État de l'art	76
2.2.2	Données de terrain	76
2.2.3	Données de laboratoire	77
2.2.4	Démarche envisagée	77
2.3	Résultats attendus et moyens mis en oeuvre	78
3	Modélisation du couplage entre les écoulements de surface et souterrains	79
3.1	Problématique	79
3.2	Résultats attendus et moyens mis en oeuvre	80

Bibliographie	83
----------------------	-----------

Annexes: Articles scientifiques	93
--	-----------

Annexe A: Numerical simulations of single-mode Richtmyer-Meshkov experiments	95
---	-----------

Annexe B: Two-dimensional Navier-Stokes simulations of gaseous mixtures induced by Richtmyer-Meshkov instability	105
---	------------

Annexe C: Comparison of roughness models to simulate overland flow and tracer transport experiments under simulated rainfall at plot scale	123
Annexe D: Validation and use of a reactive transport code in porous media	141
Annexe E: Impact of spatial heterogeneities on oxygen consumption in sediments: experimental observations and 2D numerical modeling	155

Introduction

Ce mémoire présente une sélection de mes travaux de recherche effectués de septembre 1988, date de début de ma thèse, à aujourd'hui. Différents thèmes de la physique sont abordés mais le fil conducteur de ces travaux est la modélisation et la simulation numérique pour la compréhension de phénomènes en Mécanique des Fluides. L'objet d'étude de la Mécanique des Fluides est le mouvement des liquides et des gaz dans l'approximation où ceux-ci sont considérés comme des milieux continus. Les équations de base sont établies à l'aide de considérations macroscopiques et phénoménologiques qui consistent à écrire des équations de conservation de la masse et de conservation de l'énergie totale. Que ce soient les équations pour l'écoulement (comme celles de Navier-Stokes, celles de Saint-Venant pour les écoulements de surface ou encore celles de Darcy pour les écoulements en milieux poreux) ou que ce soient les équations de transport d'un élément chimique par diffusion, dispersion et/ou convection, les équations en Mécanique des Fluides sont des équations fortement non linéaires pour lesquelles on ne dispose de solutions analytiques que dans des cas très particuliers. Elles doivent être la plupart du temps résolues numériquement en utilisant des méthodes adaptées. Mes activités de recherche ont donc principalement consisté à mettre en équations des problèmes d'écoulements de fluides ou de transport de traceurs, puis à résoudre ces systèmes d'équations grâce à des techniques d'analyse numérique.

Ces travaux ont été effectués au sein de différentes directions du Commissariat à l'Énergie Atomique (CEA). Embauchée en 1991 à la Direction des Applications Militaires (DAM), j'ai rejoint en 2000 la Direction des Études Nucléaires (DEN), puis intégré en 2004 le Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE) au sein de la Direction des Sciences de la Matière (DSM). Notons ici que si la DSM est une direction du CEA à vocation de recherche fondamentale, il n'en est pas de même de la DAM et de la DEN où la priorité des objectifs n'est pas – voire pas du tout – la publication des résultats dans des revues internationales. Les recherches menées à la DAM sont en effet en général à caractère confidentiel et celles faites à la DEN ont souvent pour objectif le soutien en Recherche et Développement aux industriels du nucléaire, tels que EDF, AREVA, l'Agence Nationale pour les Déchets Radioactifs (ANDRA), ou l'Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN).

Au cours de mon parcours professionnel, j'ai été amenée à étudier une très grande diversité de phénomènes, couvrant différentes échelles d'espace et différentes échelles de temps. A chaque fois, que ce soit à la DAM, à la DEN ou à présent à la DSM, j'ai développé des outils de modélisation et de simulation numérique avec le souci permanent de les appliquer soit à la compréhension d'expériences de laboratoire ou d'expériences de terrain, soit comme des outils purement prédictifs là où l'expérience n'est pas envisageable. Répondre à la question « quelles activités de recherche méritent d'être présentées dans ce mémoire » n'a pas été chose facile. J'ai finalement fait le choix de ne parler que des travaux antérieurs ou actuels pour lesquels j'envisage un prolongement dans les prochaines années, ou qui m'ont apporté une expertise exploitable

dans des domaines connexes. Par exemple, dans le corps de ce mémoire, j'ai sciemment omis de commenter mes travaux, dans le domaine du stockage du CO₂ en couches géologiques profondes, sur les écoulements diphasiques de fluides soumis aux forces de gravité dans un milieu fortement hétérogène. En effet, je n'envisage pas de poursuivre cette activité.

Aussi, pour compléter ce panorama non exhaustif de mes activités depuis ma thèse de troisième cycle jusqu'à aujourd'hui, la première partie de ce mémoire propose une notice de mes titres et travaux.

La seconde partie, quant à elle, présente un bilan de mes travaux de recherche. J'ai choisi de détailler dans ce mémoire mes apports dans les trois domaines suivants : (i) la modélisation des instabilités hydrodynamiques, (ii) la modélisation des écoulements de surface et souterrains et (iii) la modélisation du transport réactif en milieu poreux. Mes travaux de recherche dans chacun de ces domaines sont déclinés dans trois chapitres différents de cette seconde partie de ce mémoire. Dans chacun des domaines explorés, j'ai choisi de présenter en priorité des travaux mettant en avant l'importance d'une parfaite synergie entre expériences et modélisations. Je suis en effet convaincue que la modélisation seule, c'est-à-dire sans confrontation avec l'expérience, n'a que peu de chance d'être un reflet fidèle de la réalité.

Dans le premier chapitre consacré à la modélisation des instabilités hydrodynamiques, je présente mes activités de recherche réalisées à la DAM, de 1991 à 2000. Le but de ce travail était d'étudier l'instabilité de Richtmyer-Meshkov, instabilité hydrodynamique particulière qui apparaît lorsqu'une interface séparant deux fluides de densités différentes est soumise à une accélération « impulsionnelle » créée, par exemple, par le passage d'une onde de choc.

Le second chapitre est consacré à mes travaux en modélisation des écoulements de surface et souterrains. Dans un premier temps, j'ai choisi de présenter un travail récent de modélisation de l'écoulement de surface et du transport d'un traceur non réactif sur une parcelle instrumentée par l'Institut de Recherche pour le Développement (IRD). Les résultats expérimentaux à haute résolution spatiale et temporelle ont permis de tester différentes lois de ruissellement et d'établir et valider un nouveau modèle de frottement. Dans un second temps, je rappelle quelques travaux que j'ai réalisés à la DEN où je me suis principalement intéressée à l'hydrogéologie de sites de stockage et à la migration d'eau dans les matériaux ouvragés constituant le champ proche d'un stockage.

Dans le troisième chapitre, je montre mes apports en modélisation du transport réactif en milieu poreux. Dans un premier temps, je présente la modélisation du couplage géochimie-transport et les outils numériques que j'ai développés à la DEN pour la problématique du stockage de déchets nucléaires. Puis je montre l'intérêt de ces outils pour d'autres applications dans le domaine des geosciences.

Dans la troisième et dernière partie de ce mémoire, je trace quelques perspectives de recherche faisant écho aux trois volets scientifiques présentés dans la partie précédente. Ainsi, l'expertise que j'ai acquise en hydrodynamique des fluides m'a permis d'initier un projet de recherche sur l'étude des instabilités convectives en milieu poreux, en m'intéressant plus particulièrement à ces instabilités comme sources de la convection hydrothermale au niveau des dorsales médio-océaniques. Ces sites hydrothermaux sont également le siège d'intenses réactions géochimiques entre fluides et milieux poreux, conduisant au relâchement de fluides à hautes températures et de compositions géochimiques très particulières. La modélisation du transport réactif en milieu poreux devrait pouvoir aider à la compréhension de ces phénomènes fortement couplés.

J'expose également dans cette dernière partie consacrée à mes perspectives de recherche la suite que j'envisage pour mes travaux de modélisation des écoulements de surface et souterrains.

Il s'agit de réaliser le couplage des écoulements entre ces deux « compartiments » naturels.

Le travail de recherche n'est que rarement un travail solitaire. De nombreuses personnes sont impliquées tout au long de ce mémoire : collègues, collaborateurs français ou étrangers, étudiants en stage, en thèse ou en post-doctorat. J'ai à chaque fois tâché de citer la contribution de chacun.

Partie 1 : NOTICE DE TITRES ET TRAVAUX

Résumé des Activités de Recherches (1988-2012)

Comme c'est souvent le cas, ma vocation pour la recherche et le parcours que j'ai ensuite suivi ont été le fruit du hasard de quelques belles rencontres. J'aimerais commencer ce résumé de mes activités de recherches par mon stage de fin d'études car c'est mon responsable de stage, Paolo Mariani, qui m'a donné le goût pour la recherche. J'ai effectué ce stage en 1988 dans un laboratoire à Ancône, sous le doux soleil printanier de la côte adriatique italienne, grâce à la mise en place du tout nouveau système de bourses ERASMUS (dont j'ai « essuyé les plâtres » puisque ma bourse de stage ne m'a été octroyée qu'après mon retour en France). Au cours de ce stage, j'ai étudié par différentes techniques (observations optiques, diffraction des rayons X, calorimétrie) la variation de la structure de phases mésomorphes (appelées aussi cristaux liquides) selon leurs concentrations. Ce travail expérimental a donné lieu à une publication qui est encore aujourd'hui citée (Mariani *et al.*, 1989). Les cristaux liquides synthétisés et étudiés ont en effet une structure cristalline qui évolue selon la température, leur conférant ainsi des propriétés particulièrement appréciées dans l'industrie très lucrative des cosmétiques.

Cette belle première expérience de recherche dans le monde si particulier des cristaux liquides, c'est-à-dire à la frontière entre la physique des solides et la physique des liquides, s'est ensuite poursuivie en France dans le cadre d'une thèse sous la direction de Gérard Pépy et de Marianne Lambert. J'ai en effet effectué ma thèse de troisième cycle de 1988 à 1991 au Laboratoire Léon Brillouin, unité mixte CEA-CNRS située sur le centre de Saclay. Ma thèse a porté sur l'étude par diffusion neutronique de cristaux liquides nématiques sous écoulement de Rayleigh-Bénard. Ce travail de recherche, qui s'inscrivait dans la problématique de la compréhension de la transition au chaos déterministe, a consisté à analyser l'ordre ou le désordre des molécules d'un cristal liquide soumis à un gradient de température et à un champ magnétique en utilisant simultanément deux méthodes expérimentales à deux échelles spatiales très différentes : la diffusion neutronique (échelle moléculaire) et des observations optiques (échelle macroscopique). Ces deux techniques complémentaires m'ont permis d'établir le diagramme de phases du système hydrodynamique et de caractériser l'arrangement des molécules de cristaux liquides dans l'écoulement (Mügler, 1991).

Des instabilités hydrodynamiques à la turbulence (CEA/DAM, 1991-2000)

Après cette thèse expérimentale sur l'instabilité de Rayleigh-Bénard, j'ai été embauchée au CEA, en 1991, à la Direction des Applications Militaires (CEA/DAM), d'abord sur le site de

Limeil-Valenton (Seine et Marne) puis sur celui de Bruyères-le-Châtel (Essonne).

Dès mon arrivée à la DAM en 1991, j'ai eu la responsabilité du développement d'un outil de simulation numérique directe pour prédire correctement les performances des cibles laser utilisées dans les expériences de fusion par confinement inertiel. Ces expériences consistent à faire imploser à l'aide de faisceaux lasers des microballons contenant un matériau fusible. Le rendement énergétique de ces expériences d'implosion peut être fortement détérioré par l'apparition d'instabilités hydrodynamiques qui entraînent le développement d'un mélange turbulent entre l'enveloppe du microballon et son contenu. L'une de ces instabilités, l'instabilité de Richtmyer-Meshkov (IRM), apparaît lorsqu'une interface séparant deux fluides de densités différentes est soumise à une accélération « impulsienne » créée, par exemple, par le passage d'une onde de choc. Cette instabilité et la turbulence qui en découle doivent donc être correctement modélisées pour prédire au mieux les performances des cibles laser. À l'échelle du laboratoire, l'IRM est étudiée à l'aide de tubes à chocs, dispositifs expérimentaux permettant, à partir d'une situation initiale donnée, d'étudier l'apparition d'une zone de mélange turbulente sous l'effet d'une accélération, puis son comportement quand elle est soumise à des accélérations ultérieures. L'outil de simulation numérique directe que j'ai développé avait pour but de simuler et interpréter les expériences en tube à choc. En m'appuyant sur les résultats expérimentaux et numériques, j'ai ensuite proposé des modèles théoriques pour les différentes phases de développement d'une IRM : (i) la phase linéaire, où les amplitudes des perturbations initiales sont suffisamment faibles pour justifier une linéarisation des équations ; (ii) la phase non linéaire, où l'interaction des modes de Fourier conduit à une phase chaotique, dite de turbulence faible, et enfin (iii) la phase de turbulence pleinement développée, où un grand nombre de modes sont excités et produisent des comportements très irréguliers à la fois dans l'espace et dans le temps.

Pour réaliser la simulation des expériences en tube à choc, j'ai donc développé un code d'étude bidimensionnel, le code CADMÉE, résolvant les équations de Navier-Stokes d'un mélange de fluides. Pour cela, je suis partie d'un code existant du laboratoire américain de Los Alamos, le code CAVEAT résolvant les équations d'Euler, dont j'ai étendu la méthode à un mélange de fluides visqueux. La simulation numérique directe nécessitant l'utilisation de schémas numériques très précis, j'ai de plus étendu le schéma numérique de type Godunov du code CADMÉE à l'ordre 2 en temps (méthode de Runge-Kutta). Puis, dans le cadre d'une collaboration scientifique avec des équipes de laboratoires militaires russes (institut ENIN de Moscou), j'ai validé l'outil numérique sur des résultats expérimentaux parfaitement calibrés (Mügler et Gauthier, 1998). Le code CADMÉE, une fois validé, a été utilisé d'une part pour simuler et mieux comprendre les phases de création et de développement de la zone de mélange dans les expériences en tube à choc et d'autre part pour des études académiques. Ainsi, la simulation numérique directe des expériences en tube à choc réalisées au Centre d'études de Vaujours-Moronvilliers (CEA/DAM) ont non seulement aidé à concevoir les expériences mais ont également permis leur interprétation physique (Mügler et Gauthier, 2000). La transition à la turbulence a pu être simulée et comparée aux modèles statistiques de turbulence développée. D'un point de vue académique, CADMÉE a permis de développer et valider des modèles théoriques décrivant de façon analytique le taux de croissance linéaire monomode d'un défaut à l'interface. Ainsi, nous avons montré que la viscosité et la diffusion moléculaire atténuent, sans l'annuler, le taux de croissance des petites longueurs d'onde. En phase faiblement non-linéaire, les taux de croissance approchés des perturbations à l'interface ont été obtenus analytiquement par une méthode de perturbations (Vandenboomgaerde *et al.*, 2002).

La simulation numérique directe nécessite des schémas numériques précis, peu diffusifs, et

également une discrétisation spatiale très fine, qui peut s'avérer fort contraignante et coûteuse en temps machine. C'est pourquoi, à partir de 1997, j'ai participé à la définition du cahier des charges d'un nouveau code 3D parallélisé, le code TRICLADE, qui a consisté à généraliser le schéma numérique du code CADMÉE à une résolution tridimensionnelle des équations de Navier-Stokes et à adapter le code aux machines massivement parallèles comme celles dont dispose la DAM. Ce nouveau code, écrit en langage C++, a été l'un des premiers codes à utiliser toutes les performances de la machine Tera du CEA/DAM et a ainsi participé à l'optimisation de la machine et de ses périphériques comme par exemple le mur d'images.

Du colis de déchets nucléaires au site de stockage (CEA/DEN, 2000-2004)

Désirant m'ouvrir à d'autres thématiques et étant attirée par l'enjeu sociétal que représente le stockage des déchets nucléaires, j'ai choisi de rejoindre en avril 2000 un laboratoire de la Direction des Études Nucléaires (DEN) où j'ai pu apporter mon expertise en modélisation et simulation numérique. Mes activités de recherche et développement à la DEN ont donc consisté à concevoir, réaliser et appliquer des outils numériques adaptés aux différents processus thermiques, géochimiques et hydrogéologiques ayant trait au stockage de déchets nucléaires, de l'échelle du colis de déchets à l'échelle du site. Les travaux que j'ai réalisés dans ce cadre se sont difficilement prêtés à l'exercice de publications dans des revues de rang A, car ils répondaient à des opérations ponctuelles à la demande de l'Agence Nationale pour la gestion des Déchets Radioactifs (ANDRA) ou de l'Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire (IRSN).

Le concept de stockage de déchets nucléaires en formation géologique profonde repose sur la mise en place d'une succession de barrières : le colis et éventuellement son surconteneur, la barrière ouvragée et la roche hôte. Les radioéléments sont initialement confinés au sein de la première barrière (colis, surconteneur) mais lorsque le colis est attaqué par l'eau du site de stockage, des radioéléments peuvent s'en échapper. Le rôle de la barrière ouvragée, puis de la roche hôte, est de retarder la migration des radioéléments et ainsi de limiter leur flux vers l'hydrosphère et la biosphère. L'enjeu sociétal majeur du stockage en formation géologique profonde consiste à prendre en compte de très grandes échelles de temps (plusieurs dizaines, voire centaines de milliers d'années) et d'espace (plusieurs km²). La modélisation et les simulations numériques associées sont des outils essentiels pour comprendre les comportements géochimiques et les mécanismes de transport dans ces systèmes complexes et pour prédire leur évolution future. Les travaux que j'ai réalisés ou auxquels j'ai participé dans ce cadre sont allés de l'échelle du colis, où il est essentiel de modéliser correctement le couplage entre la géochimie et le transport, à l'échelle du site.

À l'échelle du colis, le modèle empirique de dégradation par lixiviation des pâtes cimentaires utilisées pour certains colis de déchets nucléaires repose sur l'hypothèse que le phénomène principal de l'altération est la décalcification, pilotée par la concentration de calcium en solution. Ce modèle se traduit par une équation de transport des ions calcium fortement non linéaire, les paramètres de transport (porosité et coefficient de diffusion effective) ainsi que les termes de dissolution/précipitation étant des fonctions empiriques de la concentration en calcium. Dans le cadre du projet sur le Comportement à Long Terme des colis de Béton (projet CLTB), j'ai résolu les différentes équations du modèle en utilisant un schéma numérique spatial de type éléments finis mixtes hybrides (EFMH) et une méthode de Picard pour les non linéarités, à l'aide de la plate-forme numérique Cast3M développée à la DEN. Dans une seconde étape, j'ai couplé ce modèle de dégradation des colis cimentaires à un modèle de rétention des radionucléides, avec prise en compte de la décroissance radioactive. Dans une troisième et dernière étape, j'ai égale-

ment modélisé la carbonatation atmosphérique (Bary et Mügler, 2006). Cet outil numérique a été appliqué à des colis de déchets cimentaires fracturés pour analyser les seuils de profondeur de fracturation impliquant le relâchement de radionucléides (Bejaoui *et al.*, 2007).

Cette expérience de modélisation de la dégradation des colis de déchets m'a permis de participer activement au développement et à la validation d'un module de couplage géochimie-transport dans la plate-forme numérique ALLIANCES, développée conjointement par le CEA, l'ANDRA et EdF. J'ai présenté ce travail à la Commission Nationale d'Évaluation du 10 juin 2003 et la plate-forme ALLIANCES a reçu en 2005 un prix décerné par la Société Française d'Énergie Nucléaire (grand prix SFEN). Ce code de transport réactif n'est pas spécifique aux calculs de sûreté des sites de stockage et d'entreposage de déchets nucléaires. Par exemple, en l'appliquant au cas d'un ancien site du CEA pollué par de l'uranium, nous avons montré que les variations saisonnières des concentrations en uranium dissous mesurées *in situ* étaient liées à la variation des conditions redox du sol plus ou moins propices à la formation de complexes d'uranium (Montarnal *et al.*, 2007).

Après la résolution de problèmes à l'échelle du colis, je me suis intéressée à ce qui se passait à l'échelle du site de stockage. Dans de nombreux pays dont la France, les roches hôtes présentes pour le stockage des déchets nucléaires sont des roches argileuses. Pour pouvoir prévoir leur réponse à la présence d'un stockage, il est nécessaire de caractériser les propriétés physiques et chimiques de ce type de roches, telles que la perméabilité, la porosité et la conductivité thermique. Cet inventaire est fait dans le cadre de projets par l'IRSN sur le site de Tournemire (Aveyron) et par l'ANDRA sur les sites de Mont Terri (Suisse) et de Bure (Meuse-Haute Marne). En m'appuyant sur ces résultats expérimentaux, j'ai réalisé la modélisation 3D du creusement du tunnel et des galeries de la station expérimentale de Tournemire de l'IRSN. La simulation numérique a clairement montré la décompression hydraulique du site naturel argileux et elle a de plus permis de définir, en parfaite synergie avec les équipes sur le terrain, les zones géographiques les plus pertinentes pour les campagnes ultérieures de mesures de charges hydrauliques (Mügler *et al.*, 2004a). J'ai également réalisé à l'aide du code Cast3M la modélisation 3D détaillée de l'expérience HE-C de diffusion thermique réalisée par l'ANDRA sur le site suisse du Mont Terri. Cette expérience a consisté à mesurer en continu pendant plusieurs mois l'élévation de la température en plusieurs points autour d'un élément chauffant introduit dans le massif argileux. L'utilisation combinée de techniques de simulations inverses et de réseaux de neurones (logiciels KALIF et NEMO développés au CEA/DEN) a permis de déterminer les conductivités thermiques longitudinales et transversales du milieu argileux (Mügler *et al.*, 2006; Cartalade *et al.*, 2007).

Finalement, dans le cadre du projet Haute Activité et Vie Longue de la DEN (projet HAVL), j'ai réalisé la simulation du fonctionnement global d'un site de stockage en m'intéressant au relâchement d'iode 129. Ce travail a permis de confronter le code Cast3M à une configuration réaliste 3D de calcul de transport de radioéléments, à la fois autour d'un ouvrage (une alvéole de stockage) mais aussi dans le milieu géologique constitué de différentes couches, elles-mêmes constituées de zones aux propriétés hydrauliques et de transport à très fort contraste spatial (plusieurs ordres de grandeur). Les problèmes rencontrés ont mis en évidence certaines limites du code Cast3M (problèmes de monotonie, de temps calculs) et ont servi de base pour le développement de nouveaux schémas numériques comme un schéma de convection décentré de type volumes finis pour mieux décrire les écoulements dans les couches géologiques les plus perméables. Les résultats ont permis de participer avec succès aux benchmarks internationaux organisés par le Groupement de Recherche en Modélisations Mathématiques et Simulations Numériques liées aux problèmes de gestion des déchets nucléaires (benchmarks COUPLEX du GdR Momas).

Modélisation en hydrologie et hydrogéologie (CEA/DSM, depuis 2004)

Ayant mesuré l'importance de recherches amont pour mieux comprendre les milieux naturels et souhaitant valoriser mon expertise en modélisation du couplage géochimie-transport dans le domaine des géosciences, j'ai rejoint le Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE) en novembre 2004. Mon travail de recherche s'est orienté suivant trois directions (i) la séquestration géologique du CO_2 , (ii) le couplage entre la géochimie et le transport et son application à des systèmes géochimiques naturels et (iii) les écoulements de surface.

Le premier axe concerne la séquestration du CO_2 , travail initié par Emmanuel Mouche (CEA/DSM). Le problème d'écoulements diphasiques de fluides soumis aux forces de gravité dans un milieu fortement hétérogène est un domaine novateur, de grande importance, notamment dans la problématique du stockage de CO_2 en couches géologiques profondes, domaine pour lequel nous avons été encouragés par l'ANR à apporter nos compétences. L'approche théorique du problème, déjà complexe dans le cas d'une répartition géométrique déterministe des hétérogénéités, devient particulièrement ardue quand cette répartition est aléatoire. Dans le cadre du projet « Minéralisation du CO_2 » de l'Action Concertée Incitative (ACI) « Énergie », puis du projet financé par l'Agence Nationale de la Recherche (ANR) « Hétérogénéités- CO_2 » mené conjointement avec le Bureau de Recherches Géologiques et Minières (BRGM), le CNRS, Schlumberger et l'Institut Français du Pétrole (IFP), j'ai développé à l'aide de Cast3M un code diphasique reposant sur un schéma de convection décentré pour simuler l'injection et la migration d'une bulle de CO_2 dans un aquifère hétérogène. Cet outil, en parallèle avec une étude théorique menée par Emmanuel Mouche et Mohamed Hayek (post-doctorant), a permis de simuler la propagation d'une bulle de CO_2 dans un aquifère hétérogène. On a ainsi pu proposer une explication pour la stratification du CO_2 observée après injection dans l'aquifère salin hétérogène du site de Sleipner en Mer du Nord (Hayek *et al.*, 2009). Nous nous sommes ensuite intéressés au problème de la mise à l'échelle d'un modèle de transport de bulle de CO_2 à travers un milieu stratifié, en déterminant les paramètres effectifs de transport du système. Nous avons montré que, lorsque la capillarité est négligée, la fonction de flux mise à l'échelle devient discontinue par morceaux (Mouche *et al.*, 2010).

Le second axe concerne la modélisation de systèmes géochimiques naturels. Que ce soit à la DAM ou à la DEN, j'ai participé au développement, à la validation, puis à la valorisation de différents codes de simulations numériques. Ces codes ont ensuite été mis à disposition d'utilisateurs. C'est dans cet esprit que, dès mon arrivée au LSCE, j'ai présenté au cours d'un séminaire interne les possibilités offertes par le module de couplage géochimie-transport du code ALLIANCES. Avec l'accord de la DEN et de l'ANDRA, j'ai ensuite installé le code sur le réseau informatique du LSCE.

L'utilisation du code ALLIANCES pour l'étude de systèmes géochimiques naturels m'a permis d'initier en collaboration avec des collègues du LSCE un projet de recherche concernant le recyclage de la matière organique dans les sédiments en milieu côtier. Les cycles biogéochimiques naturels du carbone, de l'azote et de l'oxygène dans les sédiments en milieu côtier sont fortement perturbés par l'augmentation des concentrations en matières organiques, sulfates et nitrates due à l'activité anthropique. Dans le but de mieux comprendre et quantifier la dynamique et la variabilité spatiale et temporelle de ces cycles observées expérimentalement, j'ai initié un projet de modélisation et de simulation d'expériences réalisées au LSCE et qui a été financé par INSU/EC2CO en 2007 et en 2008. Après la phase assez délicate d'adaptation du code ALLIANCES à la problématique de la dégradation de la matière organique, j'ai pu simu-

ler des expériences de laboratoire et montrer l'importance du rôle des hétérogénéités (présence d'agrégats ou de terriers) sur la dégradation de la matière organique (Mügler *et al.*, 2012).

En collaboration avec des collègues du LSCE et de l'IFREMER, je me suis ensuite intéressée aux systèmes complexes que constituent les circulations hydrothermales au niveau des dorsales océaniques. L'IFREMER a en effet mis en évidence l'existence d'un flux important d'hydrogène naturel issu des événements hydrothermaux le long de la dorsale médio-atlantique. Cette production naturelle constitue une ressource énergétique potentiellement inépuisable qu'il convient d'étudier et de quantifier. Dans le cadre d'une collaboration entre le LSCE et le département Géosciences Marines de l'IFREMER, j'ai proposé un programme de recherche dont le but principal est de comprendre, grâce aux données de terrain et à la modélisation, les différents processus physiques et géochimiques conduisant à cette production naturelle d'hydrogène et d'en quantifier les flux. La thèse de Florian Perez s'inscrit dans cette thématique. Nous avons dans un premier temps développé dans le cadre de la plate-forme numérique Cast3M, un module de couplage entre la thermique et l'hydrogéologie. Cet outil est actuellement utilisé pour déterminer la meilleure configuration géométrique et physique conduisant aux valeurs de température et de flux mesurées sur le site de Rainbow. L'utilisation de la plate-forme ALLIANCES s'est avérée vaine car elle ne permet pas de simuler les réactions et le transport des solutions solides qui sont à la source de la production d'hydrogène. Il va donc s'agir de coupler dans Cast3M le module thermo-hydraulique déjà construit avec la géochimie pour interpréter les importants flux d'hydrogène mesurés *in situ*. Les outils ainsi développés vont permettre de mieux comprendre les phénomènes mis en jeu au niveau de la dorsale. Ils constituent également des outils précieux pour déterminer les plages de validité de certains modèles comme par exemple l'approximation d'Oberbeck-Boussinesq.

Dans les prochaines années, j'aimerais également m'intéresser à la caractérisation hydrologique et géochimique de l'infiltration en milieu karstique. Les spéléothèmes (stalagmites et stalagmites) constituent des archives très intéressantes des climats passés, leur formation dans les cavités karstiques étant le résultat de multiples processus biogéochimiques, thermodynamiques et hydrodynamiques. Les espèces chimiques entrant dans leur composition résultent en effet à la fois de la migration plus ou moins rapide d'eaux souterraines dans les milieux poreux vers ces cavités mais sont aussi le résultat de nombreuses réactions biogéochimiques liées, par exemple, à l'activité biologique dans les sols sus-jacents. Avec d'autres collègues du LSCE, nous nous proposons de bâtir un modèle conceptuel de fonctionnement hydrologique et géochimique du système karstique conduisant à la formation de spéléothèmes dans la grotte de Villars (Dordogne), grotte instrumentée par le LSCE. Cette modélisation permettra de progresser dans l'analyse des signaux géochimiques en termes de variations climatiques et hydrologiques.

Le troisième et dernier axe de recherche concerne la modélisation et la simulation des écoulements de surface et de subsurface. La modélisation de l'approximation des équations de Saint Venant a permis de tester différentes lois de ruissellement (Manning, Darcy-Weisbach, Lawrence) pour expliquer les mesures de vitesse ainsi que les courbes de restitution de traceurs injectés dans la lame d'eau dans des expériences réalisées par l'Institut de Recherche pour le Développement (IRD) sur une parcelle à Thiès, au Sénégal. La confrontation entre les résultats des simulations et les résultats expérimentaux a permis de montrer les limites des modèles de Darcy-Weisbach et de Manning, et la nécessité de considérer un coefficient de rugosité variable en fonction de la hauteur de la lame d'eau (Mügler *et al.*, 2011).

Une modélisation couplée des écoulements de surface et subsurface a été récemment développée au LSCE (Weill, 2007; Weill *et al.*, 2009). L'originalité de l'approche repose sur une description unifiée de l'écoulement en subsurface, zones saturée et non saturée, et en surface : une même équation parabolique non linéaire, appelée équation de Richards généralisée, décrit

les écoulements dans les différents compartiments hydrologiques. Ce modèle a été implémenté dans Cast3M et a donné des résultats encourageants sur des configurations académiques (Weill, 2007; Weill *et al.*, 2009). Par contre, il s'est avéré très délicat d'utilisation, voire inadapté dans sa configuration actuelle, lors de la simulation de configurations plus complexes. Une amélioration des performances du schéma numérique doit donc être envisagée. Je prévois de réaliser ce travail de recherche en collaboration avec d'autres laboratoires français intéressés par le développement de modèles couplés surface-subsurface pour la modélisation hydrologique : le Laboratoire d'Hydrologie et de Géochimie de Strasbourg (LHyGeS) et le Laboratoire d'étude des Interactions Sol-Agrosystème-Hydrosystème (LISAH) de Montpellier. C'est dans cette optique de collaboration que nous avons construit un projet, (appelé COSMOS pour COupled Surface-subsurface MOdelS), dont l'objectif est de développer et tester une nouvelle génération de modèles hydrologiques distribués et intégrés à bases physiques, reposant sur un couplage intégral des flux de surface et souterrains. Dans le cadre de ce projet, nous envisageons (i) de développer trois versions originales de modèles couplés (une par partenaire du projet) reposant sur des approches numériques innovantes ; (ii) de construire des benchmarks synthétiques ou expérimentaux complétant ceux disponibles dans la littérature et couvrant une large gamme de processus de genèse du ruissellement pour différentes situations géométriques, pédologiques et climatiques ; (iii) de développer de nouvelles approches d'inter-comparaison des modèles couplés ; (iv) d'appliquer les versions de ces modèles sur des jeux de données d'un bassin versant réel issu du SOERE RBV-Réseau des Bassins Versants.

À terme, dans le cadre d'une collaboration avec l'IRD, nous envisageons d'appliquer de tels modèles aux bassins versants du sud-est asiatique. Le but d'une telle modélisation est d'améliorer les méthodes de prédiction de l'influence du changement climatique et/ou de l'usage des terres sur l'érosion de ces bassins versants et donc d'apprécier la vulnérabilité des terres agricoles mais également des ressources en eau de cette région. Le travail de François Moussu (post-doctorant) s'inscrit dans cette thématique. Nous testons actuellement différents modèles conceptuels et différentes bases de données météorologiques pour modéliser les écoulements dans un petit bassin versant au Laos, celui de Houay Pano (0,6 km²), et dans un grand bassin versant limitrophe, celui de la Nam Khan (6000 km²).

2

Curriculum Vitae

Claude MÜGLER

Née le 29 décembre 1965,
Ingénieur-Chercheur au Commissariat à l'Énergie Atomique (CEA) depuis 1991.

Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement,
UMR 8212 CEA-CNRS-UVSQ, Centre de Saclay, Orme des Merisiers
91191 Gif-sur-Yvette Cedex
Tél : 01.69.08.93.63
Mél : claudemugler@cea.fr

Diplômes et titres universitaires

- 1988-1991 Thèse de doctorat en Physique des Solides de l'Université d'Orsay-Paris XI.
Mention très honorable avec félicitations du jury.
- 1987-1988 D.E.A. de Physique de la Matière et du Rayonnement de l'Université des Sciences et de la Technologie de Grenoble.
- 1985-1988 Diplôme d'ingénieur de l'École Nationale Supérieure d'Ingénieurs Électriciens de Grenoble (ENSIEG), Institut National Polytechnique de Grenoble (INPG). Option Génie Physique, Spécialité Matériaux.

Domaines de compétences

- *Modélisation en Mécanique des Fluides :*

Modélisation en hydrologie et hydrogéologie. Couplage avec la thermique. Couplage entre la géochimie et le transport.
Modélisation stochastique de milieux hétérogènes. Techniques de changements d'échelles.
Instabilités hydrodynamiques. Chaos déterministe. Modélisation de la turbulence.

- *Développement de codes de simulations numériques :*

Développement des codes d'études CADMÉE et TRICLADE de simulation numérique d'écoulements de mélanges de fluides compressibles visqueux.

Développement dans Cast3M d'un modèle diphasique incompressible et d'un modèle thermo-hydraulique. Validation de ces codes.

Parcours professionnel

- depuis 2004 **Direction des Sciences de la Matière, CEA Saclay,**
Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement,
 Modélisation et simulation numérique en hydrologie et hydrogéologie, transfert d'eau et de matière sur les surfaces continentales et en milieu géologique. Modélisation de systèmes géochimiques naturels.
- 2000–2004 **Direction de l'Énergie Nucléaire, CEA Saclay,**
 Modélisation et simulation numérique de l'écoulement et du transport de radioéléments en milieu poreux. Étude de sites naturels argileux : laboratoires souterrains de Tournemire et du Mont Terri, site de Bure. Étude de milieux ouvragés : dégradation du béton par lixiviation. Couplage géochimie-transport.
- 1991–2000 **Direction des Applications Militaires, CEA Bruyères-le-Châtel,**
 Développement d'un code de simulation numérique d'écoulements compressibles de fluides visqueux. Simulation et modélisation d'expériences d'instabilités hydrodynamiques.
- 1988–1991 **Direction des Sciences de la Matière, CEA Saclay,**
 Étude par diffraction neutronique et observations optiques d'écoulements chaotiques dans les cristaux liquides. Thèse dirigée par G. Pépy et M. Lambert.

Participation à des projets

- 2010–2012 **Projet GIS « PASTEK »** : Modélisation à l'aide de modèles distribués et de modèles conceptuels de l'hydrologie de bassins versants au Laos.
 Partenaires : BIOEMCO (coordinateur : C. Valentin), LSCE et SISYPHE. Rôle : Modélisations Cast3M (implication : 20%).
- 2008–2010 **Projet EC2CO « ONDINE »** : Impact des changements d'usages des terres sur les processus de genèse des crues - Étude combinant bassins versants réels et virtuels.
 Partenaires : SOLUTIONS (coordinateur : O. Ribolzi), BIOEMCO, LSCE, LTHE et SISYPHE. Rôle : Mise en place du modèle numérique et optimisation des schémas numériques (implication : 20%).
- 2007–2009 **Projet ANR « HÉTÉROGÉNÉITÉS-CO₂ »** : Évaluation de l'incidence des hétérogénéités physiques et minéralogiques sur les processus physico-chimiques associés au stockage du CO₂ dans une formation aquifère.
 Partenaires : BRGM (coordinateur : A. Sbai), ICMCB-CNRS, IFP, LSCE et Schlumberger. Rôle : Modélisation stochastique de la migration de CO₂ dans un aquifère hétérogène. Mise au point de techniques de changements d'échelles, responsable de 2 tâches (implication : 30%).
- 2007–2008 **Projet EC2CO** : Recyclage de la matière organique dans les sédiments en milieu côtier : modélisation 2D.
 Partenaires : LSCE, CEA/DEN, LMGM-CNRS et Université de Goteborg (Suède) ;
 Rôle : Modélisation ALLIANCES et coordination du projet (implication : 30%).

-
- 2004–2007 **Projet « Minéralisation du CO₂ » de l'ACI Énergie** : Séquestration de CO₂ à très long terme par minéralisation solide dans les réservoirs gréseux et silicatés.
Partenaires : ICMCB-CNRS (coordinateur : D. Bernard), IPGP, LSCE, LGIT, LMTG et TPHY-CNRS. Rôle : Modélisation de la migration de CO₂ dans un aquifère et approche stochastique (implication : 50%).
- 2003 **Projet « HE-C » du Mont Terri** : Mesures *in situ* des propriétés thermiques et des mécanismes de désaturation de l'argile à Opalinus.
Partenaires : ANDRA (coordinateur : Y. Wileveau) et CEA. Rôle : Modélisation 3D d'une expérience de diffusion thermique. Détermination des conductivités thermiques du milieu naturel par méthode inverse et réseaux de neurones (implication : 30%).
- 2002–2004 **Projet « ALLIANCES »** : Développement d'une plate-forme numérique pour simuler les sites de stockage de déchets nucléaires.
Partenaires : CEA et ANDRA (coordinateurs : A. Bengaouer et L. Loth). Rôle : Participation à la qualification de la plate-forme numérique ALLIANCES. Présentation à la CNE du 10/06/2003. Cours de formation à l'utilisation du code (du 4 au 6/11/2003) (implication : 40%).
- 2001–2002 **Projet Haute Activité et Vie Longue (HAVL) de la DEN** : Étude du comportement à long terme des déchets nucléaires.
Rôle : Modélisation 3D du site de Bure avec Cast3M. Calculs du transport de radionucléides appliqués à un scénario de sûreté du site de Bure (implication : 30%).
- 2000–2004 **Projet Comportement à Long Terme des colis de Béton (CLTB) de la DEN**.
Rôle : Intégration du modèle opérationnel de dégradation des colis de béton sous Cast3M. Simulation du transport des radionucléides. Intégration du modèle de carbonatation atmosphérique des bétons sous Cast3M. (implication : 30%).
- 2000–2001 **Projet « TOURNEMIRE »** : Caractérisation des propriétés hydrauliques, thermiques et de transport de la roche argileuse.
Partenaires : IRSN (coordinateur : J. Cabrera) et CEA. Rôle : Modélisation 3D de l'impact hydraulique du creusement de galeries sur le site (implication : 50%).
- 1991–2000 **Projets « CADMÉE » et « TRICLADE » de la DAM**.
Rôle : Développement et qualification de codes 2D et 3D de simulation numérique directe. Interprétation d'expériences en tube à choc. Modélisation d'instabilités hydrodynamiques. Responsable du projet (implication : 100%).

Expertise, Review, Distinctions

- Reviewer pour plusieurs revues et pour l'ANR.
- Grand Prix SFEN pour le projet ALLIANCES en 2005 : Participation au projet de plate-forme logicielle ALLIANCES pour la modélisation et la simulation du stockage de déchets radioactifs.
- Organisation des Journées d'Études sur les Milieux Poreux (JEMP) à Orsay en 2009.

Participation à un jury de thèse

Ingrid GALAMETZ *Visualisation et mesure de masse volumique dans un mélange gazeux en tube à choc*. Thèse de Mécanique de l'Université des Sciences et Technologies de Lille, soutenue le 2 décembre 1994.

Expériences d'encadrement

Co-encadrement de doctorants :

- Florian PEREZ, *Production naturelle d'hydrogène par la serpentinisation des roches mantelliques : apport de la modélisation à la compréhension des processus physiques et géochimiques mis en jeu et quantification des flux.*
Thèse co-financée CEA-IFREMER. Directeur de thèse : Jean Luc Charlou (IFREMER). 60% de co-encadrement avec Philippe Jean-Baptiste (LSCE). Soutenance prévue fin 2012.
F. Perez, C. Mügler, P. Jean-Baptiste, J.L. Charlou. Coupled modeling of thermics and hydrology with the Cast3M code : Application to the Rainbow hydrothermal field (Mid-Atlantic-Ridge, 36°14'N). Soumis à Computational Geosciences.
- Jérémy PATIN, *Approches de modélisation pour la partition ruissellement infiltration à différentes échelles spatiales et temporelles. Cas de la parcelle de Thiès (Sénégal) et du bassin versant de Houay Pano (Laos).*
Directeurs de thèse : Michel Buès (LAEGO, Nancy) et Emmanuel Mouche (LSCE). 20% de co-encadrement. Thèse INPL (Nancy) soutenue le 6 juin 2011.
C. Mügler, O. Planchon, J. Patin, S. Weill, N. Silvera, P. Richard, E. Mouche. Comparison of roughness models to simulate overland flow and tracer transport experiments under simulated rainfall at plot scale, Journal of Hydrology 402, 25-40 (2011).

Co-encadrement de postdoctorants :

- François MOUSSU, *Modélisation hydrologique de bassins versants au Nord Laos (2012).*
20% de co-encadrement avec Emmanuel Mouche (LSCE).
- Mohamed HAYEK, *Modélisation de la séquestration du CO₂ (2008-2010).*
30% de co-encadrement avec Emmanuel Mouche (LSCE).

Encadrement de scientifiques du contingent :

- 1997-1998 Cyril LE GAL, *Étude numérique de couplage de modes dans une instabilité de Richtmyer-Meshkov*, rapport DO 113 émis le 13/01/1998 à CEA/DRIF/DCSA/SSET.
- 1995-1996 Frédéric AGUILE, *Développement d'un outil de post-traitement permettant l'étude spectrale de l'instabilité de Richtmyer-Meshkov*, rapport DO 41/97 émis le 21/04/1997 à CEA/DRIF/DCSA/SSET.
- 1993-1994 Pierre LURIN, *Simulation numérique directe de mélanges d'écoulements compressibles visqueux : simulations d'expériences en tube à choc*, rapport DO 431/94 émis le 24/11/1994 à DAM/CEL-V/D.ET/S.PI.
- 1992-1993 Marc VANDENBOOMGAERDE, *Contribution à l'interprétation des expériences en tube à choc*, rapport DO 367/93 émis le 20/12/1993 à DAM/CEL-V/D.ET/S.PI.

Encadrement de stagiaires :

Avril-sept. 2012	Anne MAISONNEUVE, Master 2 professionnel d'Ingénieries Mathématiques (UFR Sciences, Nantes), <i>Modélisation de systèmes naturels à l'aide d'un code couplant la thermique et l'hydrogéologie.</i>
Fév.-juil. 2009	Florian PEREZ, 3 ^{ème} année de l'École Nationale du Génie de l'Eau et de l'Environnement de Strasbourg (ENGEES), <i>Modélisation bidimensionnelle de la circulation hydrothermale au niveau de la dorsale lente médio-atlantique.</i>
Juin-août 2008	Florian DUJARDIN, 2 ^{ème} année de l'École Centrale de Lyon, <i>Traitement des données expérimentales et premières modélisations du comportement thermique de la grotte de Villars.</i>
Juin 2008	Rémy REBOUL, Master 1 Université Paris Sud 11, <i>Étude du partage ruissellement/infiltration à l'échelle de la parcelle dans le bassin versant de Houay Pano.</i>
Juin 2007	Jérémy LONGUET, Licence de physique de l'Université de Versailles-Saint Quentin, <i>Détermination des paramètres chimiques, hydrologiques et géologiques pour l'étude de l'évolution de la composition chimique des eaux de formation des spéléothèmes.</i>
Mars-juil. 2007	Matthias STAUB, 3 ^{ème} année de l'École Nationale du Génie de l'Eau et de l'Environnement de Strasbourg (ENGEES), <i>Amélioration de la compréhension des phénomènes hydrologiques dans un bassin versant du Sud-Est asiatique sous régime de mousson.</i>
Mars-juil. 2006	Hélène EHRSAM, 3 ^{ème} année de l'École des Mines de Nancy, <i>Modélisation de la séquestration du CO₂ dans des aquifères salins profonds.</i>
Juil.-nov. 2005	Mamoudou CAMARA, 2 ^{ème} année du Master Géosciences et Environnement de l'Université d'Orléans, <i>Modélisation couplée chimie-transport de la dynamique de l'oxygène dans les sédiments de l'étang de Thau.</i>
Juil.-sept. 2004	Julie COLIN, 3 ^{ème} année de l'École Nationale Supérieure des Industries Chimiques de Nancy, <i>Modélisation et simulation de la migration de l'uranium en milieu naturel.</i>
Juin-oct. 2001	Ricardo SALGADO, 3 ^{ème} année de l'École Centrale de Nantes, <i>Validation de la plate-forme Castem 2000 du LECBA (Simulation de la dégradation de bétons).</i>
Mars-août 2001	Valéry CHARTIER, DEA de Mécanique de l'Université Pierre et Marie Curie, <i>Simulation numérique de la dégradation de colis de déchets en verre.</i>

3

Liste des publications

Publications de rang A

1. P. Mariani, C. Mazabrard-Mügler, A. Garbesi, G. P. Spada (1989), A study of the structure of the Lyomesophases formed by the Dinucleoside Phosphate d(GpG). An approach by X-ray diffraction and optical microscopy, *Journal of the American Chemical Society* 111, 6369-6373.
2. M. Vandenboomgaerde, C. Mügler, S. Gauthier (1998), Impulsive model for the Richtmyer-Meshkov instability, *Physical Review E* 58, 1874.
3. C. Mügler, S. Gauthier (1998), Numerical simulations of single-mode Richtmyer-Meshkov experiments, *Physical Review E* 58, 4548.
4. C. Mügler, S. Gauthier (2000), Two-dimensional Navier-Stokes simulations of gaseous mixtures induced by Richtmyer-Meshkov instability, *Physics of Fluids* 12, 1783.
5. M. Vandenboomgaerde, S. Gauthier (2002), C. Mügler, Nonlinear regime of a multimode Richtmyer-Meshkov instability : a simplified perturbation theory, *Physics of Fluids* 14, 1111.
6. C. Mügler, M. Filippi, P. Montarnal, Y. Wileveau, J.-M. Martinez (2006), Determination of the thermal conductivity of Opalinus clay via simulations of experiments performed at the Mont Terri underground laboratory, *Journal of Applied Geophysics* 58, 112.
7. P. Montarnal, C. Mügler, J. Colin, M. Descostes (2007), Validation and use of a reactive transport code in porous media, *Physics and Chemistry of the Earth* 32, 507-517.
8. A. Cartalade, P. Montarnal, M. Filippi, C. Mügler, M. Lamoureux, J.-M. Martinez, F. Clément, Y. Wileveau, D. Coelho, E. Tevissen (2007), An overview of inverse modeling methods applied to the thermal and diffusion experiments at Mont Terri rock laboratory, *Physics and Chemistry of the Earth* 32, 491-506.
9. S. Bejaoui, J. Sercombe, C. Mügler, H. Peycelon (2007), Modelling of radionuclide release from a concrete container, *Transport in Porous Media* 69, 89-107.
10. M. Hayek, E. Mouche, C. Mügler (2009), Modeling vertical stratification of CO₂ injected into a deep layered aquifer, *Advances in Water Resources* 32, 450-462.
11. E. Mouche, M. Hayek, C. Mügler (2010), Upscaling of CO₂ vertical migration through a periodic layered porous medium : the capillary-free and capillary-dominant cases, *Advances in Water Resources* 33, 1164-1175.

12. C. Mügler, O. Planchon, J. Patin, S. Weill, N. Silvera, P. Richard, E. Mouche (2011), Comparison of roughness models to simulate overland flow and tracer transport experiments under simulated rainfall at plot scale, *Journal of Hydrology* 402, 25-40.
13. C. Mügler, C. Rabouille, B. Bombled, P. Montarnal (2012), Impact of spatial heterogeneities on oxygen consumption in sediments : experimental observations and 2D numerical modeling. *Journal of Geochemical Exploration* 112, 76-83.

Articles soumis

1. M. Hayek, C. Mügler, E. Mouche. Effect of wettability heterogeneity on CO₂ vertical migration through a 1D periodic layered porous medium. Soumis à *Transport in Porous Media*.
2. F. Perez, C. Mügler, P. Jean-Baptiste, J.L. Charlou, Coupled modeling of thermics and hydrology with the Cast3M code : Application to the Rainbow hydrothermal field (Mid-Atlantic-Ridge, 36°14'N). Soumis à *Computational Geosciences*.

Autres publications dans les revues internationales avec comité de lecture

1. C. Mügler, A. Genty, J. Cabrera (2004), Numerical modelling of hydraulic decompression due to the excavation of tunnel and drifts at the Tournemire underground laboratory, *Geotechnical and Geological Engineering* 22, 525.
2. C. Mügler, P. Montarnal, A. Dimier, L. Trotignon (2004), Reactive transport modelling on the Alliances software platform, *Developments in water science* 55, part 2, 1103-1115.
3. B. Bary, C. Mügler (2006), Simplified modelling and numerical simulations of concrete carbonation in unsaturated conditions, *Revue européenne de génie civil* 10, n°9, 1049.

Publications dans des revues de « vulgarisation »

1. C. Mügler (1995), Simulation de l'instabilité de Richtmyer-Meshkov, *Chocs* 14, 44.
2. J.L. Charlou, J.-P. Donval, F. Brunet, M. Munoz, O. Vidal, F. Perez, C. Mügler, P. Jean-Baptiste (2011), Hydrogène : produit naturel de la Terre. Nouvelles découvertes en domaine océanique. Revue de la Société de l'Industrie Minérale (SIM), hors-série *Mines & Carrières* 185, 58-69.

Conférences nationales ou internationales avec actes et comité de lecture

1. C. Mügler, B. Meltz, M. Vandenboomgaerde, S. Gauthier, S. Aubert, L. Hallo, P. Ferrand, M. Buffat (1995), Numerical simulations of compressible viscous flows, 19th International Symposium on Shock Waves, édité par H. Grönig, Springer-Verlag.
2. C. Mügler, M. Vandenboomgaerde, S. Gauthier (1996), Richtmyer-Meshkov instability in inviscid and viscous flows, 5th International Workshop on the Physics of Compressible Turbulent Mixing, édité par R. Young, J. Glimm et B. Boston, New York.
3. C. Mügler, L. Hallo, S. Gauthier, S. Aubert (1996), Validation of an ALE Godunov algorithm for solutions of the two-species Navier-Stokes equations, AIAA Paper 96-2068, 27th AIAA Fluid Dynamics Conference, New Orleans, LA.

4. M. Vandenboomgaerde, C. Mügler, S. Gauthier (1997), Richtmyer-Meshkov instability : the impulsive model revisited, 6th International Workshop on the Physics of Compressible Turbulent Mixing, Marseille, édité par G. Jourdan et L. Houas.
5. C. Mügler, S. Gauthier (1997), 2D Navier-Stokes simulations of Richtmyer-Meshkov instability in shock tube, 6th International Workshop on the Physics of Compressible Turbulent Mixing, Marseille, édité par G. Jourdan et L. Houas.
6. C. Mügler, S. Gauthier (1999), 2D Navier-Stokes simulations of Richtmyer-Meshkov instability in shock tube, 7th International Workshop on the Physics of Compressible Turbulent Mixing, St-Petersbourg.
7. M. Vandenboomgaerde, C. Mügler, S. Gauthier (1999), Richtmyer-Meshkov instability : the impulsive model revisited, 7th International Workshop on the Physics of Compressible Turbulent Mixing, St-Petersbourg.
8. S. Béjaoui, J. Sercombe, C. Mügler, H. Peycelon (2004), Modelling of the radionuclides release from a concrete container : effects of leaching and cracking, CSNI/RILEM Workshop on Use and Performance of Concrete in NPP Fuel Cycle Facilities, Madrid, 15-16 mars 2004.
9. C. Mügler, E. Mouche (2006), Stochastic modelling of CO₂ migration in a heterogeneous aquifer, 8th International Conference on Greenhouse Gas Control Technologies, Trondheim, 19-22 juin 2006.
10. Y. Le Gallo, L. Trenty, V. Lagneau, P. Audigane, O. Bildstein, C. Mügler, E. Mouche (2007), Recent development for long term modelling of CO₂ storage, French-German symposium on geological storage of CO₂, Potsdam, 21-22 juin 2007, published in Geotechnologie Science Report.

Conférences nationales ou internationales avec résumés

1. C. Mügler, S. Gauthier (1998), Simulations numériques bidimensionnelles de l'instabilité de Richtmyer-Meshkov en tube à choc, 10^{ème} séminaire sur les Écoulements de Fluides Compressibles, Saclay, janvier 1998.
2. C. Mügler, P. Montarnal, A. Dimier (2003), Validation of a coupled reactive transport code in porous media, European Geophysical Society General Assembly, Nice, 6-11 avril 2003.
3. A. Dimier, P. Montarnal, C. Mügler (2003), Couplage chimie-transport en milieux poreux dans le cadre de la plate-forme Alliances, 15^{ème} Séminaire de Mécanique des Fluides Numérique, Paris, 28-30 janvier 2003.
4. C. Mügler, P. Montarnal, A. Dimier (2003), Validation d'un code de transport réactif en milieu poreux, 6^{èmes} Journées d'Études sur les Milieux Poreux, Toulouse, 12-14 novembre 2003.
5. C. Mügler, M. Filippi, P. Montarnal, J.-M. Martinez, Y. Wileveau (2004), Determination of the thermal conductivity of the Opalinus clay via inverse simulation of experiments performed at the Mont Terri underground laboratory, Asia Oceania Geosciences Society (AOGS) 1st annual meeting, Singapour, 5-9 juillet 2004.
6. P. Montarnal, A. Dimier, C. Mügler, J. Colin, M. Descostes (2005), Validation and use of a reactive transport code in porous media. International Meeting Clays in Natural and Engineered Barriers for Radioactive Waste Confinement, Tours, 14-18 mars 2005.

7. A. Cartalade, P. Montarnal, M. Filippi, C. Mugler, M. Lamoureux, J.-M. Martinez, F. Clement, Y. Wileveau, D. Coelho, E. Tevissen (2005). An overview of inverse modeling methods applied to the thermal and diffusion experiments at the Mont Terri underground rock laboratory. International Meeting Clays in Natural and Engineered Barriers for Radioactive Waste Confinement, Tours, 14-18 mars 2005.
8. M. Descostes, C. Mugler, P. Montarnal, A. Dimier, J. Colin (2005). Modelling Uranium migration in different redox conditions (with ALLIANCES reactive-transport module). MIGRATION'05, Avignon, 18-23 septembre 2005.
9. C. Mugler, E. Mouche (2005), Modelisation de la sequestration du CO₂ dans des couches geologiques profondes, 7^{emes} Journees d'tudes sur les Milieux Poreux, Bordeaux, 26-27 octobre 2005.
10. C. Mugler, E. Mouche (2006), Modelisation stochastique de la sequestration du CO₂ dans un aquifere hetrogene par simulations Monte-Carlo, Runion des Sciences de la Terre, Dijon, 4-8 dcembre 2006.
11. C. Mugler, E. Mouche (2007), Modelisation de la sequestration de CO₂ dans un aquifere hetrogene : approche stochastique et changement d'chelle, 8^{emes} Journees d'tudes sur les Milieux Poreux, Lyon, 24-25 octobre 2007.
12. M. Hayek, E. Mouche, C. Mugler (2008), Theoretical analysis of CO₂ plume vertical migration in a stratified heterogeneous porous media, XVII International Conference on Computational Methods in Water Resources, July 6-10 2008, San Francisco.
13. Weill S., Mouche E., Patin J., Mugler C. (2008), Continuum Darcy approach for surface-subsurface flow and transport modelling : application to the Thies plot experiment in Senegal, XVII International Conference on Computational Methods in Water Resources, July 6-10 2008, San Francisco.
14. C. Mugler, C. Rabouille, B. Bombled, P. Montarnal (2009), Modelisation du recyclage de la matiere organique dans les sdiments en milieu ctier  l'aide d'un code coupl gochimie-transport, 9^{emes} Journees d'tudes sur les Milieux Poreux, Orsay (JEMP 09), Orsay, 21-22 octobre 2009.
15. M. Hayek, E. Mouche, C. Mugler (2010), CO₂ vertical migration through a layered porous medium : dynamics and upscaling. Conference on Computational Methods in Water Resources (CMWR 2010), Barcelone (Espagne) 21-24 juin 2010.
16. F. Perez, C. Mugler, P. Jean-Baptiste, J.L. Charlou, J.-P. Donval, C. Marcailloux, M. Muoz (2010). Hydrogeological and geochemical modeling of active ultramafic-hosted hydrothermal systems with Cast3M and Alliances. American Geophysical Union fall meeting, San Francisco (USA) 13-17 dcembre 2010.
17. C. Mugler, O. Planchon, J. Patin, S. Weill, N. Silvera, P. Richard, E. Mouche (2011). Modelling of overland flow and tracer transport experiments under simulated rainfall at plot scale. EGU General Assembly, 3-8 avril 2011, Vienne (Autriche). Geophysical Research Abstracts Vol.13, EGU2011-5740.
18. F. Perez, C. Mugler, P. Jean-Baptiste, J.L. Charlou (2011). Modeling of ultramafic-hosted hydrothermal systems using Cast3M. Goldschmidt Conference, 14-19 aot 2011, Prague (Rpublique tchque). Goldschmidt Conference Abstracts, Mineralogical Magazine, June 2011, v. 75, p.1623.
19. F. Perez, C. Mugler, P. Jean-Baptiste, J.L. Charlou (2012). Modeling of ultramafic-hosted hydrothermal systems using Cast3M. The Deep-sea and Sub-seafloor Frontiers Conference, 11-14 mars 2012, Sitges (Espagne).

20. F. Perez, C. Mügler, P. Jean-Baptiste, J.L. Charlou (2012). Modelling of hydrothermal fluid circulation in a heterogeneous medium : application to the Rainbow Vent site (Mid-Atlantic-Ridge, 36°14N). EGU General Assembly, 22-27 avril 2012, Vienne (Autriche). Geophysical Research Abstracts Vol.14, EGU2012.

Documents Techniques

1. C. Mügler, B. Meltz, S. Gauthier (1993), Simulation numérique directe de mélanges d'écoulements compressibles visqueux : 1. Présentation des choix numériques, DO 314/93 émis le 05/03/1993 à W/D.ET/S.PI.
2. M. Vandenboomgaerde, C. Mügler (1993), Contribution à l'interprétation des expériences en tube à choc, DO 367/93 émis le 20/12/1993 à DAM/CEL-V/D.ET/S.PI.
3. P. Lurin, C. Mügler, S. Gauthier (1994), Simulation numérique directe de mélanges d'écoulements compressibles visqueux : 3. Simulations d'expériences en tube à choc, DO 431/94 émis le 24/11/1994 à DAM/CEL-V/D.ET/S.PI.
4. C. Mügler (1995) Simulation numérique directe de mélanges d'écoulements compressibles visqueux : 2. Validation du code CADMÉE, DO 442/95 émis le 27/01/1995 à DAM/CEL-V/D.ET/S.PI.
5. C. Mügler, M. Vandenboomgaerde, S. Gauthier (1995), Influence des coefficients de transport sur la phase linéaire de l'instabilité de Richtmyer-Meshkov, DO 520/95 émis le 04/10/1995 à DAM/CEL-V/D.ET/S.PI.
6. C. Mügler (1996) Simulation d'une expérience d'instabilité de Richtmyer-Meshkov avec interface sinusoidale, DO 561/96 émis le 19/02/1996 à DAM/CEL-V/D.ET/S.PI.
7. M. Vandenboomgaerde, C. Mügler, S. Gauthier (1997), Phase linéaire de l'instabilité de Richtmyer-Meshkov, une nouvelle formulation du modèle impulsif, DO 42/97 émis le 21/04/1997 à CEA/DRIF/DCSA/SSET.
8. C. Mügler, F. Aguilé (1997), Développement d'un outil de post-traitement permettant l'étude spectrale de l'instabilité de Richtmyer-Meshkov, DO 41/97 émis le 21/04/1997 à CEA/DRIF/DCSA/SSET.
9. C. Mügler, F. Poggi (1997), Étude des couches limites turbulentes dans les tubes à choc : mesures et modélisation, DO 100 émis le 24/11/1997 à CEA/DRIF/DCSA/SSET.
10. C. Le Gal, C. Mügler (1998), Étude numérique de couplage de modes dans une instabilité de Richtmyer-Meshkov, DO 113 émis le 13/01/1998 à CEA/DRIF/DCSA/SSET.
11. C. Mügler, F. Poggi (1998), Simulation bidimensionnelle d'une expérience de Richtmyer-Meshkov en tube à choc, DO 153/98 émis le 28/04/1998 à CEA/DRIF/DCSA/SSET.
12. C. Mügler (1999), Instabilité de Richtmyer-Meshkov à double interface : simulation numérique, théorie et expérience, DO 338/99 émis le 10/11/1999 à CEA/DIF/DCSA/SSEL.
13. C. Mügler, M. Boulet (2000), Le code TRICLADÉ - Validation de sa version 2D, DO 69 émis le 26/09/00 à CEA/DIF/DCSA/SNEC.
14. C. Mügler (2000), Intégration du modèle opérationnel Béton sous Castem 2000 - Version 1D, DEN/DMT/SEMT/MTMS/RT/00-032/A.
15. C. Mügler (2001), Modélisation 3D de l'impact hydraulique du creusement du tunnel et des galeries de la station expérimentale de Tournemire, DEN/DM2S/SFME/MTMS/RT/01-004/A.

16. C. Mügler (2001), Intégration du modèle opérationnel Béton sous Castem 2000 - Version 2D, DEN/DMT/SEMT/MTMS/RT/01-009/A.
17. C. Mügler (2001), Implantation du transport des radionucléides dans le modèle Diffu-Ca sous Castem 2000, DEN/DM2S/SFME/MTMS/RT/01-015/A.
18. C. Mügler, M. Lamoureux (2002), Calculs de transport de radionucléides avec le code CASTEM 2000 appliqués à un scénario de sûreté du site Est, DEN/DM2S/SFME/MTMS/RT/02-003/A.
19. C. Mügler (2003), Transfert thermique dans un milieu argileux : simulation directe 3D de l'expérience HE-C du Mont Terri, DEN/DM2S/SFME/MTMS/RT/03-006/A.
20. C. Mügler, P. Montarnal (2003), Projet Alliances. Dossier de qualification. Fiche du cas-test 6.2 du couplage transport-chimie. Réactions acido-basiques couplées au transport diffusif 1D et 2D, DEN/DM2S/SFME/MTMS/PT/03-036/A.
21. C. Mügler, P. Montarnal (2003), Projet Alliances. Dossier de qualification. Fiche du cas-test 6.4 du couplage transport-chimie. Migration de strontium dans un sol sableux argilo-calcaire, DEN/DM2S/SFME/MTMS/PT/03-038/A.
22. C. Mügler, P. Montarnal (2003), Projet Alliances. Dossier de qualification. Fiche du cas-test d'application « Chemval » du couplage transport-chimie, DEN/DM2S/SFME/MTMS/PT/03-041/A.
23. C. Mügler (2004), Intégration du modèle de carbonatation atmosphérique des bétons sous Cast3M, DEN/DM2S/SFME/MTMS/RT/04-017/A.

Partie 2 : BILAN DES TRAVAUX DE RECHERCHE

Modélisation de l'instabilité hydrodynamique de Richtmyer-Meshkov

Mis en évidence il y a plus d'un siècle (Reynolds, 1883), le problème de la stabilité des écoulements hydrodynamiques est un problème essentiel en mécanique des fluides. En effet, certaines solutions des équations d'Euler ou de Navier-Stokes, même si elles sont exactes, ne sont pas observées dans la nature. Les écoulements qui existent réellement doivent non seulement vérifier les équations de la mécanique des fluides, mais encore être stables en ce sens que les petites perturbations qui y prennent naissance doivent s'atténuer au cours du temps. Au contraire, si les perturbations, aussi petites qu'elles soient, tendent à s'amplifier au cours du temps, l'écoulement est instable et ne peut exister réellement.

L'évolution d'une instabilité hydrodynamique au sein d'un écoulement passe en général par une succession de trois régimes : linéaire, non linéaire (éventuellement chaotique) et pleinement turbulent. À la Direction des Applications Militaires (DAM) du CEA, je me suis intéressée à la phase déterministe du développement d'une instabilité d'interface particulière que l'on appelle l'instabilité de Richtmyer-Meshkov, phase qui englobe à la fois le régime linéaire, le régime non-linéaire et la transition au chaos et/ou à la turbulence. Aussi, je rappelle dans ce chapitre les principaux résultats de ces recherches sur l'instabilité de Richtmyer-Meshkov réalisées dans le contexte de la fusion par confinement inertiel.

Dans la troisième partie de ce mémoire consacrée aux perspectives, j'aborderai les recherches envisagées à la Direction des Sciences de la Matière (DSM) du CEA sur l'étude d'une autre instabilité et dans un contexte fort différent : l'instabilité de Rayleigh-Bénard, qui est à la source de la circulation hydrothermale au niveau des dorsales médio-océaniques (cf. Partie 3, §1).

1.1 Problématique des instabilités pour la fusion par confinement inertiel

La fusion par confinement inertiel (FCI) consiste à comprimer un mélange fusible jusqu'à des conditions de pression et de température telles que les réactions thermonucléaires puissent s'amorcer et s'auto-entretenir. Dans les expériences réalisées au CEA, la FCI est obtenue en faisant imploser à l'aide de faisceaux lasers un microballon sphérique contenant un mélange de

deutérium et de tritium. Le rendement énergétique de ces expériences d'implosion peut être fortement détérioré par l'apparition d'instabilités hydrodynamiques qui entraînent le développement d'un mélange turbulent entre l'enveloppe du microballon et son contenu. En effet, l'interface séparant deux fluides de densités différentes peut, sous certaines conditions, devenir instable. Si cette interface n'est pas parfaitement lisse, des petites perturbations à l'interface vont croître, d'abord de façon linéaire, puis non-linéaire, avant d'évoluer vers des structures plus complexes ayant la forme de « bulles » et d'« aiguilles », et finalement vers un mélange turbulent. Ces instabilités et la turbulence qui en découle doivent donc être correctement modélisées pour prédire au mieux les performances des cibles laser.

L'une de ces instabilités, l'instabilité de Rayleigh-Taylor (IRT) apparaît lorsqu'une interface séparant deux fluides de densités différentes est soumise à un champ d'accélération permanent dirigé du fluide léger vers le fluide lourd (Taylor, 1950). Lorsque l'accélération est « impulsionnelle », créée, par exemple, par le passage d'une onde de choc, on parle alors d'instabilité de Richtmyer-Meshkov (IRM). L'IRM a été découverte de façon théorique par Richtmyer (1960) avant d'être confirmée expérimentalement par Meshkov (1969).

A l'échelle du laboratoire, les tubes à chocs constituent des dispositifs expérimentaux particulièrement intéressants pour mieux comprendre les mécanismes de formation du mélange des constituants lorsque de telles instabilités hydrodynamiques se développent (Poggi *et al.*, 1998). Dans une expérience en tube à choc, l'interface entre deux gaz de densités différentes est initialement accélérée par une onde de choc puis décélérée par une succession d'ondes réfléchies au fond du tube. L'évolution de la zone de mélange qui découle de ces interactions est alors étudiée par image strioscopique ou par vélocimétrie Doppler laser (Poggi, 1998). Si la première technique permet de visualiser certaines structures spatiales qui se développent au niveau de l'interface après passage du choc, elle ne fournit cependant que des informations qualitatives. Par contre, la vélocimétrie Doppler laser permet de mesurer la vitesse instantanée dans la zone de mélange et donc de quantifier le niveau d'énergie turbulente après chaque passage de choc.

Pour simuler et interpréter les expériences en tube à choc, j'ai développé un outil de simulation numérique directe de mélanges d'écoulements compressibles visqueux, le code CADMÉE. Dans les paragraphes suivants, je présenterai rapidement les équations résolues par cet outil numérique ainsi que sa validation (cf. §1.2). Quand l'expérience existe, j'ai toujours cherché à confronter les résultats des simulations aux résultats expérimentaux (cf. §1.3). Mais des « expériences numériques » peuvent aussi servir à valider les modèles théoriques ou à accéder à des quantités non mesurables comme la vorticit , le spectre d'énergie ou des corrélations statistiques (cf. §1.4, §1.5 et §1.6). Ce travail a été réalisé sous la direction de Serge Gauthier (CEA/DAM) et avec la collaboration de nombreux scientifiques du contingent, dont l'un d'eux, Marc Vandenboomgaerde, a été embauché au CEA pour continuer à travailler dans cette thématique.

1.2 Développement d'un outil de simulation numérique directe

1.2.1 Équations de Navier-Stokes compressibles

Pour réaliser la simulation des expériences en tube à choc, j'ai développé un code d'étude bidimensionnel (2D), le code CADMÉE, résolvant les équations de Navier-Stokes d'un mélange de fluides compressibles. Pour cela, je suis partie d'un code existant du laboratoire américain de Los Alamos, le code CAVEAT (Addesio *et al.*, 1990) résolvant les équations d'Euler, dont j'ai étendu la méthode à un mélange de fluides visqueux. Le code CADMÉE résout donc les

équations de Navier-Stokes instationnaires 2D pour un fluide compressible et visqueux :

$$\begin{cases} \frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_l} (\rho u_l) = 0, \\ \frac{\partial}{\partial t} (\rho u_i) + \frac{\partial}{\partial x_l} (\rho u_i u_l) = -\frac{\partial P}{\partial x_i} + \frac{\partial \sigma_{il}}{\partial x_l}, \\ \frac{\partial}{\partial t} (\rho E) + \frac{\partial}{\partial x_l} (\rho E u_l) = -\frac{\partial}{\partial x_l} (P u_l) + \frac{\partial}{\partial x_l} \left(\chi \frac{\partial T}{\partial x_l} \right) + \frac{\partial}{\partial x_l} (\sigma_{jl} u_j). \end{cases} \quad (1.1)$$

Dans ces équations, ρ représente la masse volumique, T , la température, P , la pression, u_i avec $i = 1, 2$, la vitesse du fluide selon la direction x_i , $E = e + u_i u_i / 2$, l'énergie totale spécifique de masse, e , l'énergie interne spécifique et χ , le coefficient de conductivité thermique. Les composantes σ_{ij} du tenseur de contraintes visqueuses $\bar{\sigma}$ sont définies selon l'approximation de Stokes par :

$$\sigma_{ij} = \mu \left(\frac{\partial u_j}{\partial x_i} + \frac{\partial u_i}{\partial x_j} - \frac{2}{3} \delta_{ij} \frac{\partial u_l}{\partial x_l} \right), \quad (1.2)$$

où μ est le coefficient de viscosité dynamique.

La vorticit , $\vec{\omega} = \vec{\nabla} \times \vec{u}$, est une quantit  tr s utile pour d crire les instabilit s d'interface et la turbulence qui en d coule. Elle sera utilis e au §1.6 pour quantifier la turbulence dans la zone de m lange. L' volution de la vorticit  d'un fluide visqueux et compressible est d crite par l' quation d'Helmholtz qui r sulte du rotationnel de l' quation de quantit  de mouvement (1.1) :

$$\frac{\partial}{\partial t} \vec{\omega} + (\vec{u} \cdot \vec{\nabla}) \vec{\omega} = -\vec{\omega} (\vec{\nabla} \cdot \vec{u}) + (\vec{\omega} \cdot \vec{\nabla}) \vec{u} - \frac{1}{\rho^2} \vec{\nabla} P \times \vec{\nabla} \rho + \vec{\nabla} \times \left(\frac{1}{\rho} \vec{\nabla} \cdot \bar{\sigma} \right). \quad (1.3)$$

Dans le membre de droite de cette  quation, les quatre termes correspondent respectivement aux effets de la compressibilit , aux effets de l' tirement des lignes de tourbillons,   la production barocline et   la dissipation de vorticit  due aux effets visqueux. Notons ici que dans un  coulement 2D, le terme d' tirement est toujours nul. Le terme barocline, quant   lui, est source de vorticit  m me dans un  coulement initialement irrotationnel. C'est lui le moteur de l'IRM : il suffit que le gradient de pression d  au choc et que le gradient de densit  au niveau de l'interface ne soient pas parfaitement colin aires pour qu'il y ait production de vorticit .

1.2.2 Mod le de m lange

Une des originalit s du code CADM E a  t  d'utiliser un mod le de m lange particulier. Alors que le m lange de deux fluides est souvent abord  par l'approximation multifluide qui consiste   consid rer les deux constituants comme non-miscibles et donc   calculer la position de la fronti re qui les s pare, approche qui n'est plus valable   l' chelle mol culaire, nous avons utilis  un mod le de type monofluide o  une variable suppl mentaire, la concentration, d crit le passage de mani re continue d'un fluide   l'autre. L' quation de cette grandeur est r gie par une  quation de type advection-diffusion :

$$\frac{\partial}{\partial t} (\rho c) + \frac{\partial}{\partial x_i} (\rho c u_i) = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\rho D \frac{\partial c}{\partial x_i} \right), \quad (1.4)$$

o  D est le coefficient de diffusion. Les densit s partielles des fluides 1 et 2 valent respectivement ρc et $\rho(1 - c)$. Dans le mod le de m lange, la pression P et la densit  ρ , respectivement  gales

à la somme des pressions partielles et des densités partielles, vérifient la loi des gaz parfaits. De plus, on fait l'hypothèse d'équilibre thermique local, ce qui implique que la température T est la même dans les deux fluides. Finalement, on a :

$$P = P_1 + P_2, \quad \rho = \rho_1 + \rho_2, \quad T = T_1 = T_2, \quad \text{et} \quad P_i = (\gamma_i - 1) \rho_i c_{v_i} T. \quad (1.5)$$

Dans ces expressions, les indices correspondent aux quantités partielles des fluides 1 et 2. Le rapport des chaleurs spécifiques du mélange, noté γ , peut-être évalué selon la relation suivante :

$$\gamma = \frac{c_{p_{\text{mélange}}}}{c_{v_{\text{mélange}}}} = \frac{cc_{p_1} + (1-c)c_{p_2}}{cc_{v_1} + (1-c)c_{v_2}} = \frac{cc_{v_1}\gamma_1 + (1-c)c_{v_2}\gamma_2}{cc_{v_1} + (1-c)c_{v_2}}. \quad (1.6)$$

Les coefficients de viscosité et de diffusion moléculaires sont calculés d'après Hirschfelder *et al.* (1954). En supposant que le nombre de Prandtl de chaque espèce reste constant, les coefficients de conductivité thermique peuvent être déduits à partir des coefficients de viscosités. Les valeurs de μ et D pour le mélange sont alors obtenues grâce à la loi de mélange de Wilke tandis que le coefficient de conductivité thermique du mélange est calculé selon le modèle de Mason et Saxena (1958).

1.2.3 Modèle algébrique de turbulence pour les couches limites

Les clichés strioscopiques pris au cours d'expériences en tube à choc montrant clairement que les couches limites qui se développent le long des parois du tube deviennent turbulentes, j'ai choisi d'implanter dans le code CADMÉE un modèle algébrique de turbulence : le modèle de Baldwin-Lomax (Baldwin et Lomax, 1978). Dans un modèle de turbulence algébrique, les équations de Navier-Stokes moyennées dans le temps qui décrivent les écoulements turbulents ont la même forme que les équations de Navier-Stokes, aux coefficients de transport près : les effets de la turbulence sont modélisés simplement par une viscosité et une diffusion thermique turbulentes qui viennent s'ajouter aux effets de la viscosité et de la diffusion thermique moléculaires.

1.2.4 Méthodes numériques

L'introduction par Godunov (1959) d'un nouveau type de schémas décentrés a permis de faire un grand pas dans le traitement numérique de fortes discontinuités comme celles apparaissant en présence d'ondes de choc. L'idée originale de tels schémas est de supposer les variables constantes dans chacune des mailles et de résoudre un problème de Riemann sur leurs frontières. Le coût d'une telle opération étant souvent élevé, nous avons choisi d'utiliser le solveur approché non itératif de Dukowicz (1985). La discrétisation spatiale est de type volumes finis sur maillages structurés et le schéma numérique est d'ordre 2 en espace. CADMÉE peut indifféremment faire appel à une méthode purement lagrangienne (méthode caractérisée par des maillages qui se déplacent à la vitesse du fluide), ou à une méthode eulérienne (méthode utilisant normalement un maillage fixe), avec ou sans raffinement dynamique du maillage. La simulation numérique directe nécessitant l'utilisation de schémas numériques très précis, j'ai de plus étendu le schéma à l'ordre 2 en temps par une méthode de Runge-Kutta (Williamson, 1980). Les figures 1.1 et 1.2 illustrent l'importance de la discrétisation spatiale et de la précision du schéma numérique sur les premières phases de développement de l'instabilité d'interface de Richtmyer-Meshkov et de l'instabilité de cisaillement de Kelvin-Helmholtz qui en découle. L'utilisation d'un maillage trop grossier et/ou d'un schéma numérique insuffisamment précis ne permet pas de simuler correctement le tourbillon de Kelvin-Helmholtz. L'instabilité de cisaillement de Kelvin-Helmholtz est en effet très sensible, via le terme barocline, à la description spatiale du choc : plus le maillage

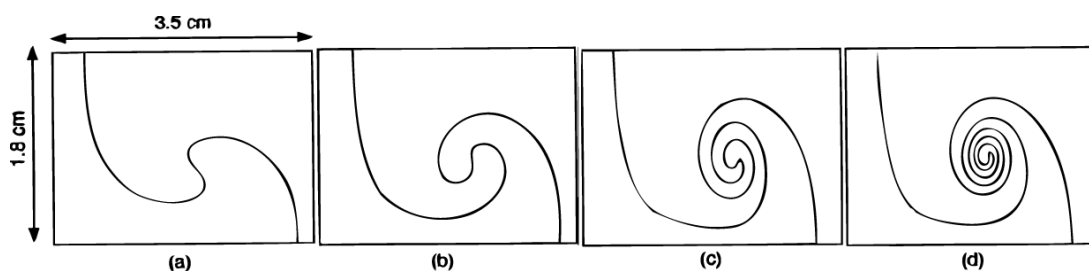


FIGURE 1.1 – Influence du maillage. Isovaleur de la concentration $c=0.5$ pour différents nombres de mailles par longueur d'onde λ du défaut initial sinusoïdal qui a généré le développement de l'instabilité : (a) 50 mailles, (b) 100 mailles, (c) 200 mailles et (d) 360 mailles.

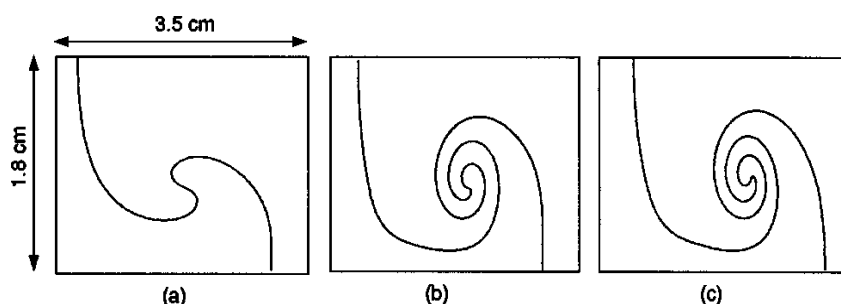


FIGURE 1.2 – Influence de la précision du schéma numérique. Isovaleur de la concentration $c=0.5$ pour différents schémas numériques : (a) ordre 1 en espace et 1 en temps, (b) ordre 2 en espace et 1 en temps, (c) ordre 2 en espace et 2 en temps.

est fin, plus le choc est raide et donc plus l'instabilité se développe. La convergence spatiale nécessiterait des mailles d'épaisseur inférieure à celle du choc, c'est-à-dire des mailles de deux à trois ordres de grandeur plus petites que celles utilisées ici. Par contre, comme le montrent les figures 1.2(b) et 1.2(c), l'influence de la précision du schéma en temps est beaucoup plus faible et nous avons vérifié qu'un ordre 3 en temps n'apportait pas d'améliorations significatives.

1.2.5 Validation du code CADMÉE

L'outil de simulation numérique CADMÉE a été validé sur de nombreux cas-test d'écoulements stationnaires ou instationnaires : tube à choc 1D ou cylindrique, développement d'une couche limite supersonique sur plaque plane, interaction onde de choc/couche limite, instabilité de Richmyer-Meshkov. Les résultats obtenus ont été comparés à la solution analytique du problème lorsqu'elle est connue ou aux résultats délivrés par deux autres codes, le code PROUST et le code NATURng, développés à l'École Centrale de Lyon par Stéphane Aubert et Ludovic Hallo au cours de leur thèse respective (Mügler *et al.*, 1996). Au vu des résultats obtenus, le code CADMÉE a pu être qualifié d'opérationnel pour simuler des écoulements de fluides parfaits ou visqueux, bidimensionnels, mono espèces ou multi espèces, et ce du régime faiblement compressible au régime supersonique.

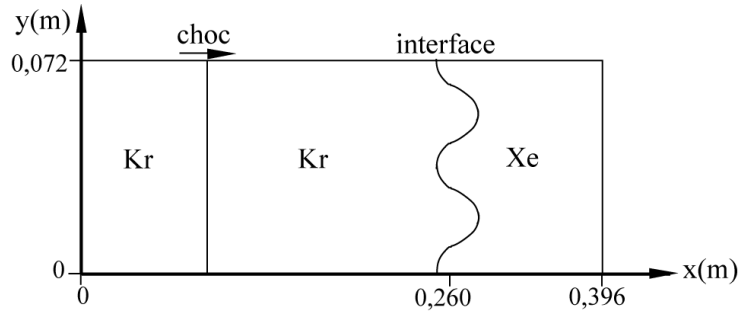


FIGURE 1.3 – Géométrie et configuration initiale de l'expérience en tube à choc.

1.3 Simulation d'une instabilité de Richtmyer-Meshkov monomode

Lorsque j'ai voulu réaliser les premières simulations numériques directes d'expériences en tube à choc, j'ai rapidement été confrontée au problème crucial de l'absence de connaissances précises des conditions initiales de perturbation de l'interface dans les expériences réalisées au CEA/DAM (Poggi, 1998). Et c'est en parcourant les rapports concernant des contrats scientifiques entre l'institut russe Krzlishanovsky (ENIN) et le CEA de Vaujours-Moronvilliers que j'ai découvert que l'équipe russe du professeur S.G. Zaytsev avait réalisé en 1994 des expériences d'IRM multiples et variées, que ce soit par le choix de l'interface (interface continue ou discontinue, 2D ou 3D) ou par le choix du couple de gaz (Ar/Xe, He/Xe, Kr/Xe, etc.). C'est l'une de ces expériences que j'ai choisie pour étudier et mieux comprendre le développement de l'IRM monomode. Ce travail a donné lieu à un article que j'affectionne particulièrement car il propose une compréhension des premières phases de développement de l'IRM en s'appuyant autant sur les résultats d'expériences que sur les simulations correspondantes (Mügler et Gauthier, 1998) (publication jointe en Annexe A de ce mémoire). De plus, il est le fruit d'une interaction avec des scientifiques russes qui, pour certains d'entre eux, sortaient pour la première fois de leur pays, ne parlaient aucune autre langue que le russe et n'avaient jamais publié dans la littérature ouverte. Ce fut pour moi une expérience très riche, autant sur le plan scientifique que sur le plan humain.

L'originalité de l'expérience réalisée par l'équipe russe réside dans le fait que les deux gaz présents dans le tube à choc sont initialement séparés par une très fine membrane préformée et parfaitement calibrée : l'amplitude initiale a_0 de la perturbation monomode de cette interface est égale à 10 mm crête à crête, et sa longueur d'onde λ égale à 36 mm (Fig. 1.3). L'interface est alors accélérée par une onde de choc à Mach 3.5 se déplaçant du gaz lourd (du krypton) vers le gaz léger (du xénon). L'évolution temporelle de la zone de mélange créée par l'interaction choc/interface est observée par strioscopie. Cette expérience parfaitement calibrée m'a permis de valider le code CADMÉE. Comme le montre la figure 1.4, les clichés strioscopiques expérimentaux et numériques sont en parfait accord et illustrent la croissance du défaut à l'interface d'abord en phase linéaire, puis en phase non-linéaire. Le fluide lourd pénètre alors dans le fluide léger sous forme d'« aiguilles » tandis que le fluide léger s'introduit dans le fluide lourd sous forme de « bulles ». Le bon comportement du code CADMÉE nous a permis de l'utiliser ensuite pour réaliser des « expériences numériques » afin de valider de nouveaux modèles théoriques, travail présenté dans les paragraphes suivants.

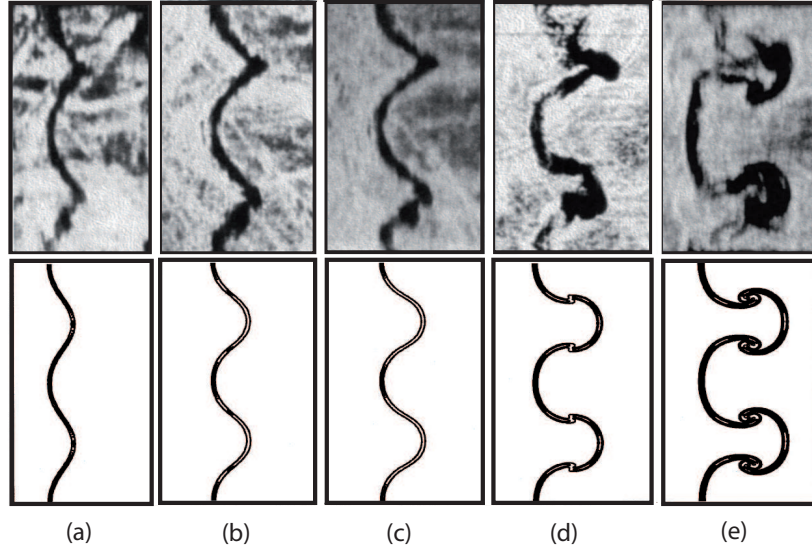


FIGURE 1.4 – Comparaison de l'évolution au cours du temps des structures spatiales obtenues expérimentalement (figures supérieures) et numériquement (figures inférieures) à différents instants après le passage du choc incident à l'interface : (a) $t=65 \mu\text{s}$, (b) $t=108 \mu\text{s}$, (c) $t=134 \mu\text{s}$, (d) $t=276 \mu\text{s}$ et (e) $t=464 \mu\text{s}$ (Mügler et Gauthier, 1998).

1.4 Régime linéaire : nouvelle formulation du modèle impulsional

Dans le but d'améliorer la compréhension des premiers instants de la formation du mélange, nous nous sommes tout d'abord intéressés à la croissance des instabilités en phase linéaire. Dans ce domaine, l'IRT a été l'objet de nombreuses études théoriques et numériques et l'analyse linéaire en modes normaux permet d'exprimer de façon analytique le taux de croissance d'un défaut monomode à l'interface (Kull, 1941). Pour le cas des grandes longueurs d'onde, pour lesquelles la viscosité joue un rôle négligeable, l'analyse linéaire de l'instabilité de Rayleigh-Taylor permet d'écrire une équation différentielle que vérifie l'amplitude d'un défaut monomode $a(t)$:

$$\frac{d^2 a(t)}{dt^2} = n^2 a(t). \quad (1.7)$$

La solution d'une telle équation est de la forme :

$$a(t) = a_0^- e^{nt}, \quad (1.8)$$

où a_0^- est l'amplitude initiale et où le taux de croissance de l'instabilité, noté n , vérifie :

$$n^2 = kgA_t^-. \quad (1.9)$$

Dans cette expression, k , g et A_t^- représentent respectivement le nombre d'onde de la perturbation, l'accélération du champ de pesanteur et le nombre d'Atwood. Si l'accélération est orientée du gaz de densité ρ_1 vers celui de densité ρ_2 , A_t^- est défini par :

$$A_t^- = \frac{(\rho_2 - \rho_1)}{(\rho_2 + \rho_1)}. \quad (1.10)$$

Dans le cas d'une accélération impulsionnelle, un formalisme simplifié permet de remplacer g dans l'expression (1.9) par la quantité $[u]\delta(t)$, où $[u]$ est le saut de vitesse de l'interface engendré par l'onde de choc et où $\delta(t)$ est la fonction de Dirac. L'intégration de l'équation (1.7) fournit :

$$\frac{da(t)}{dt} = k[u]A_t^- a_0^- . \quad (1.11)$$

Dans cette expression, au lieu de A_t^- et de a_0^- , Richtmyer (1960) préconise d'utiliser A_t^+ et a_0^+ qui sont respectivement le nombre d'Atwood et l'amplitude du défaut juste après le passage du choc incident. On obtient alors :

$$\frac{da(t)}{dt} = k[u]A_t^+ a_0^+ , \quad (1.12)$$

avec $a_0^+ = a_0^- \times (1 - [u]/W_{choc})$, où W_{choc} est la vitesse du choc incident (Richtmyer, 1960).

Dans le cas d'une onde de choc se déplaçant du gaz lourd vers le gaz léger, Meyer et Blewett (1972) ont montré que l'expression suivante donne de meilleurs résultats :

$$\frac{da(t)}{dt} = k[u]A_t^+ (a_0^- + a_0^+) / 2. \quad (1.13)$$

En utilisant une accélération non nulle et constante durant l'interaction entre l'onde de choc incidente et l'interface et en supposant que l'amplitude de la perturbation et le nombre d'Atwood varient linéairement durant cette interaction, nous avons obtenu de façon heuristique une nouvelle formulation du taux de croissance de l'IRM dans sa phase linéaire (Vandenboomgaerde *et al.*, 1998) :

$$\frac{da(t)}{dt} = k[u] (A_t^- a_0^- + A_t^+ a_0^+) / 2. \quad (1.14)$$

Les trois formules (1.12), (1.13) et (1.14) peuvent être interprétées de la façon suivante : la formulation de Richtmyer n'utilise que les quantités après passage du choc alors que celle de Meyer et Blewett tient compte de la variation de l'amplitude de la perturbation durant l'interaction avec l'onde de choc. Notre formulation, quant à elle, tient compte à la fois de la variation de l'amplitude et du nombre d'Atwood durant l'interaction.

Grâce à l'outil numérique CADMÉE, nous avons pu réaliser un nombre conséquent de simulations (plus d'une centaine) et établir le domaine de validité de notre formulation. Il s'est avéré que cette nouvelle formulation du modèle impulsionnel donnait une très bonne estimation du taux de croissance dans les deux configurations lourd/léger et léger/lourd, pourvu que soient vérifiées les deux conditions : $\epsilon \leq 0,4$ et $\gamma_{max}/\gamma_{min} \leq 1,5$. Dans ces expressions, ϵ représente la force du choc, égale à $1 - P_0/P_1$, où P_0 est la pression initiale et P_1 la pression derrière le choc incident. La quantité γ_{max} (resp. γ_{min}) est le maximum (resp. le minimum) des deux coefficients adiabatiques. Cette nouvelle formulation très simple du taux de croissance de l'IRM dans sa phase linéaire a fourni un outil fort utile pour estimer le taux de croissance dans des situations réelles (Vandenboomgaerde *et al.*, 1998).

1.5 Régime non linéaire : méthode des perturbations simplifiée

La méthode des perturbations (Nayfeh, 1973) a été utilisée par plusieurs auteurs pour décrire le régime faiblement non-linéaire des instabilités d'interface (Ingraham, 1954; Haan, 1991; Zhang et Sohn, 1997, 1999; Velikovich et Dimonte, 1996). Quelques modèles ont également été proposés pour le régime fortement non-linéaire (Alon *et al.*, 1995; Ramshaw, 1998) en assimilant l'interface à un champ de « bulles » ou « aiguilles » dont ils ont étudié l'évolution. Zhang et Sohn (1997)

développent une méthode de perturbation en exprimant chaque quantité physique sous la forme d'une série où chaque terme est proportionnel à un petit paramètre (plus petit que 1). Le petit paramètre est ici a_0k , où a_0 et k sont respectivement l'amplitude et le nombre d'onde du défaut de l'interface pris au début de la phase non-linéaire. Le $n^{\text{ème}}$ terme de chaque série est considéré proportionnel à $(a_0k)^n$ et est donc négligeable par rapport aux termes d'ordre inférieur. Les quantités physiques ainsi exprimées sont introduites dans les équations hydrodynamiques décrivant l'évolution de l'interface. Après regroupement des termes du même ordre, le système est résolu à chaque ordre. Cette méthode devient rapidement très lourde, et Zhang et Sohn ne l'ont poussée qu'à l'ordre 4 (Zhang et Sohn, 1997). Par ailleurs, il apparaît que le petit paramètre a_0k est toujours multiplié par le temps t . Ainsi, les développements en puissance de a_0k se transforment en développements en puissance de a_0kt , et lorsque t devient grand, l'ensemble a_0kt n'est plus petit devant 1. L'association du petit paramètre, dans une théorie des perturbations, et d'une quantité pouvant être aussi grande que l'on veut, ici le temps t , est appelé « terme séculaire » par Bender et Orszag (1978). En ce qui nous concerne, ce terme s'écrit $a_0k\sigma t$ (σ étant proportionnel à la valeur asymptotique du taux de croissance linéaire). C'est ce terme $a_0k\sigma t$ qui doit dorénavant rester inférieur à 1. D'après Bender et Orszag (1978), en présence de termes séculaires dans la résolution de la méthode des perturbations, on peut ne conserver à chaque ordre que le terme séculaire de degré le plus élevé. Il en résulte, en ce qui nous concerne, une grande simplification des calculs et les termes d'ordre élevé sont facilement atteints. La détermination des potentiels de vitesse et de la forme de l'interface à l'ordre n , qui nécessitait l'intégration de $3 \times (n + 1)$ systèmes à 3 inconnues polynomiales de degré n dans la théorie classique, est réduite à la résolution de $3 \times (n + 1)$ systèmes algébriques à 3 inconnues réelles. Nous avons programmé cette résolution à l'aide du logiciel Mathematica.

Cette très grande simplification de la méthode a permis de traiter des interfaces monomodes mais aussi multimodes. Par exemple, la figure 1.5 montre l'évolution temporelle de l'amplitude de trois modes, notés k_1 , k_2 et k_3 , caractérisant la perturbation initiale de l'interface. Les lignes en pointillés correspondent aux résultats de la méthode des perturbations simplifiée, développée à l'ordre 7, alors que les symboles représentent les résultats de la simulation numérique réalisée à l'aide du code CADMÉE. Comme on peut le voir, théorie simplifiée et modélisation sont en bon accord : les deux méthodes montrent l'interaction des modes et la forte réduction de l'amplitude du mode k_1 suite à cette interaction. La simplification de l'écriture des résultats a permis d'identifier une famille d'interfaces équivalentes, définie par $ak^2 = \text{constante}$. La connaissance de l'évolution de l'amplitude d'une interface donne accès à l'évolution de toutes les interfaces de la même famille. Cette similitude, établie théoriquement dans le seul régime faiblement non-linéaire, semble, d'après les simulations CADMÉE, toujours valable dans le régime fortement non-linéaire (Vandenboomgaerde *et al.*, 2002).

1.6 Transition à la turbulence

Je me suis ensuite intéressée à la transition à la turbulence grâce aux résultats d'expériences novatrices réalisées au CEA/Vaujours-Moronvilliers (Poggi, 1998; Poggi *et al.*, 1998). Dans ces expériences, un nouveau diagnostic, la vélocimétrie Doppler laser, a permis de mesurer la vitesse instantanée de l'écoulement. Une telle information fournit après traitement le niveau d'énergie cinétique turbulente dans la zone de mélange. Les mesures expérimentales ont montré qu'une zone de mélange turbulente est générée par l'onde de choc incidente, régime turbulent que nous avons reproduit par des simulations 2D. La figure 1.6 montre l'évolution temporelle de la composante longitudinale du vecteur vitesse du fluide mesurée (points) et simulée (courbe en traits continus).

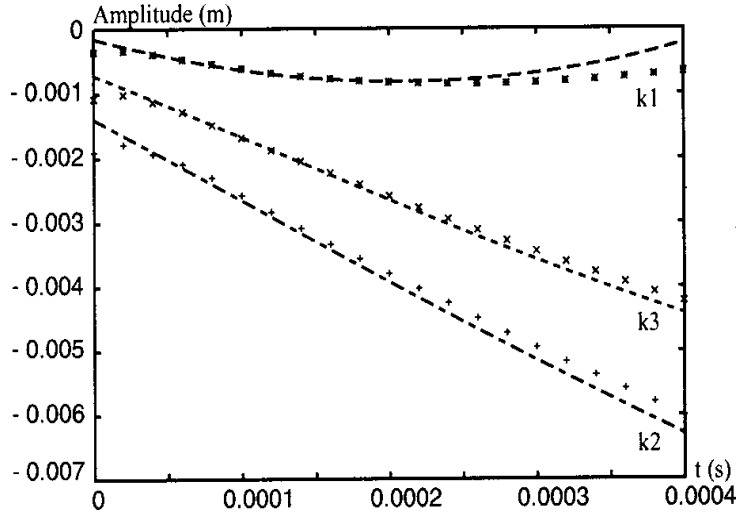


FIGURE 1.5 – Évolution temporelle de l'amplitude de trois modes, notés k_1 , k_2 et k_3 , caractérisant la perturbation initiale de l'interface. Les lignes en pointillés correspondent aux résultats de la méthode des perturbations simplifiée, développée à l'ordre 7, alors que les symboles représentent les résultats de la simulation numérique réalisée à l'aide du code CADMÉE (Vandenboomgaerde *et al.*, 2002).

Est également représentée sur cette figure la solution des relations de Rankine-Hugoniot (courbe en pointillés). Comme on peut le voir, entre l'écoulement théorique pouvant être calculé analytiquement et celui observé expérimentalement, de nombreux phénomènes viennent s'interposer. Ainsi, le développement de couches limites derrière l'onde de choc incidente entraîne une accélération de l'écoulement moyen dans le tube à choc (Zeitoun et Imbert, 1979). Grâce au modèle algébrique de turbulence implanté dans CADMÉE, on a pu restituer à la fois cette accélération mais également les structures en λ dues à l'interaction onde de choc/couche limite (Fig. 1.7). Le travail présenté dans ce paragraphe a fait l'objet d'une publication (Mügler et Gauthier, 2000) jointe en Annexe B de ce mémoire.

1.6.1 Analyse statistique

Une étude rigoureuse des propriétés statistiques du mélange turbulent induit par l'IRM compressible nécessiterait, en toute rigueur, une moyenne d'ensemble sur plusieurs simulations numériques. Chaque simulation étant excessivement coûteuse en temps de calculs et en place mémoire, cela n'a pas pu être réalisé : nous n'avons utilisé qu'une seule simulation à haute résolution. De plus, nous avons supposé que le mélange était homogène selon la direction transverse y . La vitesse instantanée $v(x, y, t)$ moyennée selon la direction y s'écrit :

$$\bar{v}(x, t) = \frac{1}{N} \sum_{j=0}^{N-1} v(x, j\Delta y, t). \quad (1.15)$$

Pour les écoulements incompressibles, les fluctuations turbulentes v' de la vitesse v s'expriment de la façon suivante :

$$v'(x, y, t) \equiv v(x, y, t) - \bar{v}(x, t), \quad (1.16)$$

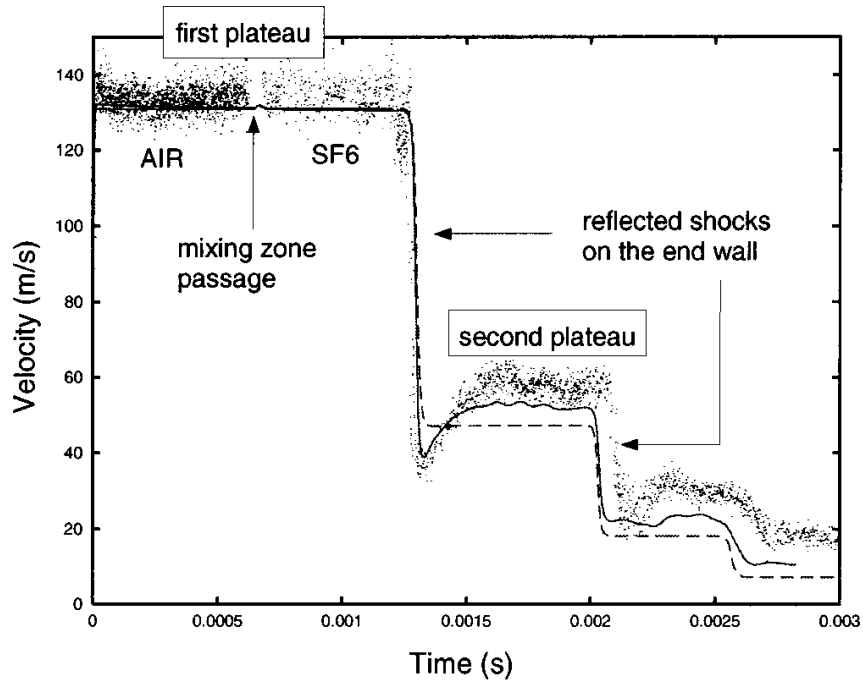


FIGURE 1.6 – Évolution temporelle de la composante longitudinale du vecteur vitesse du fluide en un point situé au centre du tube à choc et à 125.5 mm de la position initiale de l'interface. Les points correspondent aux mesures expérimentales par vélocimétrie Doppler laser, la courbe en traits continus, au résultat de la simulation numérique avec prise en compte des couches limites turbulentes et la courbe en pointillés, à la solution des relations de Rankine-Hugoniot (Mügler et Gauthier, 2000).

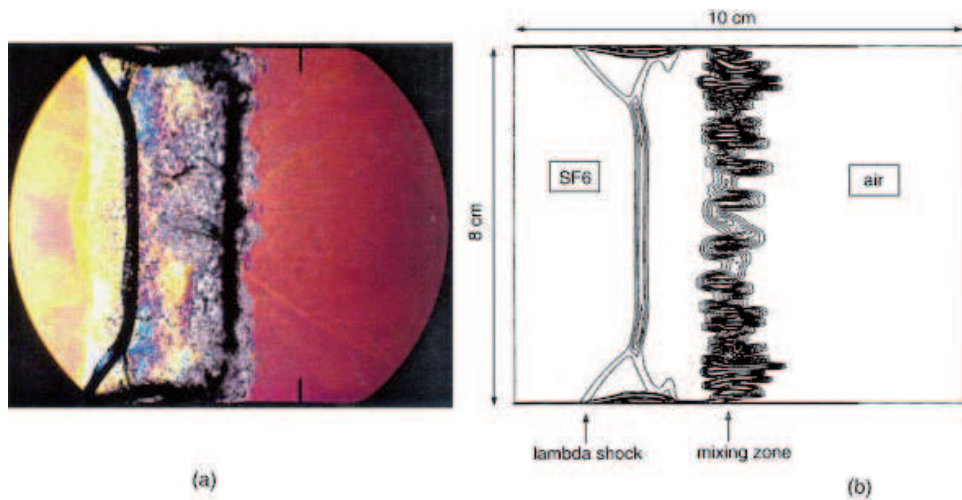


FIGURE 1.7 – Clichés strioscopiques expérimental (a) et numérique (b) à un instant t juste après l'interaction entre la zone de mélange et le premier choc réfléchi au fond du tube. À cause de son interaction avec la couche limite, le choc transmis dans le SF_6 adopte une structure de « choc en λ » (Mügler et Gauthier, 2000).

alors que pour les écoulements compressibles, les fluctuations turbulentes v'' de la vitesse s'expriment en utilisant la moyenne de Favre :

$$v''(x, y, t) \equiv v(x, y, t) - \tilde{v}(x, t), \quad (1.17)$$

où la vitesse moyenne $\tilde{v}(x, t)$ est définie par :

$$\tilde{v}(x, t) \equiv \frac{\overline{\rho v}(x, t)}{\bar{\rho}(x, t)}. \quad (1.18)$$

La figure 1.8(a) montre les profils d'énergie cinétique turbulente $\tilde{K} = u''_i u''_i / 2$ à différents instants. On voit clairement sur cette figure la création d'énergie cinétique turbulente après interaction de l'onde de choc incidente avec l'interface. L'amplitude maximale $\tilde{K}_{max}$ de ces profils décroît par diffusion et dissipation au fur et à mesure que la zone de mélange se déplace dans le tube à choc. Cette décroissance suit une loi de puissance en $(x - x_0)^{-1.35}$, x_0 étant la position initiale de l'interface. Comme la vitesse moyenne de la zone de mélange est à peu près constante, on obtient donc : $\tilde{K}_{max}(t) \propto t^{-1.35}$. Cette loi de décroissance, bien qu'obtenue à partir de simulations 2D, est en bon accord avec la théorie de Kolmogorov selon laquelle l'énergie cinétique d'une turbulence isotrope libre 3D dans un fluide incompressible décroît selon une loi de puissance $t^{-\alpha}$, avec $\alpha = 10/7$ (Kull, 1991). Par ailleurs, d'autres publications basées sur des calculs (Lesieur, 1997) ou sur des expériences (Mohamed et Larue, 1990) donnent $\alpha = 1,38$ ou $\alpha = 1,3$.

1.6.2 Comportement de l'enstrophie

Une quantité souvent utilisée pour caractériser la turbulence 2D est la densité d'enstrophie $\Omega = 1/2 |\vec{\omega}|^2$. Cette quantité est l'analogue d'une l'énergie cinétique de turbulence calculée non à partir de la vitesse mais à partir de la vorticit  $\vec{\omega} = \vec{\nabla} \times \vec{u}$ dont l'équation d'évolution a déjà été rappelée au § 1.2 (cf. Éq. (1.3)). La figure 1.8(b) montre les profils $\Omega(x)$ de l'enstrophie moyennée selon la direction transverse y , à différents instants après le passage du choc incident. Comme déjà observé pour l'énergie cinétique turbulente, l'amplitude maximale de ces profils Ω_{max} décroît au fur et à mesure que la zone de mélange se déplace dans le tube à choc selon la loi $\Omega_{max}(t) \propto t^{-2}$. Cette loi autosemblable de l'enstrophie moyenne est en accord avec les résultats théoriques et numériques de Batchelor dans le contexte d'une turbulence compressible libre (Batchelor, 1969). Nos résultats ont montré que c'était le terme barocline qui était le terme prépondérant dans la production d'enstrophie (Mügler et Gauthier, 2000), résultats en accord avec d'autres simulations 2D (Passot et Pouquet, 1987). Ce comportement est donc différent de celui d'écoulements 3D où ce sont les termes d'étirement et de dissipation visqueuse qui produisent le plus d'enstrophie (Kida et Orszag, 1990).

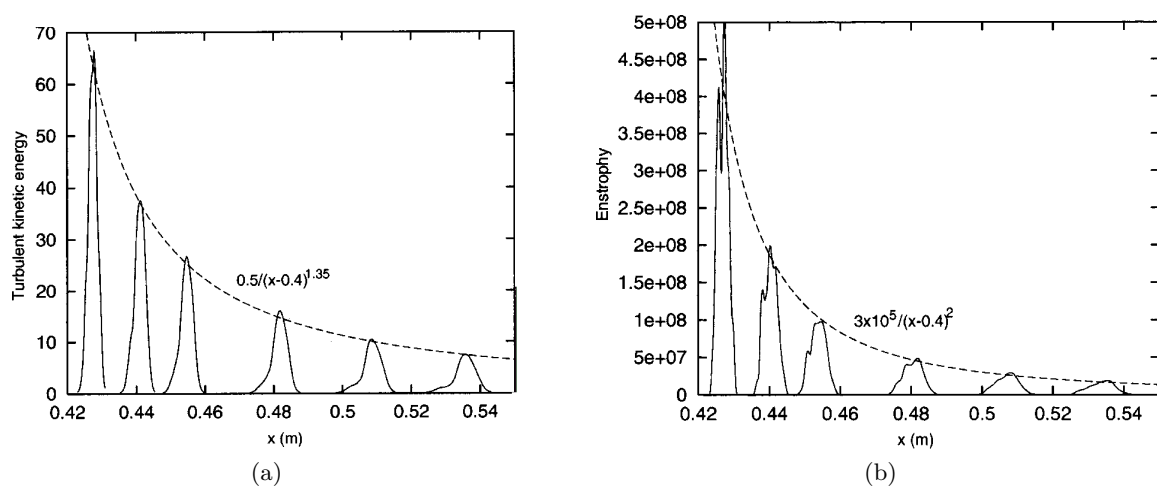


FIGURE 1.8 – Profils spatiaux de (a) l'énergie cinétique turbulente et de (b) l'enstrophie, à différents instants après l'interaction de l'onde de choc incidente avec l'interface et avant le retour du choc réfléchi au fond du tube (Mügler et Gauthier, 2000).

Modélisation des écoulements de surface et souterrains

L'étude du cycle de l'eau, ou hydrologie au sens large, est habituellement divisée en trois disciplines distinctes : la météorologie, l'hydrologie de surface et l'hydrogéologie. Que ce soit d'abord à la Direction des Études Nucléaires (DEN) ou ensuite à la Direction des Sciences de la Matière (DSM) du CEA, je me suis intéressée d'une part à la modélisation du ruissellement de surface et d'autre part, aux écoulements en milieu souterrain. Dans ce chapitre, je présente donc dans un premier temps mes travaux de modélisation du processus de ruissellement sur une parcelle de sol nu. La méthode adoptée est une méthode déterministe consistant à résoudre une forme simplifiée des équations de Saint-Venant. J'illustre ensuite mes travaux de modélisation en hydrogéologie réalisés dans le cadre des études concernant le stockage en profondeur des déchets nucléaires. Il s'agit ici de résoudre les équations de Darcy pour les écoulements en milieux poreux saturés en eau.

Les perspectives de ce travail de modélisation du cycle de l'eau seront évoquées dans la troisième et dernière partie de ce mémoire. Elles concernent la résolution numérique du couplage spatial et temporel du ruissellement, de l'infiltration et de la circulation de nappe (cf. Partie 3, §3).

2.1 Du modèle de Manning pour la modélisation des écoulements de surface

2.1.1 Problématique

Les écoulements de surface sont généralement modélisés par les équations de Saint-Venant ou ses formes simplifiées. Dans ces équations, la résistance hydraulique, caractérisée par un paramètre de rugosité, constitue un paramètre clef qui détermine la hauteur et la distribution de la lame d'eau qui ruisselle. Les relations couramment utilisées pour définir la dépendance entre la vitesse, la rugosité du sol et la hauteur de la lame d'eau dans les écoulements de surface sont issues de travaux anciens décrivant les écoulements dans des canalisations partiellement remplies (modèle de Darcy-Weisbach) et dans des canaux (modèle de Manning et de Chezy). Ces lois supposent un écoulement uniforme, parallèle à la surface du sol et de largeur constante, et une rugosité de surface homogène et aléatoire. Ces conditions restrictives ne sont jamais vérifiées lorsque l'écoulement s'effectue sur un sol naturel (Smith *et al.*, 2007). En général, le caractère perturbé de l'écoulement et l'influence grandissante de la rugosité à mesure que l'épaisseur de

la lame d'eau diminue contribuent à un système d'écoulement bien plus complexe que les conditions unidimensionnelles des écoulements en conduite pour lesquels ces théories ont été établies. À partir de la compilation de travaux théoriques et expérimentaux, Lawrence (1997) avance l'hypothèse selon laquelle l'hydrodynamique de la lame d'eau sur un sol rugueux dépend principalement du taux d'inondation, défini comme étant le rapport entre la hauteur d'eau et la taille des rugosités. Cet auteur propose un modèle heuristique basé sur la loi de Darcy-Weisbach avec un coefficient de frottement dépendant de la hauteur de la lame d'eau et du taux d'inondation. À partir de l'observation de l'impact de la végétation sur l'écoulement, Jain *et al.* (2004) proposent également une loi empirique, mais cette fois basée sur la relation de Manning avec un coefficient de rugosité variant en fonction de la hauteur de la lame d'eau selon une loi de puissance (Tsihrintzis, 2001).

Reprenant le travail initié par Sylvain Weill (2007) et Jérémy Patin (2011) au cours de leur thèse sous la direction d'Emmanuel Mouche (CEA/LSCE), j'ai testé ces différents modèles pour simuler le champ de vitesse mesuré lors d'une expérience menée sur une parcelle de 40 m² sous pluie simulée. Il s'agit d'une expérience réalisée par Olivier Planchon (IRD) sur le site de Thiès, au Sénégal (Tatard *et al.*, 2008; Mügler *et al.*, 2011). Dans cette expérience (cf. §2.1.3), la vitesse instantanée dans la lame d'eau a été mesurée localement en différents points et plusieurs expériences de traçage ont été effectuées : injection de traceur en un point et mesure de la courbe de restitution à l'exutoire de la parcelle. Le modèle mis en place permet de tester différentes formulations du coefficient de frottement (cf. §2.1.2) par calage sur des données d'écoulement (données locales) et de transport (données intégrées ou globales). Les résultats montrent l'importance de la description spatio-temporelle fine du milieu (de l'ordre du centimètre et de la seconde) pour la simulation du champ de vitesse de ruissellement (Mügler *et al.*, 2011; Patin, 2011).

Les résultats présentés dans les paragraphes suivants ont fait l'objet d'un article (Mügler *et al.*, 2011) joint en Annexe C de ce mémoire.

2.1.2 Un nouveau modèle de rugosité

Modélisation de l'écoulement de surface

L'écoulement de surface est modélisé à l'aide d'une formulation simplifiée des équations de Saint-Venant, l'équation de l'onde diffusante :

$$\frac{\partial h}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (h \vec{u}) = R - I. \quad (2.1)$$

Dans cette équation, h est la hauteur d'eau, $\vec{u}$, la vitesse d'écoulement moyennée verticalement, R , le taux de précipitation et I , celui d'infiltration.

Les termes d'inertie étant négligés, la conservation des moments s'écrit (Wasantha Lal, 1998; Weill *et al.*, 2009) :

$$S_{f,i} = S_{0,i} - \frac{\partial h}{\partial i} = -\nabla_i (z_s + h). \quad (2.2)$$

Dans cette expression, l'indice i correspond aux directions x ou y , $S_{f,i}$ représente la pente de friction selon la direction i , $S_{0,i}$ la pente topographique et z_s la côte topographique.

De nombreuses expressions relient la vitesse à la pente de frottement (Kirkby, 1978). On peut les exprimer sous la forme générique suivante :

$$u_i = \alpha h^\beta \sqrt{S_{f,i}}, \quad (2.3)$$

où u_i est la composante selon la direction i de la vitesse locale moyennée sur la hauteur d'eau ($i = x$ ou y), et où les paramètres α et β caractérisent la loi de frottement. Un choix judicieux de α et de β fournit les expressions classiques de Darcy-Weisbach et de Manning-Strickler. Lorsque le gradient de hauteur de lame d'eau est faible devant la pente topographique du sol, on peut réécrire (Hromadka et Lai, 1985) :

$$u_i = -\frac{\alpha h^\beta}{\sqrt{S}} \nabla_i (z_s + h). \quad (2.4)$$

La combinaison des équations (2.1) et (2.4) fournit :

$$\frac{\partial h}{\partial t} - \vec{\nabla} \cdot \left(\frac{\alpha h^{\beta+1}}{\sqrt{S}} \right) \vec{\nabla} (z_s + h) = R - I. \quad (2.5)$$

Nous avons comparé quatre modèles caractérisés par une même loi de frottement Eq. (2.3) avec $\beta = 1/2$ et $\alpha = (8g/f(h))^{1/2}$, mais avec différentes expressions pour le coefficient de frottement $f(h)$. Ces quatre modèles sont les suivants :

(i) Modèle de Darcy-Weisbach (DW) : $f(h) = \text{cste}$.

Ce modèle correspond au modèle classique de Darcy-Weisbach, caractérisé par un seul paramètre : la valeur constante du coefficient de frottement f .

(ii) Modèle de Manning à n constant : $f(h) = 8gn^2/h^{1/3}$.

Ce modèle correspond au modèle classique de Manning, caractérisé par un seul paramètre : la valeur constante du coefficient de rugosité n généralement appelé coefficient de Manning.

(iii) Modèle de Manning à n variable : $f(h) = 8g(n(h))^2/h^{1/3}$.

Ce modèle est l'analogue du modèle de Manning mais avec un coefficient de rugosité $n(h)$ qui dépend de la hauteur d'eau (Kadlec, 1990; Tsihrintzis, 2001; Jain *et al.*, 2004). Nous avons choisi pour $n(h)$ la formulation proposée par Jain *et al.* (2004) :

$$n(h) = n_0 \left(\frac{h}{h_0} \right)^{-\epsilon} \quad \text{pour } h < h_0 \text{ et } n = n_0 \text{ pour } h \geq h_0. \quad (2.6)$$

Les trois paramètres de ce modèle sont la valeur minimale n_0 du coefficient de Manning, l'exposant ϵ et la hauteur d'eau h_0 à partir de laquelle n est supposé constant.

(iv) Modèle de Lawrence :

$f(h)$ est exprimé en fonction du taux d'inondation $\Lambda = h/h_c$, où h_c représente l'échelle caractéristique de la rugosité de surface. Cette approche intègre le fait que l'épaisseur de la lame d'eau est souvent de l'ordre de grandeur de la rugosité de surface. Lawrence (1997) distingue trois régimes différents d'écoulement en fonction des valeurs de ce taux d'inondation :

- Lorsque $h \ll h_c$, le régime est qualifié de « partiellement submergé » et f s'exprime ainsi :

$$f = \frac{8PC_D}{\pi} \min \left(\frac{\pi}{4}, \Lambda \right), \quad (2.7)$$

où C_D est le coefficient de traînée des éléments rugueux (pris égal à 1 par Lawrence (1997)) et où P est la portion de surface du sol (en %) couverte par les éléments grossiers.

- Dans le régime « marginalement submergé » ($h \approx h_c$), les éléments présents à la surface du

sol sont immergés mais la perturbation associée à leur présence affecte tout le champ vertical de vitesse de l'écoulement. Lawrence (1997) traduit ce comportement par une décroissance du coefficient de frottement avec le taux d'inondation selon la relation :

$$f = \frac{10}{\Lambda^2}. \quad (2.8)$$

- Dans le régime « totalement submergé » ($h \gg h_c$), les éléments présents à la surface du sol sont largement noyés sous la lame d'eau et Lawrence (1997) adopte l'approche hydraulicienne classique pour un écoulement turbulent :

$$f = \frac{1}{(1,64 + 0,803 \times \ln \Lambda)^2}. \quad (2.9)$$

Les deux paramètres du modèle de Lawrence sont donc le pourcentage de couverture P et l'échelle caractéristique de rugosité h_c .

Modélisation du transport de traceur

Le transport du traceur dans la lame d'eau qui ruisselle en surface est modélisé à l'aide d'une équation de type advection-diffusion moyennée sur l'épaisseur de la lame d'eau (Weill *et al.*, 2009) :

$$\frac{\partial hc}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (h \vec{u} c - \bar{D} \vec{\nabla} c) = -Ic, \quad (2.10)$$

où c est la concentration moyennée sur l'épaisseur de la lame d'eau, $\vec{u}$, la vitesse de ruissellement, $\bar{D}$ le tenseur de diffusion-dispersion et $-Ic$ le terme puits de concentration dû à l'infiltration. Les équations (2.5) et (2.10) sont résolues à l'aide du code Cast3M par une méthode des éléments finis mixtes hybrides (Dabbene, 1998; Bernard-Michel *et al.*, 2004).

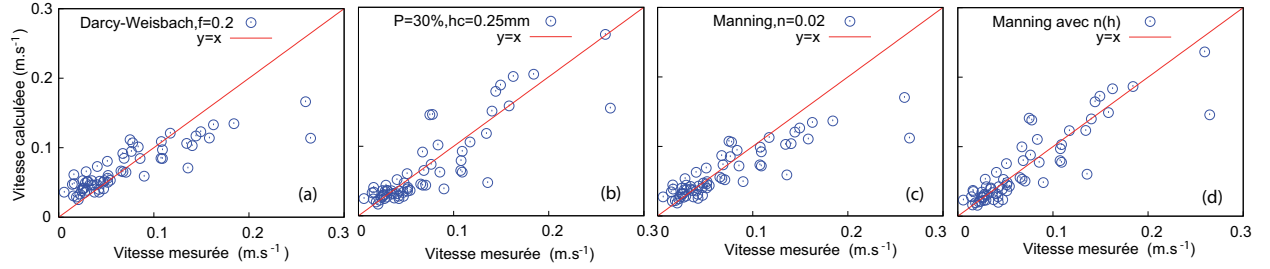
2.1.3 Validation du modèle sur une expérience de ruissellement et de traçage

Les quatre modèles de rugosité présentés au paragraphe précédent ont été testés en simulant des expériences réalisées par Olivier Planchon (IRD) à Thiès, au Sénégal, sur une parcelle de 40 m² et 1% de pente. Les expériences se sont déroulées sur plusieurs jours, avec successivement une étape de préparation du sol, des pluies simulées préliminaires, une expérience de traçage et une expérience de mesures des vitesses instantanées (Tatard *et al.*, 2008; Mügler *et al.*, 2011). La topographie a été mesurée avant et après chaque expérimentation, avec une précision verticale de 0,5 mm et une résolution horizontale de 5 cm longitudinalement et 2,5 cm transversalement. Les expériences de mesure de vitesses instantanées ont consisté à mesurer localement (en 62 points) les vitesses d'écoulement dans la lame d'eau une fois l'état permanent atteint (Tatard *et al.*, 2008). Les expériences de traçage, quant à elles, ont consisté à injecter un traceur constitué d'un mélange de sels non réactifs en différents points à la surface de la parcelle, puis à mesurer à l'exutoire la conductivité de l'eau ruisselée.

Dans un premier temps, nous avons simulé l'expérience de mesures de vitesses instantanées, comme cela a déjà été fait par Tatard *et al.* (2008). Les paramètres des modèles de rugosité ont été calibrés en minimisant l'erreur moyenne quadratique (RMSE pour « Root Mean Square Error ») entre les vitesses mesurées et celles simulées. Les valeurs obtenues sont résumées dans le tableau 2.1, où sont également rappelés les résultats de Tatard *et al.* (2008) obtenus avec le code PSEM 2D. Comme le montrent les figures 2.1(a) et (c), les modèles de Darcy-Weisbach et de Manning sous-estiment les vitesses les plus fortes. Ce comportement a déjà été observé par Tatard

TABLE 2.1 – Paramètres des différents modèles de rugosité optimisant l’erreur moyenne quadratique (RMSE) entre vitesses mesurées et simulées.

Modèle	Paramètres	RMSE (m s^{-1})
Darcy-Weisbach (DW)	$f = 0.2$	$3,2 \times 10^{-2}$
Lawrence	$P = 30\%$ et $h_c = 0,25 \text{ mm}$	$2,8 \times 10^{-2}$
Manning	$n = 0,02 \text{ s m}^{-1/3}$	$3,1 \times 10^{-2}$
Manning avec n variable	$n_0 = 0,013 \text{ s m}^{-1/3}$, $h_0 = 3 \text{ mm}$ et $\epsilon = 1/3$	$2,6 \times 10^{-2}$
PSEM 2D DW	$f = 0.26$	$3,1 \times 10^{-2}$
PSEM 2D DW f variable	voir Tatard <i>et al.</i> (2008)	$3,1 \times 10^{-2}$

FIGURE 2.1 – Vitesses simulées en fonction des vitesses mesurées pour les différents modèles de rugosité (a) Darcy-Weisbach, (b) Lawrence, (c) Manning et (d) Manning à n variable (Mügler *et al.*, 2011).

et al. (2008). Pour y remédier, ces auteurs proposent d’utiliser un coefficient de frottement de Darcy-Weisbach variable dans l’espace mais calibré de façon arbitraire. L’utilisation de modèles de rugosité qui dépendent de la hauteur d’eau (telles que les lois de Lawrence et de Manning à n variable) corrige naturellement ce problème (Figs. 2.1(b) et (d)). En effet, dans ces modèles, lorsque la hauteur d’eau est grande, le frottement diminue et donc la vitesse augmente.

La topographie et la rugosité de la surface de la parcelle ayant évolué sous l’effet de pluies intermédiaires, les valeurs des paramètres des modèles obtenues après optimisation sur les expériences de mesures de vitesses n’ont pas pu être utilisées pour les simulations numériques des expériences de traçage. Ces paramètres ont donc été à nouveau calibrés en utilisant les résultats expérimentaux de l’injection de traceur dans la rigole principale, là où la vitesse est la plus importante (point D sur la figure 2.2(b)). Les figures 2.2(a)-(b) représentent respectivement les variations du coefficient de frottement en fonction de la hauteur d’eau et la répartition spatiale de ce coefficient à la surface de la parcelle pour les quatre modèles après calibration. Les plus fortes variations des coefficients de frottement s’observent dans les zones de faible hauteur d’eau et c’est pour le modèle de Manning à n variable que les contrastes sont les plus élevés. Pour les modèles classiques de Darcy-Weisbach et de Manning à un seul paramètre, une diminution du coefficient de rugosité entraîne logiquement une augmentation des vitesses et donc une arrivée

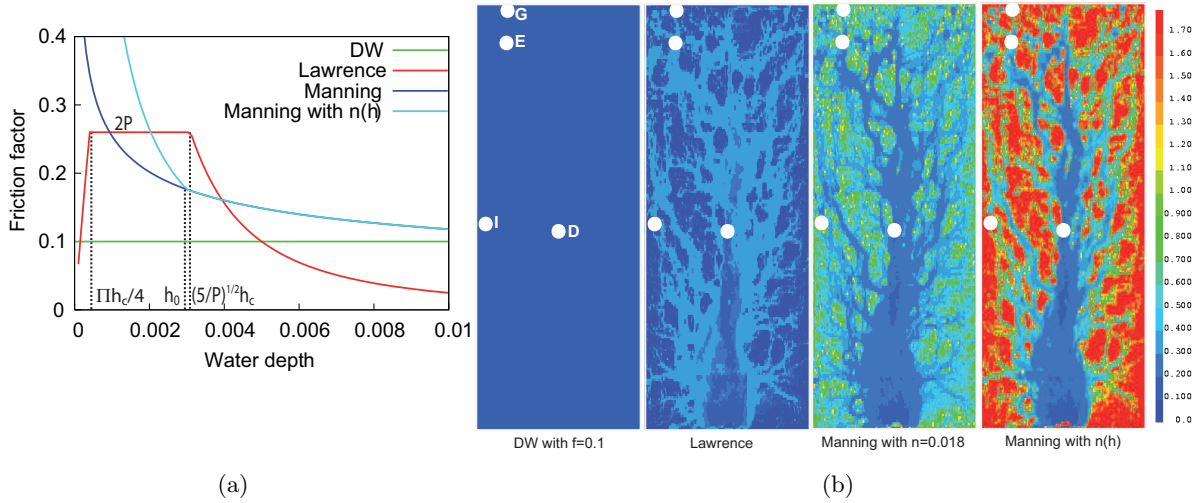


FIGURE 2.2 – Coefficients de frottement pour les différents modèles de rugosité testés (a) en fonction de la hauteur de la lame d'eau et (b) en fonction de la position à la surface de la parcelle. Les quatre points blancs, nommés D, E, G et I, indiquent les quatre zones d'injection de traceur discutées dans ce document. Les paramètres utilisés dans les modèles de rugosité correspondent à ceux obtenus après calibration de l'expérience d'injection en D.

TABLE 2.2 – Paramètres des différents modèles de rugosité optimisant la restitution du traceur injecté en différents points à la surface de la parcelle.

Point d'injection	Darcy-Weisbach	Lawrence		Manning	Manning avec $n = n(h)$		
	f	$h_c (mm)$	$P (\%)$	$n (s m^{-1/3})$	$n_0 (s m^{-1/3})$	$h_0 (mm)$	ϵ
D	0,1	0,5	0 – 100	0,018	0,018	3	1/3
E	0,2	0,5	13	0,018	0,018	3	1/3
G	0,4	0,5	30	0,025	0,018	3	1/3
I	0,4	0,5	30	0,025	0,018	3	1/3

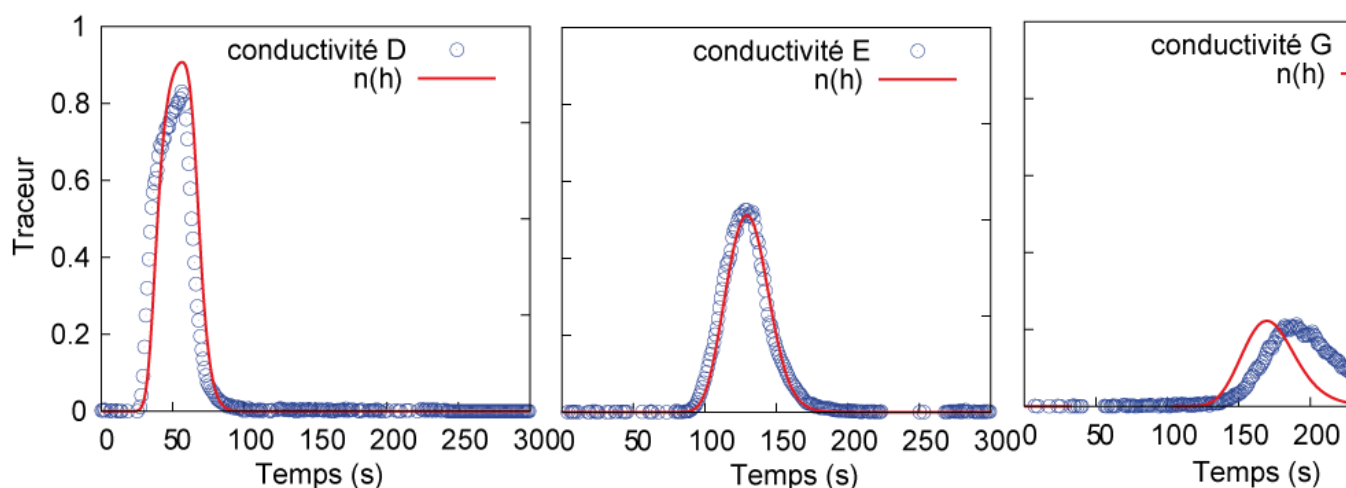


FIGURE 2.3 – Courbes de restitution de traceur à l'exutoire de la parcelle après injection aux points D, E, G et I. Les points bleus correspondent aux mesures de conductivité et les courbes rouges aux simulations avec le modèle de Manning avec $n(h) = 0,018 \times (h/0,003)^{-1/3}$.

plus rapide du traceur à l'exutoire. Lorsqu'il est injecté au point D dans la rigole centrale, le traceur est transporté dans une lame toujours épaisse et donc dans des zones où le modèle de Lawrence est indépendant du paramètre P (régime « totalement submergé »). Pour la même raison, dans le modèle de Manning à n variable, les fortes hauteurs d'eau impliquent $n(h) = n_0$, et donc un comportement analogue à celui du modèle classique de Manning. On retrouve donc logiquement la même valeur de coefficient de rugosité pour les deux modèles (Tab. 2.2).

Les différents paramètres des quatre modèles de rugosité sont ensuite calibrés à l'aide des autres expériences de traçage aux points E, G et I (Tab. 2.2). Pour les lois de Darcy-Weisbach et de Manning, chaque calibration conduit à une valeur différente du paramètre. Selon que le traceur est injecté dans une rigole (points D et E) ou sur un monticule (points G et I), le coefficient de frottement est faible ou fort. Le modèle de Lawrence, quant à lui, nécessite différentes valeurs du pourcentage P de couverture du sol par les éléments les plus rugueux. Finalement, seul le modèle de Manning à n variable permet de calibrer l'ensemble des expériences de traçage avec le même jeu de paramètres (Fig. 2.3). De plus, les valeurs obtenues pour les paramètres h_c et ϵ sont les mêmes que celles ayant permis de calibrer l'expérience de mesures des vitesses instantanées. Seul le paramètre n_0 varie légèrement d'un type d'expérience à l'autre et traduit la diminution de la rugosité en surface de parcelle après plusieurs pluies successives. Ce modèle plutôt phénoménologique semble donc décrire correctement le phénomène de rugosité dépendant de la hauteur de lame d'eau.

Finalement, les expériences sur parcelle sous pluie simulée de mesure des vitesses de ruissellement et de traçage nous ont permis de tester quatre modèles reliant vitesse, rugosité et hauteur de lame d'eau. La confrontation entre les expériences et les simulations permet de tirer les conclusions suivantes :

- Les deux modèles couramment utilisés et qui reposent sur un coefficient de frottement ou de rugosité constant (modèles de Darcy-Weisbach et de Manning) sous-estiment les vitesses élevées.
- Le modèle de Lawrence permet de modéliser de façon satisfaisante les vitesses locales

instantanées mais, par contre, un même jeu de paramètres ne permet pas de restituer les différentes expériences de traçage. Les hétérogénéités au sein de la parcelle peuvent expliquer la nécessité d'utiliser des jeux de paramètres dépendant du point d'injection considéré.

- Seul le modèle de Manning avec un coefficient de Manning dépendant de la hauteur de la lame d'eau donne de bons résultats à la fois pour les expériences de mesures de vitesses et pour celles de traçage. De plus, les valeurs obtenues pour les paramètres du modèle peuvent être corrélées à des grandeurs physiques comme la granulométrie du sol.

Cette confrontation entre expériences et modèles illustre la pertinence de réaliser des expériences à petite échelle et correctement instrumentées ; de telles expériences permettent de remettre en question des modèles largement utilisés dans la communauté scientifique et d'en bâtir et d'en valider de nouveaux. Dans le cas présent, les expériences de l'IRD ont permis de montrer les limites des modèles de Darcy-Weisbach et de Manning et la nécessité de considérer un coefficient de rugosité variable en fonction de la hauteur de la lame d'eau.

2.2 Modélisation des écoulements souterrains

2.2.1 Problématique du stockage de déchets radioactifs

Le concept de stockage de déchets nucléaires en formation géologique profonde repose sur la mise en place d'une succession de barrières : le colis de déchets nucléaires, son surconteneur, la barrière ouvragée et la roche hôte. Les radioéléments sont initialement confinés au sein de la première barrière (colis, surconteneur) mais lorsque le colis est attaqué par l'eau du site de stockage, des radioéléments peuvent s'en échapper. Le rôle de la barrière ouvragée, puis de la roche hôte, est de retarder la migration des radioéléments et ainsi de limiter leur flux vers l'hydrosphère et la biosphère. L'enjeu sociétal majeur du stockage en formation géologique profonde réside dans le fait qu'il faut prendre en compte de très grandes échelles de temps (plusieurs dizaines, voire centaines de milliers d'années) et d'espace (plusieurs km²). La modélisation et les simulations numériques associées sont donc des outils essentiels pour comprendre les comportements géochimiques et les mécanismes de transport dans ces systèmes complexes et pour prédire leur évolution future.

Dans le cadre des études concernant le stockage en profondeur des déchets nucléaires, il est donc essentiel de bien comprendre les phénomènes possibles de transfert ou migration dans les formations géologiques. Parce que très peu perméables, les formations géologiques argileuses ont été retenues comme bonnes candidates pour le stockage et ont par conséquent fait l'objet de nombreuses études. Aussi, pour pouvoir prévoir leur réponse à la présence d'un stockage, il est nécessaire de caractériser les propriétés physiques et chimiques de ce type de roches, telles que la perméabilité, la porosité et la conductivité thermique. J'ai ainsi eu l'opportunité de travailler sur différents sites argileux, comme (i) le site de Bure (Meuse/Haute-Marne), où l'Agence Nationale pour la gestion des Déchets RAdioactifs (ANDRA) a implanté son laboratoire de recherche souterrain destiné aux recherches sur le stockage des déchets radioactifs en couche géologique profonde, (ii) le site du Mont Terri, dans les Alpes suisses, où la NAGRA (l'équivalent suisse de l'ANDRA) réalise des expériences pour déterminer les propriétés et le comportement des roches argileuses sous contrainte hydraulique, thermique et géochimique, et (iii) le site de Tournemire (Aveyron) où l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN) a aménagé une station expérimentale dans un ancien tunnel ferroviaire désaffecté creusé dans une épaisse formation argileuse.

En ce qui concerne le site de Bure, j'ai réalisé la simulation du fonctionnement global d'un site de stockage en m'intéressant au relâchement d'iode 129. Ce travail a permis de confronter le code Cast3M à une configuration réaliste 3D de calcul de transport de radioéléments, à la fois autour d'un ouvrage (une alvéole de stockage) mais aussi dans le milieu géologique constitué de différentes couches, elles-mêmes constituées de zones aux propriétés hydrauliques et de transport à très fort contraste spatial (plusieurs ordres de grandeur). Les problèmes numériques rencontrés ont mis en évidence certaines limites du code Cast3M (problèmes de monotonie, de temps calculs) et ont servi de base pour le développement de nouveaux schémas numériques comme un schéma de convection décentré de type volumes finis pour mieux décrire les écoulements dans les couches géologiques les plus perméables. Les résultats ont permis de participer avec succès aux benchmarks internationaux organisés par le Groupement de Recherche en Modélisations Mathématiques et Simulations Numériques liées aux problèmes de gestion des déchets nucléaires (benchmarks COUPLEX du GdR Momas) (Bernard-Michel *et al.*, 2004).

Sur le site suisse du Mont Terri, j'ai réalisé à l'aide du code Cast3M la modélisation 3D détaillée de l'expérience HE-C de diffusion thermique réalisée par l'ANDRA. Cette expérience a consisté à mesurer en continu pendant plusieurs mois l'élévation de la température en plusieurs points autour d'un élément chauffant introduit dans le massif argileux. L'utilisation combinée de techniques de simulations inverses et de réseaux de neurones (logiciels KALIF et NEMO développés au CEA/DEN) a permis de déterminer les conductivités thermiques longitudinales et transversales du milieu argileux. Ayant choisi d'axer ce chapitre sur l'hydrologie de surface et souterraine plutôt que sur le couplage avec la thermique, je ne présenterai pas ces travaux et renvoie le lecteur intéressé aux deux articles publiés sur ce sujet (Mügler *et al.*, 2006; Cartalade *et al.*, 2007).

Dans ce mémoire, j'ai en effet choisi de présenter un de mes travaux de modélisation qui illustre une fois encore l'importance de la synergie entre modélisation, simulations numériques et expériences. Ce travail s'inscrit dans la problématique du creusement d'un site de stockage de déchets nucléaires en couche géologique profonde et s'intéresse plus précisément aux modifications de l'hydraulique souterraine du site induites par ce creusement.

2.2.2 Modélisation des écoulements autour d'un ouvrage

Le site de Tournemire a été retenu par l'IRSN pour aménager une installation expérimentale car il présente l'intérêt d'être constitué d'une épaisse formation argileuse, d'âge jurassique, de plus de 250 mètres d'épaisseur, surmontée par 270 mètres de calcaires. Les conditions géotechniques et hydrogéologiques y sont par conséquent assez représentatives des conditions réelles d'une argile qui serait située en profondeur pour un vrai stockage. La station expérimentale a été installée dans un ancien tunnel ferroviaire creusé en 1888. En 1996, soit plus d'un siècle après l'ouverture du tunnel, deux galeries ont été creusées perpendiculairement à l'axe du tunnel. Les longueur, hauteur et largeur de chacune de ces galeries sont respectivement égales à 30 m, 4 m et 3,7 m.

L'évolution de la charge hydraulique autour des ouvrages est modélisée à l'aide de l'équation de diffusivité (de Marsily, 1994) :

$$S_s \frac{\partial}{\partial t} h - \vec{\nabla} \cdot (\bar{\bar{K}} \vec{\nabla} h) = 0, \quad (2.11)$$

où h est la charge hydraulique, S_s , le coefficient d'emmagasinement et $\bar{\bar{K}}$, le tenseur de perméabilité. Le champ de perméabilité hétérogène (de 10^{-14} à 10^{-11} ms⁻¹) a été modélisé en se basant à la fois sur des mesures *in situ* et sur des mesures en laboratoire sur échantillons de roches.

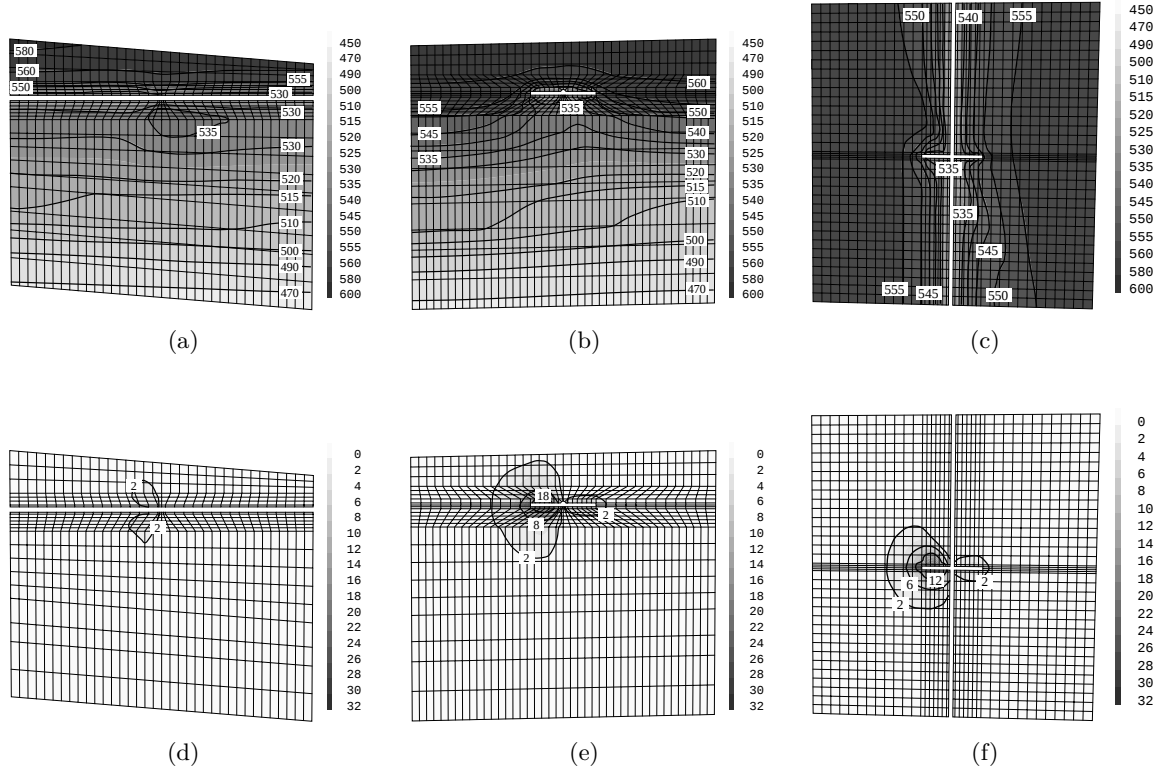


FIGURE 2.4 – Cartes des charges hydrauliques ((a)-(c)) et cartes des variations de charges ((d)-(f)) cinq ans après le creusement des galeries du site de Tournemire, (a) et (d) dans le plan vertical contenant l'axe du tunnel, (b) et (e) dans le plan vertical contenant l'axe des galeries et (c) et (f) dans le plan horizontal contenant les ouvrages (Mügler *et al.*, 2004a).

Il tient compte de la présence d'une zone fracturée. L'équation (2.11) est résolue avec le code Cast3M en utilisant la méthode des éléments finis mixtes hybrides (Dabbene, 1998). Le maillage 3D utilisé est constitué d'environ 35 000 mailles de tailles variant de 8 m^3 à 3000 m^3 à mesure qu'on s'éloigne des ouvrages (Mügler *et al.*, 2004a).

Différentes simulations ont été réalisées : (i) une première simulation du milieu géologique seul, pour avoir un état du régime hydraulique permanent avant creusement du tunnel, (ii) une seconde simulation après creusement du tunnel pour avoir un état du nouveau régime hydraulique permanent et (iii) une troisième simulation après creusement des galeries pour avoir l'état instationnaire actuel. La figure 2.4 illustre la perturbation du champ de charge hydraulique induite cinq ans après le creusement des galeries. Ces figures montrent clairement l'extension dans le temps de la zone perturbée autour des ouvrages. La zone perturbée est plus étendue à l'ouest où l'argile est fracturée et donc plus perméable. Selon l'équation (2.11), la longueur caractéristique de diffusion de la perturbation est de l'ordre de $\sqrt{Dt}$ où $D = K/S_s$ est la diffusivité hydraulique (m^2s^{-1}). Après cinq ans, cette longueur théorique vaut respectivement 1,8 et 18 m dans les zones non fracturée et fracturée, valeurs en bon accord avec celles trouvées par la simulation (Figs 2.4(e)-(f)). Par contre, suffisamment loin des ouvrages, on vérifie que le milieu géologique n'a pas été perturbé. Les résultats des simulations ont pu être comparés aux mesures de charges hydrauliques (Boisson *et al.*, 1998). La figure 2.5 montre le profil vertical

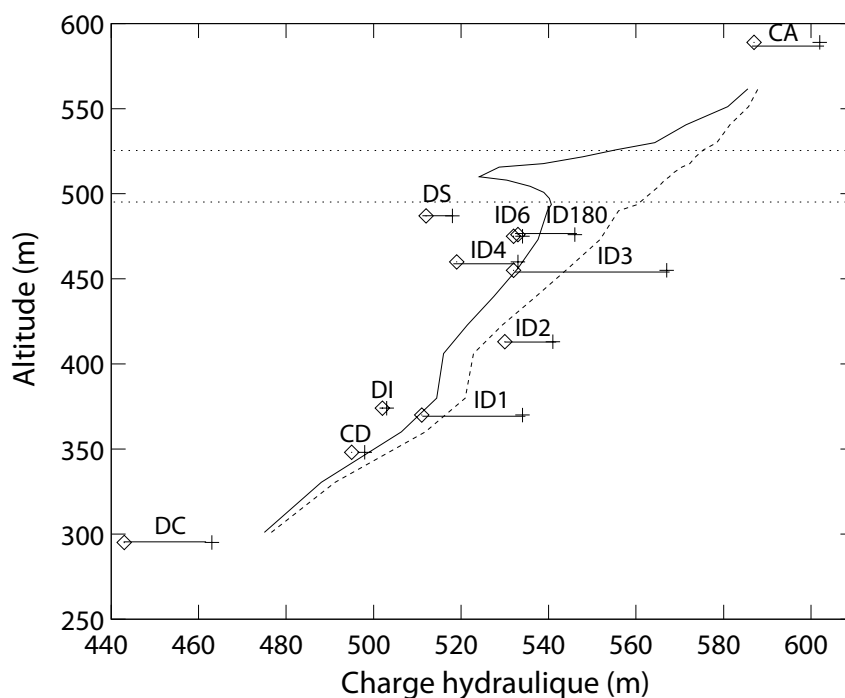


FIGURE 2.5 – Profils verticaux des charges hydrauliques calculées ou mesurées à l’aplomb de la station expérimentale. Les courbes représentent les charges simulées avant (courbe en pointillés) et longtemps après (courbe en traits continus) le creusement du tunnel. Les symboles correspondent aux mesures expérimentales effectuées plus d’un siècle après creusement (Mügler *et al.*, 2004a).

de la charge hydraulique à l’aplomb de la station expérimentale, avant (courbe en pointillés) et après (courbe en traits continus) le creusement du tunnel. Les symboles représentent les mesures expérimentales parfois entâchées d’importantes barres d’erreurs. Les résultats des simulations s’inscrivent bien dans ce nuage de points expérimentaux et montrent clairement la décompression hydraulique du milieu après creusement du tunnel. La zone la plus affectée (zone délimitée par les deux droites horizontales en pointillés sur la figure 2.5) a une extension verticale de 35 m, soit environ 15 m de part et d’autre du tunnel, ce qui correspond à environ trois fois la hauteur du tunnel.

Ce travail de modélisation, certes assez technique, a été l’occasion de tester les capacités du code Cast3M pour simuler les écoulements souterrains. En modélisant l’impact hydraulique sur la formation argileuse du creusement des ouvrages de la station expérimentale de Tournemire, nous avons pu mieux comprendre le comportement des roches argileuses soumises à une décompression hydraulique. La simulation numérique a de plus permis de définir, en parfaite synergie avec les équipes sur le terrain, les zones géographiques les plus pertinentes pour les campagnes ultérieures de mesures de charges hydrauliques (Mügler *et al.*, 2004a).

Modélisation du transport réactif en milieu poreux

Dans ce chapitre, je présente certains de mes travaux dans le domaine de la modélisation du couplage transport–chimie en milieux poreux que j’ai réalisés d’abord à la direction de l’Énergie Nucléaire (DEN) puis à la Direction des Sciences de la Matière (DSM) du CEA.

La problématique du transport réactif dans la description de l’évolution d’un site de stockage ou d’entreposage de déchets nucléaires est fondamentale. En effet, la dégradation des colis de déchets, le relâchement des radioéléments et leur migration à travers les barrières ouvragées ou géologiques sont essentiellement gouvernés par des phénomènes chimiques ou géochimiques en association aux mécanismes de transport. Ces deux phénomènes sont intimement couplés, les aspects chimiques intervenant comme des contraintes sur les quantités transportées. Dans un premier temps, je me suis intéressée à ce problème à l’échelle du colis de déchets nucléaires et j’ai développé un outil spécifique de modélisation de la dégradation de ces colis au cours de leur entreposage ou stockage. Le modèle repose sur des expériences de laboratoire qui ont mis en évidence le rôle prépondérant d’une espèce chimique (en l’occurrence le calcium) sur la dégradation de certains colis de déchets. La modélisation du transport réactif a alors pu être fortement simplifiée et se réduire au transport des ions calcium en solution (cf. §3.1.1).

Pour modéliser le devenir des radionucléides à l’échelle d’un site de stockage, le Commissariat à l’Énergie Atomique (CEA), l’Agence Nationale pour la Gestion des Déchets Radioactifs (ANDRA) et Électricité de France (EdF) ont conjointement développé un outil numérique de simulation du transport réactif dans le cadre de la plate-forme logicielle ALLIANCES. L’objectif d’ALLIANCES est de devenir l’outil industriel de capitalisation des connaissances dans le domaine de la simulation et de la R&D pour le stockage, l’entreposage et la modélisation de la dégradation des colis de déchets nucléaires. Je présente rapidement cet outil dans le paragraphe 3.1.2 ainsi que sa validation à laquelle j’ai activement participé.

Le module de couplage géochimie-transport de la plate-forme numérique ALLIANCES n’étant pas spécifique aux calculs de sûreté des sites de stockage et d’entreposage de déchets nucléaires, j’illustrerai dans le paragraphe 3.2 son intérêt pour modéliser et ainsi mieux comprendre le comportement de systèmes géochimiques naturels.

Les perspectives que j’envisage dans ce domaine seront évoquées dans la troisième et dernière partie de ce mémoire. Elles concernent l’apport de la modélisation du transport réactif en milieu poreux à la compréhension des échanges fluides-roches au niveau des sites hydrothermaux océaniques (cf. Partie 3, §2).

3.1 Du colis de déchets nucléaires au site de stockage

3.1.1 À l'échelle du colis : modèle simplifié de dégradation

Dans le cadre des études concernant la sûreté du stockage et de l'entreposage des déchets nucléaires, il est important de prévoir le devenir des radionucléides (RN) lorsque les colis de déchets nucléaires qui les contiennent sont stockés ou entreposés. Une des premières étapes consiste donc à étudier le comportement à long terme d'un colis de déchets dans un environnement physico-chimique donné. Les colis de déchets auxquels je me suis intéressée sont constitués d'une matrice cimentaire dans laquelle ont été coulés des RN. À cause de l'alcalinité du ciment, les RN précipitent dans la matrice (Wieland et Van Loon, 2003) et la concentration des RN dissous dans la solution interstitielle de la matrice cimentaire est dictée par la constante de solubilité. Ces colis de déchets sont ensuite mis dans un container en béton, lui-même à base cimentaire. Rappelons ici qu'un béton à base cimentaire est un matériau composé de granulats (sable, gravillons) agglomérés par du ciment. Pour simplifier les notations, j'appellerai par la suite « colis de béton » l'ensemble constitué par la matrice cimentaire riche en RN et le container en béton.

Différents facteurs interviennent dans la dégradation des colis de béton : agression chimique, mécanique, thermique. Je me suis intéressée dans un premier temps à l'agression chimique et plus précisément à la lixiviation. Dans les concepts de stockage et entreposage de déchets radioactifs de faible et moyenne activités, il est en effet prévu que les structures en béton soient en contact avec des solutions aqueuses sur de longues périodes de temps (Harris *et al.*, 1998). La lixiviation d'un ciment hydraté est due aux gradients de concentration entre la solution interstitielle et la solution agressive. Ces gradients entraînent la diffusion des espèces chimiques dissoutes présentes dans le matériau. Les équilibres chimiques du système en sont modifiés et ces modifications chimiques sont à leur tour à l'origine de la dissolution de certaines phases minérales. Il est bien connu que la lixiviation du béton par l'eau pure ou par une solution ionique peut fortement modifier ses propriétés de microstructures (Adenot, 1992; Adenot et Buil, 1992; Carde *et al.*, 1996; Carde et François, 1997; Planel, 2002; Bary et Le Bescop, 2004), principalement à cause de la dissolution des hydroxydes de calcium (portlandite), des phases aluminates (monosulfoaluminate et ettringite) et des C-S-H (silicate de calcium hydraté) de la pâte de ciment. Les propriétés mécaniques et de confinement du béton peuvent alors en être fortement affectées (Tognazzi, 1998; Carde *et al.*, 1996; Carde et François, 1997; Bernard *et al.*, 2003; Heukamp *et al.*, 2003).

Dans un second temps, j'ai également tenu compte des agressions thermiques et mécaniques en étudiant l'impact de la fracturation du container en béton sur le relâchement de RN.

Modélisation simplifiée de la décalcification du béton

Comme l'attestent de nombreux travaux (Berner, 1988; Adenot, 1992; Höglund, 2001; Nonat *et al.*, 2001; Harris *et al.*, 2002; Albert, 2002; Kamali, 2003), la dissolution des phases solides principales qui constituent les ciments hydratés (portlandite, phases aluminates et C-S-H) peuvent être calculées simplement en fonction de la concentration en calcium dans la solution interstitielle, C_{Ca} : si la concentration en calcium diminue, (en partant de l'équilibre chimique), la portlandite se dissout en premier, puis les phases aluminates et enfin les C-S-H. De plus, comme le calcium est surtout présent dans la portlandite et dans les C-S-H, une courbe unique reliant la concentration C_{Ca} à ces phases solides principales peut être utilisée pour décrire l'aspect chimique de la lixiviation du ciment (Mainguy *et al.*, 2000), i.e., $S_{Ca}(C_{Ca})$. Par exemple, la figure 3.1 montre l'évolution de la concentration en calcium S_{Ca} dans les principales phases minérales du béton (C-S-H et portlandite) en fonction de la concentration en calcium C_{Ca} dans

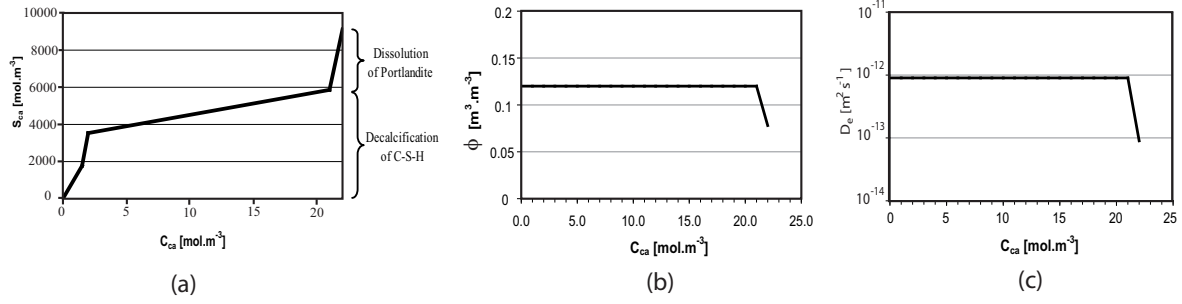


FIGURE 3.1 – Évolution en fonction de la concentration en calcium C_{Ca} dans la solution interstitielle de : (a) la concentration en calcium S_{Ca} dans les principales phases minérales, (b) la porosité ϕ , et (c) le coefficient de diffusion effective D_e . Cas d'un ciment CEM V.

la solution interstitielle, dans le cas d'un ciment CEM V (Ciment au Laitier et aux Cendres). Cette courbe est basée sur les résultats expérimentaux d'équilibres chimiques dans les matériaux cimentaires (Berner, 1988; Höglund, 2001; Nonat *et al.*, 2001; Harris *et al.*, 2002; Chen *et al.*, 2004) : la portlandite se dissout quand C_{Ca} décroît de 22 à 21 mol m^{-3} et les C-S-H se décalcifient progressivement quand C_{Ca} décroît de 21 à 0 mol m^{-3} . À mesure que les minéraux se dissolvent, la porosité ϕ du matériau augmente et donc la diffusion effective D_e augmente également. Dans le modèle, ces modifications des propriétés physiques du ciment sont prises en compte par une variation de la porosité et du coefficient de diffusion effective en fonction de la concentration en calcium. Les figures 3.1(b)-(c) montrent les relations $\phi(C_{Ca})$ et $D_e(C_{Ca})$ obtenues expérimentalement pour le ciment CEM V (Adenot, 1992; Mainguy *et al.*, 2000; Lovera, 1999).

Finalement, la dégradation de la pâte de ciment peut être décrite en fonction d'une seule variable, la concentration C_{Ca} de calcium dans la solution interstitielle. En écrivant alors l'équation de conservation du calcium et en utilisant la loi de Fick, C_{Ca} est solution de l'équation (Adenot, 1992) :

$$\frac{\partial}{\partial t} \phi C_{Ca}(x, t) = \vec{\nabla} \cdot (D_e \vec{\nabla} C_{Ca}(x, t)) - \frac{\partial}{\partial t} \phi S_{Ca}(x, t), \quad (3.1)$$

où ϕ est la porosité, $C_{Ca}(x, t)$, la concentration de calcium en solution (en mol par m^3 de solution), $S_{Ca}(x, t)$, la concentration de calcium en phase solide (en mol par m^3 de solution+solide) et D_e , le coefficient de diffusion effective du calcium dans la solution (en $\text{m}^2.\text{s}^{-1}$). La concentration de calcium en phase solide, S_{Ca} , la porosité ϕ et le coefficient de diffusion effective D_e sont parfaitement définis par la seule connaissance de la concentration de calcium en solution C_{Ca} (cf. Figs. 3.1). Le fait que ces différents coefficients soient tous des fonctions de l'inconnue C_{Ca} confère un caractère fortement non linéaire à l'équation (3.1).

Pour résoudre l'équation (3.1), j'ai utilisé la formulation des éléments finis mixtes hybrides (EFMH) implantée dans Cast3M (Dabbene, 1998), ainsi qu'un schéma implicite en temps. Les termes non linéaires sont calculés en utilisant la méthode du point fixe. Notons ici que la méthode des EFMH n'est monotone que sous certaines conditions. Ainsi, pour des valeurs faibles du nombre de Fourier de maille, ($Fo < 1/6$), des oscillations spatiales des flux ou des concentrations peuvent apparaître. On peut alors obtenir des valeurs de concentrations négatives (on dit alors qu'il y a non respect du principe de positivité) ou des valeurs de concentrations supérieures au maximum physique (on parle alors de non respect du principe du maximum). Cependant, la monotonie de la méthode des EFMH peut être assurée en utilisant une méthode de condensation

de la matrice masse des flux. Cette méthode a été implantée dans la version de développement de Cast3M pour le cas particulier de maillages structurés constitués d'héxaèdres parallélépipédiques rectangles par Christophe Le Potier (CEA/DEN) qui m'en a fait bénéficier.

L'outil de simulation numérique a été validé sur des cas académiques de diffusion pure dont on connaît la solution analytique (Crank, 1975). Il a ensuite été utilisé pour simuler des expériences de dégradation de la pâte cimentaire par de l'eau déminéralisée ou par une solution contenant du nitrate d'ammonium.

Dans ce mémoire, j'ai choisi d'illustrer ce travail de modélisation à l'aide d'une application qui a fait l'objet d'un article (Bejaoui *et al.*, 2007) : il s'agit de l'étude de l'impact relatif de la lixiviation et de la fissuration du container en béton sur le relâchement des radionucléides. En collaboration avec Benoît Bary du CEA, j'ai par ailleurs modélisé et simulé un autre type de dégradation des colis de béton : la dégradation par carbonatation atmosphérique. Parce qu'il faut faire des choix, je n'en parlerai pas ici et renvoie le lecteur intéressé à l'article sur le sujet (Bary et Mügler, 2006).

Relâchement de radionucléides par un container en béton

Nous avons modélisé la migration des RN dans le matériau poreux que constitue le container en béton en faisant les hypothèses suivantes : le transport de RN est supposé purement diffusif et les seuls mécanismes non conservatifs pris en compte sont les phénomènes d'adsorption-désorption et de décroissance radioactive. Si l'on suppose de plus l'adsorption instantanée, linéaire et réversible, alors la masse F de RN adsorbés par unité de masse du solide vérifie $F = K_d C_{RN}$, où K_d est le coefficient de distribution ou pente de l'isotherme d'adsorption. L'équation de transport des RN s'écrit alors

$$\frac{\partial}{\partial t} (\phi + (1 - \phi)\rho_s K_d) C_{RN} = \vec{\nabla} \cdot D_e \vec{\nabla} C_{RN} - \lambda (\phi + (1 - \phi)\rho_s K_d) C_{RN}. \quad (3.2)$$

Dans cette équation, λ est la constante de décroissance radioactive du RN et les coefficients de transport, la porosité ϕ et la diffusion effective D_e , sont les mêmes que ceux dans l'équation (3.1). Comme pour l'équation (3.1), le schéma numérique spatial est de type EFMH. Les équations de transport (3.1) et (3.2) sont résolues de façon séquentielle : on résout d'abord l'équation de lixiviation (3.1) en utilisant une méthode du point fixe pour les termes non linéaires ; les paramètres de transport ainsi calculés sont ensuite utilisés pour résoudre l'équation (3.2) de transport des RN qui, elle, est une équation linéaire.

À l'aide de Cast3M, nous avons étudié l'impact de plusieurs scénarios de dégradation du container en béton sur le relâchement de différents RN (Bejaoui *et al.*, 2007). Nous nous sommes particulièrement intéressés aux effets de lixiviation de la pâte cimentaire et à la présence de microfissures dans le béton, dues par exemple à des effets thermiques. Il ressort de cette étude que la dégradation par lixiviation joue un rôle important sur le relâchement des RN dont la durée de vie est longue. Par contre, quel que soit le RN, l'effet des fissures est plus important que celui de la lixiviation. De plus, le paramètre le plus influent sur l'augmentation du flux de RN relâché par le container s'est avéré être la profondeur de fissuration (Bejaoui *et al.*, 2007).

3.1.2 À l'échelle du site : la plate-forme numérique ALLIANCES

Modélisation du couplage géochimie-transport

Pour modéliser le transport réactif dans différents compartiments (naturels ou non) d'un site de stockage, un module de transport réactif a été développé dans la plate-forme numérique ALLIANCES.

À l'échelle du site, la modélisation du transport réactif consiste à décrire l'évolution spatiale et temporelle d'un ensemble d'espèces chimiques, d'une part, soumises aux phénomènes de transport par convection, diffusion et/ou dispersion en milieu poreux et, d'autre part, interagissant entre elles via des réactions chimiques en phases liquide, solide ou sorbée. La phénoménologie chimique prise en compte comprend la spéciation aqueuse, la précipitation/dissolution à l'équilibre ou sous cinétique, l'échange d'ions et la complexation de surface. Le modèle physique correspondant est constitué d'un ensemble d'équations aux dérivées partielles décrivant le transport des espèces en phase liquide couplé à un système algèbro-différentiel décrivant les interactions des espèces entre elles via les réactions chimiques. Pour une espèce chimique i , l'équation de transport s'écrit :

$$\frac{\partial}{\partial t} \phi C_i = \vec{\nabla} \cdot (\bar{\bar{D}}_i \vec{\nabla} C_i - \vec{u} C_i) = \phi R_i(C_{1...n}) + S_i, \quad (3.3)$$

où C_i est la concentration totale en phase aqueuse, ϕ , la porosité, $\vec{u}$, la vitesse de Darcy, D_i , le tenseur de diffusion-dispersion, R_i , le terme de réactions chimiques, et S_i , le terme source. Dans notre modélisation, la porosité est constante et le coefficient de transport D_i est le même pour toutes les espèces. La vitesse de Darcy est obtenue par résolution préalable de l'équation de Darcy stationnaire :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{u} = 0, \text{ avec } \vec{u} = -\bar{\bar{K}} \vec{\nabla} h, \quad (3.4)$$

où h et $\bar{\bar{K}}$ représentent respectivement la charge hydraulique et le tenseur de perméabilité.

L'algorithme de couplage entre la chimie et le transport est de type séquentiel itératif. Les codes de géochimie mis en oeuvre sont PhreeqC (Parkhurst et Appelo, 1999) et Chess (van der Lee et De Windt, 1999). Ceux de transport sont Cast3M (Dabbene, 1998; Bernard-Michel *et al.*, 2004) et MT3D (Zheng et Wang, 1999). Les schémas de discrétisation spatiale sont des volumes finis sur maillages structurés pour MT3D et des éléments finis mixtes hybrides et/ou des volumes finis sur maillages non structurés pour Cast3M. Les géométries peuvent être indifféremment 1D, 2D ou 3D.

Validation du transport réactif

Je n'ai pas participé au travail purement informatique et numérique du développement de la plate-forme ALLIANCES mais j'ai par contre piloté avec Philippe Montarnal (CEA/DEN) la validation du couplage entre les modules de géochimie et ceux de transport. Cette validation a été réalisée en simulant différentes configurations pour lesquelles nous disposons soit d'une solution analytique, soit de résultats expérimentaux, soit de résultats numériques obtenus avec d'autres codes. Pour qu'elles permettent réellement de valider le couplage entre le transport et la chimie, toutes les configurations étudiées faisaient nécessairement intervenir un échange entre les espèces chimiques en solution et les espèces fixées (phénomènes de dissolution/précipitation ou d'adsorption). De plus, nous nous sommes assurés qu'elles permettaient de couvrir l'ensemble des phénoménologies que l'on peut classiquement traiter avec les codes de géochimie et ceux de transport.

Ont ainsi été simulées des configurations pour lesquelles on dispose de solution analytique (Mügler *et al.*, 2004b) :

- Précipitation d'un minéral avec ou sans cinétique, couplée à un transport diffusif 1D ;
- Dissolution de quartz par de la soude en géométrie 1D ou 2D ;
- Migration par convection et dispersion de césium dans de l'argile.

D'autres configurations correspondant à des benchmarks ou à des configurations typiques de celles rencontrées dans le domaine du stockage de déchets ont également été simulées (Montarnal *et al.*, 2007) :

- Diffusion de radionucléides dans une argile ayant une forte capacité d'échange cationique. Ce cas-test a permis de valider le couplage entre l'adsorption par échange ionique et le transport par diffusion.
- Lixiviation d'une zone riche en UO_2 par de l'eau de pluie contenant de l'oxyde dissous (De Windt *et al.*, 2003). Ce cas-test a permis de valider le couplage entre les réactions d'oxydo-réduction, celles de précipitation/dissolution (à l'équilibre ou avec cinétique) et le transport par convection et dispersion en géométrie 2D.
- Dissolution d'un béton par une eau argileuse (Read et Falck, 1996). A ainsi été testée l'aptitude du code couplé à bien décrire un front raide de dissolution et son évolution au cours de son avancée dans le milieu poreux.

3.2 Transport réactif dans des systèmes géochimiques naturels

Le module de couplage géochimie-transport de la plate-forme numérique ALLIANCES n'est pas spécifique aux calculs de sûreté des sites de stockage et d'entreposage de déchets nucléaires. Dans ce paragraphe, je voudrais illustrer son intérêt pour d'autres applications que celles pour lesquelles il a été bâti. La première application concerne un travail réalisé à la DEN en collaboration avec Michaël Descostes sur l'influence des conditions d'oxydo-réduction du milieu sur la migration de l'uranium. La seconde application a été réalisée au LSCE où, avec l'accord de la DEN et de l'ANDRA, j'ai installé ALLIANCES sur le réseau informatique. Elle concerne le recyclage de la matière organique dans les sédiments en milieu côtier. J'ai retenu ces deux applications car elles illustrent une fois de plus l'intérêt d'une parfaite synergie entre expériences et modélisations pour la compréhension fine de phénomènes physiques et géochimiques. Chacune de ces applications a fait l'objet d'un article (Montarnal *et al.*, 2007; Mügler *et al.*, 2012) que j'ai joints en Annexes D et E de ce mémoire.

3.2.1 Influence des conditions redox sur la migration de l'uranium

Problématique

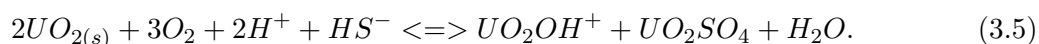
Cette étude est consacrée à la caractérisation de la migration de l'uranium dans une zone restreinte du site du Bouchet (Essonne), ancienne usine de traitement de minerai d'uranium aujourd'hui démantelée. Certains déchets de cette usine ont été stockés à proximité dans une déposé qui a été depuis réhabilitée. Dans le cadre de la surveillance de l'environnement imposée par arrêtés préfectoraux, les eaux dans un piézomètre situé à l'aval hydraulique de la déposé sont régulièrement analysées depuis les années 1990. Ces mesures ont mis en évidence des concentrations en uranium dissous plus fortes en hiver qu'en été. Le piézomètre collecte à la fois les eaux d'une formation tourbeuse calcique, saturée en eau, située entre la surface et quelques mètres de profondeurs, ainsi que l'eau d'une nappe alluviale plus profonde. Les analyses des prélèvements *in situ* ont montré que les conditions redox n'étaient pas les mêmes en été et en hiver : le milieu est oxydant en hiver et plus réducteur en été. Les mesures ont également montré des fluctuations de concentration dans la spéciation du soufre et de l'azote : la présence de sulfures (HS^- , $\text{H}_2\text{S}(\text{g})$) et d'ammonium (NH_4^+) est observée en été (*i.e.*, sous conditions réductrices), alors que sont détectés des ions sulfate (SO_4^{2-}), thiosulfate ($\text{S}_2\text{O}_3^{2-}$) et nitrate (NO_3^-) en hiver (*i.e.*, sous conditions oxydantes). Le nitrate ne forme en général pas de

complexes avec l'uranium. Par contre, le soufre, sous la forme d'ions thiosulfate et sulfate, peut former différents complexes d'uranium : USO_4^{2+} , $UO_2S_2O_3$, UO_2SO_4 , $U(SO_4)_2$, $UO_2(SO_4)_2^{2+}$, $UO_2(SO_4)_3^{3-}$. Ces sulphyoxyanions sont susceptibles d'augmenter la solubilité de l'uranium. Seule la concentration totale en uranium étant connue, et non sa spéciation, nous avons utilisé la modélisation pour tester cette hypothèse d'interprétation.

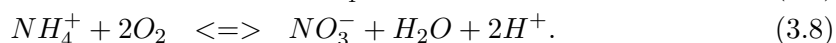
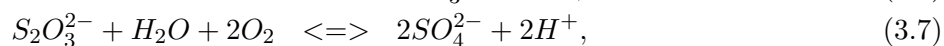
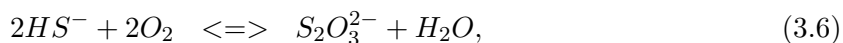
Modélisation et résultats

L'intérêt d'un code de couplage géochimie-transport comme ALLIANCES est de pouvoir, grâce à la base de données géochimiques que l'on peut enrichir à volonté, complexifier au fur et à mesure la modélisation. Ainsi, nous avons réalisé différentes simulations en prenant progressivement en compte dans la géochimie du sol les couples redox de l'azote (NH_4^+/NO_3^-), ceux du soufre ($HS^-/S_2O_3^{2-}/SO_4^{2-}$) et finalement ceux de l'uranium.

La figure 3.2(a) présente la configuration 2D très simplifiée que nous avons adoptée : de l'eau de pluie en équilibre avec l'atmosphère (pression partielle en oxygène P_{O_2} imposée) s'infiltre dans le sol avec une vitesse verticale constante égale à 2,5 m/an. Cette eau riche en oxygène vient alors lixivier des petits barreaux d'uraninite, avant de rejoindre un aquifère situé à 7,5 m de profondeur. Les compositions chimiques initiales du sol et de l'aquifère diffèrent par une concentration élevée de sulfures et d'ammonium dans l'aquifère. Différentes simulations ont été réalisées, avec une complexité croissante de la géochimie du sol : avec ou sans uranium, avec ou sans prise en compte des composés du soufre et de l'azote (Montarnal *et al.*, 2007). Les figures 3.2(b)-(c) montrent les cartes 2D de concentration totale en uranium dans le milieu, obtenues pour les deux configurations avec ou sans azote et soufre. Quand seul l'uranium est pris en compte (cf. Fig. 3.2(b)), la concentration maximale en uranium est de l'ordre de 10^{-7} mol/l, valeur qui correspond à la solubilité de la schoepite. Dans ce cas, les espèces aqueuses principales pour l'uranium sont UO_2OH^+ et $UO_2(OH)_2$. Quand sont également pris en compte les composés du soufre et de l'azote, la concentration maximale en uranium augmente de deux ordres de grandeur (cf. Fig. 3.2(c)). La spéciation de l'uranium est en effet modifiée et l'une des espèces principales devient UO_2SO_4 selon la réaction :



Sont également produits des ions thiosulfate, sulfate et nitrate selon les réactions d'oxydation du soufre et de l'azote suivantes :



La modélisation montre la dissolution de l'uraninite $UO_{2(s)}$ et la conséquence de cette dissolution sur la migration de l'uranium. Quand les ions SO_4^{2-} et $S_2O_3^{2-}$ sont pris en compte, la formation de complexes aqueux de formules S_XO_Y-U entraîne une augmentation de la solubilité de $UO_{2(s)}$. Les résultats numériques montrent donc que les variations saisonnières des concentrations en uranium dissous mesurées *in situ* sont liées à la variation des conditions redox du sol plus ou moins propices à la formation de complexes d'uranium. Ces simulations confirment les hypothèses émises et illustrent l'intérêt d'un code couplé géochimie-transport.

Ces résultats préliminaires ont ensuite servi de base au travail de thèse de Vannapha Phrommavanh (2008). La caractérisation hydrogéochimique du site a confirmé la présence d'un terme

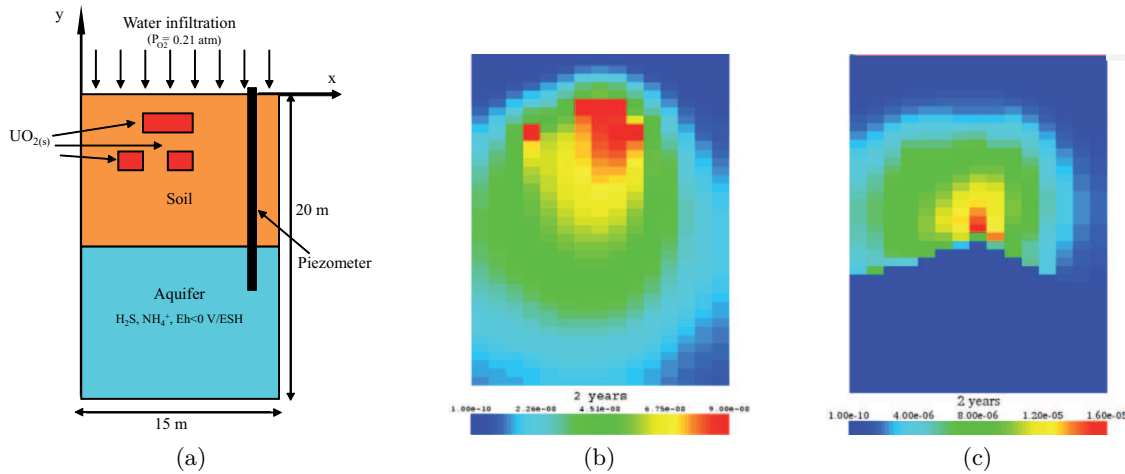


FIGURE 3.2 – Modélisation du site pollué : (a) Représentation schématique du site ; (b)-(c) Cartes 2D de concentration totale en uranium dans le milieu obtenues (a) sans prise en compte des composés de l'azote et du soufre, (b) avec prise en compte des composés de l'azote et du soufre (Montarnal *et al.*, 2007).

source d'uranium. Par contre, le suivi *in situ* de la chimie des eaux, complété par des modélisations géochimiques et une identification bactérienne, ont montré l'importance de l'activité bactérienne et de la composition du sol (constitué principalement de tourbe calcique) sur la migration de l'uranium : l'étude a mis en évidence une activité bactérienne sulfato-réductrice importante en été, entraînant des conditions plus réductrices et donc une teneur en uranium dissous total limitée par la faible solubilité de l'uraninite. En hiver, cette activité bactérienne étant minime et la pluviométrie efficace importante, les conditions deviennent plus oxydantes et favorisent la formation de complexes plus solubles comme $\text{Ca}_2\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3(\text{aq})$ (Phrommavanh, 2008).

3.2.2 Recyclage de la matière organique dans les sédiments en milieu côtier

Problématique

Les milieux aquatiques peu profonds (continentaux ou marins) sont très largement perturbés par l'activité humaine : apports de fertilisants issus de l'agriculture intensive, d'eaux usées chargées en matière organique et de contaminants minéraux et organiques qui entrent dans les cycles biogéochimiques naturels. Ces cycles subissent ainsi des modifications importantes altérant la qualité des eaux, modifiant les chaînes trophiques en direction d'algues toxiques et fragilisant les écosystèmes. Dans ces environnements, les cycles biogéochimiques sont caractérisés généralement par un couplage étroit entre production dans la colonne d'eau et recyclage dans les sédiments. Les processus sédimentaires déterminent donc en grande partie le devenir des composés biogènes et anthropiques dans le milieu. Il est par conséquent essentiel de comprendre et de quantifier la dynamique et la variabilité spatiale et temporelle de ces milieux poreux, tant par des études de terrain que par des efforts de modélisation associés.

Expérimentalement, des techniques innovantes permettent de mesurer les micro-distributions verticales d'oxygène qui sont directement reliées à la minéralisation de la matière organique (Lansard *et al.*, 2003). De telles mesures *in situ*, basées sur l'utilisation de microélectrodes sur

des profileurs automatisés, ont montré l'existence d'une forte variabilité spatiale à petite échelle. Ainsi, la figure 3.3 illustre la disparité des profils verticaux de concentration en oxygène mesurés à quelques centimètres les uns des autres dans le Golfe de Fos (Rabouille *et al.*, 2003).

De nombreux processus peuvent être responsables de cette variabilité comme par exemple (i) des dépôts locaux de matière organique liés aux agrégats organiques; (ii) une disponibilité localement plus importante des composés réduits provenant de l'oxydation anaérobie plus en profondeur dans le sédiment; (iii) la diffusion horizontale de l'oxygène à partir de structures biologiques telles que des terriers. Aussi, dans le but de mieux comprendre et quantifier la dynamique et la variabilité spatiale et temporelle des cycles biogéochimiques observées expérimentalement, en collaboration avec Christophe Rabouille du LSCE, j'ai réalisé la modélisation et la simulation d'expériences de laboratoire. Pour cela, nous avons d'une part réalisé des expériences de laboratoire sur un milieu manipulé et, d'autre part, adapté puis utilisé le code couplé géochimie-transport ALLIANCES permettant de simuler le transport et les réactions d'espèces géochimiques en milieux poreux (cf. §3.1.2).

Expériences de laboratoire

Afin d'apporter des contraintes fortes sur les processus inclus dans le modèle et les paramètres, Christophe Rabouille a réalisé des expériences de laboratoire sur un milieu manipulé. Ainsi, il a créé dans du sédiment tamisé et homogénéisé provenant d'une carotte sédimentaire prélevée dans le golfe de Fos un terrier artificiel de dimension millimétrique dans lequel il a fait circuler de l'eau de mer riche en oxygène. Par ailleurs, un agrégat de matière organique a été ajouté en surface de ce sédiment. À l'aide d'un microprofileur de paillasse équipé de microélectrodes à oxygène, il a alors mesuré les profils verticaux de concentration en oxygène dissous à différentes distances de ces hétérogénéités.

Modélisation et résultats

Pour modéliser et simuler ces expériences, j'ai utilisé l'outil numérique ALLIANCES permettant de simuler le couplage entre la géochimie et le transport dans les milieux poreux. ALLIANCES n'étant pas un outil numérique dédié à la modélisation et à la simulation de phénomènes comme la diagénèse précoce, il a fallu d'abord l'adapter à ce type d'applications. Par exemple, dans la base de données thermodynamiques, j'ai dû définir de nouvelles espèces et rajouter les réactions dans lesquelles elles interviennent. Ainsi, les réactions de dégradation par oxydation de la matière organique ont été introduites, en supposant que ces réactions non spontanées obéissent à une cinétique de Monod. J'ai également rajouté dans la base de données les réactions d'oxydation des produits réduits issus de la minéralisation. Les figures 3.4(a)-(b) présentent les profils verticaux expérimentaux et simulés, à différentes distances de l'agrégat de matière organique (Fig. 3.4(a)), et à différentes distances du terrier (Fig. 3.4(b)). Ces différents profils montrent clairement que la présence d'un agrégat de matière organique ou d'un terrier modifie la dynamique de l'oxygène et confère un caractère bidimensionnel à sa distribution dans le sédiment. Ces résultats ont permis de conforter les interprétations d'anciennes mesures réalisées *in situ* dans le Golfe de Fos (cf. Fig. 3.3)(Rabouille *et al.*, 2003).

Ce travail a confirmé le rôle important des structures biogènes et des agrégats de matière organique sur la dynamique et la variabilité spatiale des cycles biogéochimiques. Par ailleurs, il illustre la possibilité de l'utilisation d'un code couplé géochimie-transport en milieu poreux pour la compréhension des processus de recyclage de la matière organique dans les premières couches de sédiments. Les expériences de laboratoire et les simulations associées ont été financées dans

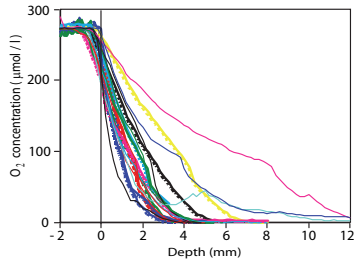


FIGURE 3.3 – Mesures *in situ*. Profils verticaux de concentration en oxygène mesurés dans le Golfe de Fos montrant des hétérogénéités à petite échelle (Rabouille *et al.*, 2003).

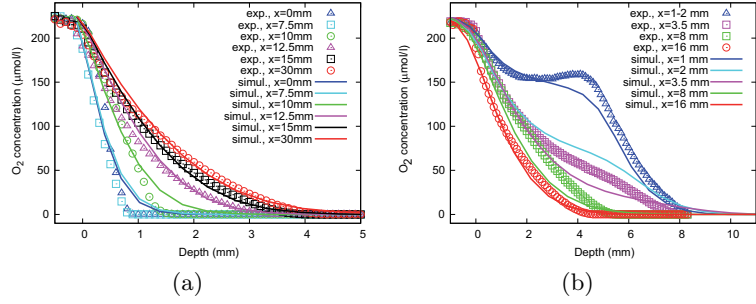


FIGURE 3.4 – Expériences de laboratoire et simulations associées. Profils verticaux de concentration en oxygène mesurés et simulés : (a) à différentes distances de l'agrégat de matière organique, (b) à différentes distances du terrier.

le cadre d'un projet INSU/EC2CO (2007-2008) dont j'étais responsable et les résultats ont fait l'objet d'une publication (Mügler *et al.*, 2012), jointe en Annexe E de ce mémoire.

Partie 3 : PROJETS DE RECHERCHE

Dans cette troisième et dernière partie, je trace quelques perspectives de recherche faisant écho aux trois volets scientifiques que j'ai choisi de présenter dans le bilan de mes travaux antérieurs.

Ainsi, je présente dans un premier temps un projet de recherche sur l'étude des instabilités convectives en milieu poreux, en m'intéressant plus particulièrement à ces instabilités comme sources de la convection hydrothermale au niveau des dorsales médio-océaniques. L'intérêt pour ces systèmes instables découle directement de l'expertise que j'ai acquise en hydrodynamique des fluides pendant mes premières années au CEA.

Les sites hydrothermaux medio-atlantiques auxquels je m'intéresse sont également le siège d'intenses réactions géochimiques entre eau de mer et milieux poreux, conduisant au relâchement de fluides à hautes températures et de compositions géochimiques très particulières. La modélisation du transport réactif en milieu poreux devrait pouvoir aider à la compréhension de ces phénomènes fortement couplés. Les perspectives que j'envisage dans ce domaine sont évoquées dans le second chapitre.

Et finalement, j'expose dans un troisième et dernier chapitre la suite que j'envisage à mes travaux de modélisation des écoulements de surface et souterrains. Il s'agit de réaliser le couplage des écoulements entre ces deux « compartiments » naturels.

Pour chacune des perspectives, sont également spécifiés, dans la mesure du possible, les collaborations ainsi que les moyens financiers et humains envisagés.

Modélisation des instabilités convectives en milieu poreux

1.1 Contexte de la circulation hydrothermale océanique

Un fluide dilatable chauffé par le bas et soumis à un champ d'accélération constant peut être mis en mouvement par convection thermique. Les instabilités convectives ont été clairement mises en évidence expérimentalement par Bénard (1901) et interprétées pour la première fois par Rayleigh (1917), d'où le nom d'instabilité ou de convection de Rayleigh-Bénard qui est communément donné à ce phénomène. C'est ce type d'instabilité que l'on retrouve le long des dorsales médio-océaniques où la présence d'une source de chaleur profonde entraîne la circulation hydrothermale d'eau de mer dans la croûte océanique perméable. Le processus de circulation hydrothermale se fait alors en trois étapes. L'eau froide qui pénètre dans la croûte (phase de recharge) est progressivement réchauffée. Les échanges avec la roche commencent, entraînant une modification de la composition chimique du fluide. Le fluide atteint ensuite sa température maximale au niveau de la zone de réaction de haute température, proche de la chambre magmatique. Dans ces conditions, la composition du fluide est fortement influencée par la température, la pression, le rapport volumique eau/roche, la nature de la roche encaissante et le temps de réaction. Au contact du magma (1100°C), le fluide hydrothermal peut atteindre rapidement un état supercritique du fait des hautes températures T et pressions P , supérieures à celles du point critique de l'eau ($T_c=376^\circ\text{C}$ et $P_c=221$ bars). Dans son domaine supercritique, l'eau présente des caractéristiques étonnantes – grande compressibilité et densité de type liquide – avec des changements spectaculaires de ses propriétés physiques (Wernet *et al.*, 2005). Le milieu aqueux supercritique devient très réactif et est donc un acteur majeur dans les processus géochimiques mis en jeu dans la circulation hydrothermale (séparation de phases, cristallisation dans les magmas, transport et dépôt des métaux par les fluides hydrothermaux à l'origine des minéralisations métallifères sulfurées hydrothermales). Notons ici qu'en présence de sel, cette appellation d'état « supercritique » devient ambiguë car à chaque concentration en sel correspond un point critique différent. Nous reviendrons sur l'aspect géochimique du problème dans le chapitre 2. Le fluide de haute température remonte ensuite très rapidement (phase de décharge) en continuant à interagir avec la roche (basaltes, péridotites ou autres). Progressivement, le fluide se refroidit par conduction et par mélange avec de l'eau de mer plus froide à proximité de la surface influençant sa composition finale.

Dans ce chapitre, je présente d'abord l'outil numérique que nous avons construit pour simuler l'instabilité de Rayleigh-Bénard, puis les questions scientifiques auxquelles cet outil devrait

permettre de répondre à court et à moyen terme.

1.2 Développement d'un outil de simulation numérique

Les systèmes hydrothermaux actifs sont en général étudiés par la modélisation numérique en utilisant la configuration classique d'une couche poreuse rectangulaire, homogène et chauffée par le bas (Cherkaoui et Wilcock, 1999; Emmanuel et Berkowitz, 2006; Fontaine et Wilcock, 2007). La croûte est alors considérée comme un milieu poreux continu dans lequel les écoulements de fluides suivent une loi de Darcy. Il s'agit alors de résoudre les équations de conservation des fluides ainsi que l'équation de transfert de la chaleur à l'aide d'un modèle thermo-hydraulique.

1.2.1 Équations du couplage entre l'hydraulique et la thermique

L'équation de conservation de la masse de fluide dans un milieu poreux s'écrit :

$$\frac{\partial \phi \rho_f}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot \rho_f \vec{v} = 0, \quad (1.1)$$

où ϕ est la porosité du milieu, ρ_f la densité du fluide, et $\vec{v}$, la vitesse de Darcy donnée par :

$$\vec{v} = -\frac{k}{\mu_f} \left(\vec{\nabla} P - \rho_f \vec{g} \right). \quad (1.2)$$

Dans cette expression, k est le tenseur de perméabilité intrinsèque, μ_f la viscosité dynamique du fluide, P la pression et $\vec{g}$ l'accélération due à la gravité. En considérant que la compressibilité du fluide est plusieurs ordres de grandeur plus grande que celle de la roche et en supposant que la densité ρ_f du fluide ne dépend que de la pression P et de la température T , les équations (1.1)-(1.2) fournissent :

$$\phi \rho_f \beta_f \frac{\partial P}{\partial t} = \vec{\nabla} \cdot \left(\frac{\rho_f k}{\mu_f} \vec{\nabla} P \right) - \vec{\nabla} \cdot \left(\frac{\rho_f^2 k}{\mu_f} \vec{g} \right) + \phi \rho_f \alpha_f \frac{\partial T}{\partial t}, \quad (1.3)$$

où α_f et β_f sont respectivement les coefficients de dilatation à pression constante et de compressibilité isotherme définis par :

$$\alpha_f = -\frac{1}{\rho_f} \frac{\partial \rho_f}{\partial T} \Big|_P \text{ et } \beta_f = \frac{1}{\rho_f} \frac{\partial \rho_f}{\partial P} \Big|_T. \quad (1.4)$$

En supposant que l'eau et la roche sont en équilibre thermique, l'équation de transfert de chaleur s'écrit :

$$(\phi \rho_f c_f + (1 - \phi) \rho_r c_r) \frac{\partial T}{\partial t} = \vec{\nabla} \cdot \left(\lambda_{eff} \vec{\nabla} T - \rho_f c_f \vec{v} T \right), \quad (1.5)$$

où c_f et c_r sont les chaleurs spécifiques du fluide et de la roche, ρ_r est la densité de roche, et λ_{eff} est la conductivité thermique du milieu poreux saturé. Le système à résoudre est donc composé du couplage des deux équations aux dérivées partielles (1.3) et (1.5).

1.2.2 Approximation d'Oberbeck-Boussinesq

L'approximation d'Oberbeck-Boussinesq est une approximation couramment utilisée car simplifiant fortement les équations des écoulements de fluides densitaires. Dans la littérature, cette approximation est souvent attribuée à Boussinesq (1903) bien que Oberbeck (1879) ait été le

premier scientifique à l'avoir utilisée. Dans cette approximation, la densité du fluide est supposée constante sauf dans le terme de gravité de la loi de Darcy où elle varie linéairement avec la température. L'équation de conservation de la masse (1.1) se réduit alors à la formulation pour les fluides incompressibles :

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{v} = 0. \quad (1.6)$$

La densité du fluide varie linéairement avec T :

$$\rho_f(T) = \rho_f(T_{max}) \times [1 - \alpha_f(T - T_{max})], \quad (1.7)$$

où α_f est le coefficient de dilatation thermique, supposé constant. En supposant de plus $\rho_f c_f = \rho_r c_r$, l'équation de transfert d'énergie (1.5) s'écrit :

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \vec{\nabla} \cdot (\kappa_{therm} \vec{\nabla} T - \vec{v} T), \quad (1.8)$$

où κ_{therm} représente la diffusivité thermique du milieu poreux saturé.

Par la suite, on note T_{max} et T_{min} les températures maximale et minimale du système et ρ_{max} et ρ_{min} les densités correspondantes (cf. Eq. (1.7)). Le problème est alors adimensionné en prenant la taille L du domaine comme longueur caractéristique, la différence de température $\Delta T = (T_{max} - T_{min})$ comme température caractéristique, le temps de conduction thermique L^2/κ_{therm} comme échelle de temps, la différence $\Delta\rho = (\rho_{max} - \rho_{min})$ comme échelle de densité, $(k/\mu_f)\Delta\rho g$ comme échelle des vitesses et $\Delta\rho g L$ comme échelle des pressions. Le système d'équations adimensionnées s'écrit :

$$\begin{aligned} \vec{\nabla}^* \cdot \vec{v}^* &= 0, \quad \text{avec} \quad \vec{v}^* = -(\vec{\nabla}^* P^* + \rho_f^* \vec{e}_z) \\ \text{et} \quad \rho_f^*(T^*) &= \rho_f^*(T_{max}^*) \times [1 - \alpha_f \Delta T (T^* - T_{max}^*)], \end{aligned} \quad (1.9)$$

$$\frac{\partial T^*}{\partial t^*} + Ra \times (\vec{v}^* \cdot \vec{\nabla}^* T^*) = \vec{\nabla}^* \cdot (\vec{\nabla}^* T^*). \quad (1.10)$$

Dans ces équations, l'astérisque signifie que les quantités sont adimensionnées, $\vec{e}_z$ représente le vecteur unité de l'axe vertical dirigé vers le haut et le nombre de Rayleigh Ra est un paramètre sans dimension défini par :

$$Ra = \frac{\Delta\rho g L k}{\mu_f \kappa_{therm}}. \quad (1.11)$$

Ce paramètre adimensionné, associé au produit $\alpha_f \Delta T$, caractérise complètement le champ de vitesse et de température.

1.2.3 Propriétés des fluides

En réalité, dans les systèmes hydrothermaux qui se développent au niveau des dorsales medio-océaniques, la température et la pression de l'eau peuvent varier de 2°C à 1000°C et de 10 bars à plus de 500 bars. Il est donc essentiel de pouvoir tenir compte de la variation en fonction de P et de T des propriétés thermodynamiques de l'eau telles que sa densité, sa dilatation thermique, sa compressibilité, sa chaleur spécifique et sa viscosité. Pour cela, nous utilisons les formulations IAPWS pour les propriétés de l'eau pure (Haar *et al.*, 1984) et une formulation polynômiale pour l'eau de mer (Sun *et al.*, 2008). Seuls les écoulements monophasiques sont pris en compte.

1.2.4 Méthodes numériques

Pour résoudre le système d'équations couplées et fortement non-linéaires (1.3)-(1.5), nous utilisons un schéma itératif de Picard. Les deux équations (1.3) et (1.5) peuvent s'écrire sous la forme d'une équation de transport :

$$\phi \frac{\partial C}{\partial t} = \vec{\nabla} \cdot (D \vec{\nabla} C - \vec{v} C) + S, \quad (1.12)$$

où la quantité transportée C est la pression P pour l'équation de conservation de masse Eq. (1.3) et la température T pour l'équation de transfert de chaleur Eq. (1.5). L'équation de transport générique Eq. (1.12) est résolue à l'aide de la plate-forme numérique Cast3M (<http://www-cast3m.cea.fr>). Le schéma numérique est un schéma aux volumes finis d'ordre 2 en espace et 1 en temps (Bernard-Michel *et al.*, 2004).

1.3 Questions scientifiques et moyens envisagés pour les résoudre

1.3.1 Plage de validité de l'approximation d'Oberbeck-Boussinesq

Dans les conditions de pression et de température qui prévalent au niveau des dorsales, à partir de calculs en régime permanent, Wilcock (1998) a montré que l'approximation d'Oberbeck-Boussinesq n'était plus valable et conduisait à une sous-estimation des champs convectifs. Des calculs instationnaires ont confirmé la nécessité de prendre en compte toutes les non-linéarités (Coumou *et al.*, 2006). Aussi, je n'envisage pas de réaliser et interpréter des simulations de la circulation hydrothermale medio-atlantique en utilisant l'approximation d'Oberbeck-Boussinesq, bien que cela ait été fait sans scrupule par de nombreux auteurs (Cherkaoui et Wilcock, 1999; Fontaine et Wilcock, 2007; Schoofs et Hansen, 2000).

La limite de validité de l'approximation d'Oberbeck-Boussinesq a déjà été discutée dans des configurations particulières comme celle du problème de Elder (Johannsen, 2003). Mais à ma connaissance, aucune détermination de la plage de validité de cette approximation pour la modélisation de la circulation hydrothermale n'a été faite de façon rigoureuse et théorique. Une telle étude permettrait d'identifier quels sont les paramètres critiques à considérer (le nombre de Prandtl ? le Nusselt ? le Rayleigh ? Une combinaison de ces nombres ?) pour justifier l'utilisation ou non d'une telle approximation.

J'ai commencé ce travail théorique avec Anne Maisonneuve, actuellement en stage de Master 2 au LSCE.

1.3.2 Circulation hydrothermale du site de Rainbow

Grâce à l'outil thermo-hydraulique dont les caractéristiques ont été présentées précédemment et en nous appuyant sur des données de terrain, nous espérons pouvoir établir la configuration géométrique et physique d'un site hydrothermal actif situé sur la dorsale lente médio-océanique : le site de Rainbow.

Le site de Rainbow : données expérimentales

Le site de Rainbow (36°13.8'N-33°54.15'W) est un site hydrothermal pour lequel l'IFREMER dispose d'intéressantes données expérimentales mesurées *in situ*. Ce site est en effet observé depuis plusieurs années (Charlou *et al.*, 2002; Jean-Baptiste *et al.*, 2004; German *et al.*, 2010; Charlou *et al.*, 2010). Il se situe à environ 2275-2335 mètres de profondeur et mesure environ 100

mètres de long et 200 mètres de large. Depuis sa découverte (German *et al.*, 1996), différentes analyses d'échantillons prélevés au niveau des fumeurs (Charlou *et al.*, 1998) semblent indiquer une stabilité dans le temps de la chimie et de la température des fumeurs (Charlou *et al.*, 2010, 1998; Douville *et al.*, 2002; Seyfried *et al.*, 2011). De plus, l'homogénéité à la fois de la chimie mais aussi de la température (entre 354 et 367°C) d'un fumeur à l'autre laisse supposer qu'une seule et même source alimente l'ensemble du site (Charlou *et al.*, 2010; Seyfried *et al.*, 2011). Les mesures expérimentales déjà acquises fournissent donc des informations sur la composition géochimique des fluides hydrothermaux, les valeurs de la température et des flux au niveau du plancher océanique, leur variation éventuelle au cours du temps, les réactions géochimiques et leurs constantes thermodynamiques, l'existence ou non de séparation de phases. Les premières analyses de ce site ont montré qu'il reposait sur une structure de roches ultrabasiques avec la forte présence sur le plancher de serpentines. Les fumeurs noirs émettent des fluides acides (pH=2,8) très chauds ($T=365^{\circ}\text{C}$) très riches en H_2 , CH_4 , Cl et éléments métallifères. Les processus majeurs semblent être la séparation de phases et l'interaction eau de mer-roches ultrabasiques, associant des réactions de serpentinisation (Douville *et al.*, 2002; Charlou *et al.*, 2002, 2010). À l'aide de bilan en ^3He réalisés sur site, le flux de masse d'eau évacué par le site de Rainbow a pu être estimé à $490 \pm 220 \text{ kg.s}^{-1}$ (German *et al.*, 2010; Jean-Baptiste *et al.*, 2004).

Le site de Rainbow : modélisation

Pour établir la configuration géométrique et physique du site hydrothermal de Rainbow, différentes configurations devront être envisagées. J'évoque ci-dessous quelques exemples de propriétés géométriques et physiques dont l'influence sur le comportement du système hydrothermal devra être étudiée.

Influence des distributions de perméabilité :

Dans un premier temps, la perméabilité du milieu poreux que constitue la croûte océanique sera considérée comme homogène. Dans un second temps, on s'intéressera à l'influence de zones de perméabilités différentes comme cela a été fait dans le cas de sites basaltiques (Lowell *et al.*, 2007). Notons ici que cette perméabilité est un paramètre effectif, le milieu étant une roche fracturée. On pourra se poser la question de la pertinence de cette approche.

Influence des propriétés des fluides :

Dans les plages de pression et de température considérées, il sera nécessaire de prendre en compte les variations fortement non linéaires des propriétés des fluides, comme la densité et la viscosité. Les variations de viscosité peuvent en effet être à la source d'instabilités hydrodynamiques, comme celle de Saffman et Taylor (1958), et permettre d'expliquer l'intermittence éventuelle des fumeurs noirs (Coumou *et al.*, 2006).

Modélisation de la séparation de phases :

La composition des fluides hydrothermaux et notamment la concentration en chlorures au niveau des fumeurs noirs sur le site de Rainbow semble indiquer la présence de séparation de phases (Charlou *et al.*, 2002; Douville *et al.*, 2002). Lorsqu'il y a séparation entre la phase « vapeur » et la phase « saumure », le fluide à la sortie d'un fumeur représente alors soit l'une de ces deux phases, soit un mélange des deux. Différents scénarios pourront être envisagés, comme par exemple l'existence d'une structure en deux couches avec de l'eau de mer circulant dans la couche supérieure et de la saumure stagnant dans la couche inférieure (Kawada *et al.*, 2004). Ici aussi, l'influence de la distribution spatiale de la perméabilité pourra être étudiée (Fontaine

et al., 2001).

Moyens mis en oeuvre

L'outil de simulation numérique adapté à la résolution du couplage thermo-hydraulique a été développé par Florian Perez, d'abord au cours de son stage de Master 2, puis au cours de sa thèse que je co-encadre avec Philippe Jean-Baptiste du LSCE et Jean Luc Charlou de l'IFREMER. Cette thèse est co-financée par le CEA et l'IFREMER et devrait se terminer fin 2012. D'ici là, nous devrions avoir réalisé les premières modélisations du site de Rainbow. J'envisage ensuite de poursuivre ce travail en 2013 en encadrant un étudiant en Master 2.

La modélisation thermo-hydraulique constitue la première phase du travail de modélisation de sites hydrothermaux medio-océaniques. Il va ensuite s'agir de modéliser le comportement géochimique du système composé du fluide hydrothermal et de la roche dans laquelle il circule. Je présente cette seconde phase du travail dans le chapitre suivant.

Transport réactif et circulation hydrothermale

2.1 Problématique

L'hydrogène est considéré comme l'une des énergies propres du futur. Il est cependant communément admis que ce gaz n'existe pas en tant que ressource naturelle mais nécessite d'être produit par des procédés qui consomment eux-mêmes des énergies primaires. L'hydrogène apparaît donc comme un vecteur énergétique et non comme une ressource. Cependant, différents programmes d'études des dorsales médio-océaniques ont mis en évidence l'existence d'un flux important d'hydrogène naturel issu des événements hydrothermaux le long de la dorsale médio-Atlantique. Cette production d'hydrogène résulte de l'interaction entre l'eau de mer et les roches chaudes du manteau terrestre, par la réduction de l'eau associée à l'oxydation dans certains minéraux d'ions Fe^{2+} en ions Fe^{3+} . Cette production naturelle représente une ressource énergétique potentiellement inépuisable qu'il convient d'étudier et de quantifier.

Les processus physiques et géochimiques mis en jeu lors de la circulation hydrothermale au niveau d'une dorsale lente et conduisant à la production d'hydrogène sont nombreux, complexes, et fortement couplés entre eux. Ces systèmes hydrothermaux se caractérisent en effet par l'interaction entre un fluide, initialement de l'eau de mer, et les roches présentes sous le plancher océanique, dans des conditions de pression et de température très élevées. Au cours de sa circulation, le fluide voit sa composition chimique évoluer selon divers processus, dont les deux principaux sont l'interaction eau-roche et l'éventuelle séparation de phases du fluide en une phase « vapeur » et une phase « saumure ». Ce faisant, le fluide voit également ses propriétés, comme sa densité et sa viscosité, varier de façon fortement non-linéaire en fonction de la pression et de la température. Par ailleurs, la précipitation de minéraux lors de l'interaction fluide-roche modifie les propriétés de porosité et de perméabilité du milieu. C'est notamment le cas lors de la formation de serpentinites due à l'interaction de péridotites océaniques avec l'eau de mer. De fructueuses discussions avec Jean Luc Charlou et Yves Fouquet de l'IFREMER et avec Philippe Jean-Baptiste du LSCE ont mis en évidence l'intérêt de la modélisation de tels systèmes hydrothermaux pour aider à la compréhension de ces différents processus physiques et géochimiques, en proposant des scénarios d'évolution permettant de restituer les mesures faites *in situ*. Grâce à la modélisation, on espère pouvoir identifier les principaux mécanismes conduisant à la production d'hydrogène, estimer les incertitudes associées et apprécier la stabilité de tels systèmes.

2.2 Choix de modélisation

2.2.1 État de l'art

Depuis plusieurs années, de nombreuses modélisations ont été proposées pour simuler de tels systèmes hydrothermaux. On peut citer ici les travaux précurseurs de Lowell et al. (Lowell et Germanovich, 1994; Lowell et Rona, 2002; Lowell et Yao, 2002; Lowell *et al.*, 2003, 2007, 2008), ceux de Wilcock et al. (Wilcock, 1998; Cherkaoui et Wilcock, 1999; Fontaine et Wilcock, 2007), ou encore ceux de Coumou *et al.* (2006, 2008, 2009a,b). Les modélisations diffèrent par le choix des approximations, la géométrie du domaine, les propriétés des milieux et des fluides ou encore les conditions aux limites. La question de la modélisation du couplage entre l'hydraulique et la thermique ayant déjà été discutée dans le chapitre précédent, je ne développerai ici que le volet concernant le couplage avec la géochimie.

Dans la littérature, le couplage entre l'hydraulique, la thermique et la géochimie a déjà été abordé mais de façon assez simplifiée. Par exemple, Lowell et Rona (2002), puis Allen et Seyfried Jr (2004) prennent en compte la réaction de serpentinisation comme source thermique mais leurs calculs sont des calculs de bilan 0D. Seuls Emmanuel et Berkowitz (2006) proposent une modélisation 2D pour simuler la production et l'effet thermique et hydrique de la serpentinisation. Cependant, leur modélisation reste très simple et repose sur l'approximation d'Oberbeck-Boussinesq. Dans cette approximation, les variations de densité des fluides dues aux variations de température et de pression sont négligées sauf dans le terme de gravité de la loi de Darcy qui pilote les écoulements en milieux poreux (cf. Partie 3, §1.2 pour plus de détails). Or, dans les conditions de pression et de température qui prévalent au niveau des dorsales, à partir de calculs en régime permanent, Wilcock (1998) a montré que l'approximation d'Oberbeck-Boussinesq n'était plus valable et conduisait à une sous-estimation des champs convectifs. Des calculs instantanés ont confirmé la nécessité de prendre en compte toutes les non-linéarités (Coumou *et al.*, 2006). Grâce à des calculs d'équilibres géochimiques, McCollom et Bach (2009) ont quant à eux estimé les quantités d'hydrogène obtenues à une pression $P=35$ MPa, pour des températures comprises entre 50°C et 400°C et pour différents rapports entre le volume d'eau et le volume de roche.

À ma connaissance, personne ne s'est donc encore intéressé au transport de l'hydrogène produit au sein de la roche et aux quantités d'hydrogène ainsi relâchées au niveau des dorsales. Il s'agira donc ici de modéliser :

- le couplage entre l'hydraulique et la thermique, sans l'approximation d'Oberbeck-Boussinesq, en tenant compte de toutes les non-linéarités dues aux variations des propriétés des fluides en fonction de la pression et de la température (cf. chapitre précédent pour plus de détails) ;
- la réaction exothermique de serpentinisation induisant un terme source dans l'équation de transport de la chaleur et conduisant à la production d'hydrogène ;
- le transport de l'hydrogène dans le champ hydrothermal.

La première étape de ce travail est actuellement réalisée par Florian Perez dans le cadre de sa thèse que je co-encadre avec Philippe Jean-Baptiste du LSCE, sous la direction de Jean Luc Charlou de l'IFREMER (cf. Partie 3, §1).

2.2.2 Données de terrain

Les résultats des simulations seront ensuite confrontés aux données de terrain. J'envisage de m'intéresser à deux sites hydrothermaux actifs situés sur la dorsale lente médio-océanique pour lesquels l'IFREMER dispose de données expérimentales *in situ* intéressantes et dans lesquels intervient le processus géochimique de serpentinisation : le site de Rainbow ($36^{\circ}14'N$) et celui de

Lost City (13°N). Le site de Rainbow a déjà été décrit dans le chapitre 1. Rappelons simplement ici que les fumeurs noirs sur le site de Rainbow émettent des fluides acides (pH=2,8) très chauds (T=365°C) très riches en H₂, CH₄, Cl et éléments métallifères. Les processus majeurs semblent être la séparation de phases et l'interaction eau de mer-roches ultrabasiques, associant des réactions de serpentinisation (Douville, 1999; Charlou *et al.*, 2002, 2010). Au niveau du site de Lost City, par contre, les fumeurs émettent des fluides fortement basiques (pH de 9 à 11) et pauvres en métaux à des températures beaucoup plus faibles que celles de Rainbow (T<90°C). Le site est parsemé de cheminées en carbonates pouvant atteindre des hauteurs de plus de 60 mètres (Kelley *et al.*, 2001, 2005).

2.2.3 Données de laboratoire

À partir d'expériences réalisées en laboratoire sur des poudres de lherzolite, Marcaillou *et al.* (2011) ont montré que la cinétique de serpentinisation est fortement dépendante des conditions physico-chimiques (température, rapport eau/roche, état structural et composition chimique de la roche) présentes dans le milieu naturel. Ces travaux indiquent également que les rôles joués par la serpentine et la magnétite dans la production d'hydrogène évoluent suivant la température mais changent également fortement au cours de la réaction (Marcaillou, 2011). Ces résultats seront utilisés pour établir les lois des cinétiques de réactions du modèle géochimique.

2.2.4 Démarche envisagée

Il s'agira dans un premier temps de sélectionner les réactions géochimiques fluide-roche prépondérantes en s'appuyant sur les mesures *in situ* et sur des résultats antérieurs (Douville, 1999). On s'intéressera plus particulièrement à la réaction de serpentinisation, résultat de l'interaction des péridotites océaniques avec l'eau de mer. Cette réaction étant exothermique, la pénétration d'eau de mer dans la péridotite doit pouvoir, en théorie, activer des circulations hydrothermales même en dehors de l'axe des dorsales, mais à condition que l'activité tectonique maintienne une perméabilité suffisante via l'activation de fractures ou failles. Lowell et Rona (2002), contrairement à Allen et Seyfried Jr (2004), prétendent que la circulation hydrothermale au niveau du site de Lost City n'est pilotée que par la chaleur issue des réactions de serpentinisation. Par contre, selon eux, la chaleur produite par cette réaction exothermique ne peut suffire à réchauffer des fluides à des températures de plus de 300°C. Les fumeurs noirs observés sur le site de Rainbow (Charlou *et al.*, 2002) à des température de 365°C ne peuvent donc pas être dus seulement à cette réaction mais impliquent bien la présence d'intrusions magmatiques. Mais même si ces serpentines ne sont pas le seul moteur du système hydrothermal, elles jouent un rôle important sur la composition chimique de la lithosphère et en modifient également les propriétés physiques (Lowell et Rona, 2002). Comme la serpentinisation nécessite un fort apport en eau (les serpentines contiennent 10 à 15% d'eau), la disponibilité de l'eau constitue un facteur limitant pour cette réaction. Se pose alors la question de la pénétration de l'eau et par conséquent de la perméabilité du milieu, question d'autant plus importante que la réaction de serpentinisation s'accompagne d'une augmentation de volume et donc d'un colmatage éventuel du milieu poreux (Mével, 2003). Des expériences de laboratoire à température ambiante ont ainsi montré que l'eau ne circule plus dans les zones où la serpentine a précipité, la valeur de la perméabilité de ce minéral étant estimée à 10⁻¹¹, voire 10⁻¹² darcys, valeurs caractérisant un milieu très imperméable (MacDonald et Fyfe, 1985). Si fermeture du milieu poreux il y a, différentes questions devront être résolues : une fois le milieu poreux serpentinisé et donc colmaté, le système hydrothermal s'arrête-t-il ? La serpentinisation induit-elle des contraintes mécaniques

s'accompagnant de micro-fracturations permettant une réouverture du système ? Le système se réouvre-t-il par activité volcanique ou tectonique ? Ainsi, à partir de la modélisation de configurations académiques, Fontaine *et al.* (2001) ont montré que le développement des événements est possible quand il y a succession d'événements tectoniques ou volcaniques engendrant un réseau de nouvelles fractures qui permettent de compenser la décroissance de la perméabilité due à la précipitation de minéraux. La modélisation de la serpentinisation dans un système hydrothermal peut donc s'avérer très complexe car couplant à la fois la thermique, la géochimie, le transport et la mécanique.

Dans un premier temps, j'avais envisagé d'utiliser la plate-forme ALLIANCES (cf. Partie 2, §3.1.2) pour modéliser et simuler les réactions géochimiques et le transport d'espèces dans la circulation hydrothermale. Cependant, j'ai pour l'instant mis de côté cette idée car la plate-forme ALLIANCES ne permet pas de simuler les réactions et le transport des solutions solides qui sont à la source de la production d'hydrogène. Il est donc nécessaire de développer un outil spécifique pour pouvoir simuler et interpréter les importants flux d'hydrogène mesurés *in situ*. Il va donc s'agir de coupler le module thermo-hydraulique en cours de construction dans Cast3M (cf. Partie 3, §1) avec un outil de géochimie incluant le traitement particulier des solutions solides. Concrètement, nous envisageons donc d'utiliser de façon séquentielle :

- le code Cast3M pour calculer le couplage entre la thermique et l'hydraulique ;
- le code EQ3/6 (Wolery *et al.*, 1992) pour calculer un terme source d'hydrogène ;
- le code Cast3M pour simuler le transport de l'hydrogène.

À terme, cependant, j'aimerais réaliser un véritable couplage transport-géochimie à l'aide de la plate-forme ALLIANCES. Cela suppose de construire une base de données thermodynamiques adéquates et de déterminer un circuit hydrothermal représentatif des sites étudiés.

2.3 Résultats attendus et moyens mis en oeuvre

Ce travail se veut un apport de la modélisation à la compréhension des processus physiques et géochimiques conduisant à la production naturelle d'hydrogène au niveau de sites hydrothermaux de la dorsale médio-atlantique. La modélisation du couplage fort entre la thermique, l'écoulement et la géochimie doit nous permettre d'estimer la production naturelle d'hydrogène et d'en quantifier les flux le long de la dorsale lente médio-Atlantique. Comme déjà signalé, nous nous concentrerons sur 2 sites en particulier : le site de Rainbow (36°14'N) et celui de Lost City (13°N). Le but de la modélisation est de permettre de répondre à différentes questions concernant le fonctionnement des sites hydrothermaux comme par exemple :

- Comment peut-on obtenir d'aussi importants débits d'eau et de si fortes températures et concentrations en hydrogène que ceux mesurés au niveau du site de Rainbow ?
- La réaction de serpentinisation, fortement exothermique, peut-elle à elle seule alimenter une circulation hydrothermale comme celle observée au niveau du site de Lost City ?

Ce travail de modélisation du transport réactif sera logiquement réalisé après la modélisation thermo-hydraulique des sites hydrothermaux médio-océaniques présentée dans le chapitre précédent. La modélisation du couplage géochimie-transport du site de Rainbow à l'aide de Cast3M et de EQ3/6 devrait être abordée au cours de la thèse de Florian Perez. J'envisage de poursuivre ce travail et de l'étendre au site de Lost City dans le cadre d'un projet de fin d'études d'un étudiant en Master 2. Nous étudierons alors également la possibilité d'adapter le code de transport réactif ALLIANCES à cette problématique.

Modélisation du couplage entre les écoulements de surface et souterrains

3.1 Problématique

Dans la deuxième partie de ce mémoire, j'ai évoqué de façon séparée mes travaux de modélisation des écoulements de surface et des écoulements souterrains (cf. Partie 2, §2). Or, le ruissellement, l'infiltration et la circulation de nappe sont des processus couplés dans l'espace et dans le temps. La modélisation du cycle de l'eau, quelle que soit l'échelle, parcelle ou bassin versant, nécessite donc le développement de modèles et méthodes capables de représenter de manière intégrée et couplée les flux d'eau de surface et souterrains. Ce couplage reste une entreprise difficile. Les mécanismes d'écoulement de surface et souterrains sont en effet hautement non linéaires, avec des temps caractéristiques très différents. De plus, pour respecter la physique des interactions entre surface et souterrain, la continuité des pressions et flux doit être assurée sur l'ensemble de la surface topographique. Dans les faits, le couplage est souvent effectué sans réelle rétroaction, ou sans prise en compte des processus de la zone non-saturée de subsurface. Cependant, depuis une décennie, quelques modèles représentatifs de la nouvelle génération de modèles couplés ont été proposés (VanderKwaak, 1999; Panday et Huyakorn, 2004; Kollet et Maxwell, 2006; Therrien *et al.*, 2005; Weill *et al.*, 2009; Camporese *et al.*, 2010). Ils sont encore au stade expérimental, notamment en ce qui concerne leur application à des bassins très hétérogènes, et peuvent être améliorés par des approches numériques récentes mieux adaptées et plus efficaces.

Ainsi, dans le cadre de sa thèse réalisée au LSCE sous la direction d'Emmanuel Mouche, Sylvain Weill a développé une approche darcéenne multidomaine pour modéliser les échanges surface-subsurface à l'échelle de la parcelle (Weill, 2007; Weill *et al.*, 2009). L'originalité de l'approche repose sur une description unifiée de l'écoulement en subsurface, zones saturée et non saturée, et en surface : une même équation parabolique non linéaire, appelée équation de Richards généralisée, décrit les écoulements dans les différents compartiments hydrologiques. D'un compartiment à l'autre, seuls diffèrent les paramètres et les lois. L'avantage de cette approche est que, contrairement aux approches classiques de couplage surface-subsurface, le problème de couplage à la surface du sol entre l'équation de Darcy généralisée pour les écoulements de subsurface et l'onde diffusante ou l'onde cinématique pour les écoulements de surface ne se pose pas. Ce modèle a été implémenté dans Cast3M et a donné des résultats encourageants sur des configurations académiques (Weill, 2007; Weill *et al.*, 2009). Par contre, il s'est avéré très délicat

d'utilisation, voire inadapté dans sa configuration actuelle, lors de la simulation de configurations plus complexes. Ainsi, au cours de son travail de thèse, Sylvain Weill a essayé de confronter le modèle couplé surface–subsurface au cas réel des expériences de mesures des vitesses de ruissellement et de traçage sur la parcelle instrumentée par l'IRD à Thiès (expériences décrites dans la Partie 2, §2.1.3). Mais les résultats ont été décevants. C'est pourquoi, dans les modélisations de ces expériences que j'ai présentées précédemment (cf. Partie 2, §2.1.3), seul l'écoulement de surface a été modélisé, en régime permanent et avec l'hypothèse d'une infiltration dans le sol constante. Or, il serait intéressant d'étudier avec le modèle couplé l'effet des lois et de leurs paramètres sur la montée des hydrogrammes mesurés. En effet, l'infiltration et la rugosité sont plus faibles après quelques pluies simulées, ce qui est imputable à une modification de la surface mais aussi, peut-être, à l'augmentation de la teneur en eau. Il serait également intéressant de simuler le traçage dans le modèle couplé complet, pour prendre en compte l'effet de la hauteur de la lame d'eau sur l'infiltration. Mais les premières simulations couplées réalisées par Sylvain Weill (2007) puis reprises par Jérémy Patin (2011) ont montré que la prise en compte de l'infiltration dans un sol sableux, en trois dimensions, conduit à des temps de calculs trop longs. Une amélioration des performances du schéma numérique doit donc être envisagée.

D'autres problèmes du modèle intégré restent à résoudre. Par exemple, le modèle s'est avéré incapable de traiter le ruissellement sur des versants dont la perméabilité du sol est hétérogène. En effet, le schéma numérique centré utilisé pour calculer la conductivité hydraulique dans la couche de ruissellement ne permet pas de transférer de l'eau dans la couche de ruissellement d'une maille « amont » vers une maille « aval » initialement sèche. Notons ici que ce problème ne se pose pas si l'apport d'eau dans une maille de ruissellement initialement sèche se fait par le haut, par exemple via la pluie, ou par le bas, par exemple par exfiltration de la nappe ; il apparaît uniquement lorsque cet apport se fait par l'amont ou par l'aval. Une voie possible pour résoudre ce problème serait d'utiliser un schéma décentré à la place du schéma centré actuel.

3.2 Résultats attendus et moyens mis en oeuvre

J'envisage de réaliser ce travail de recherche en collaboration avec d'autres laboratoires français intéressés par le développement de modèles couplés surface–subsurface pour la modélisation hydrologique : le Laboratoire d'Hydrologie et de Géochimie de Strasbourg (LHyGeS) et le Laboratoire d'étude des Interactions Sol-Agrosystème-Hydrosystème (LISAH) de Montpellier. C'est dans cette optique de collaboration que nous avons construit un projet commun, (appelé COSMOS pour COupled Surface–subsurface MOdelS), dont l'objectif principal est de développer et tester une nouvelle génération de modèles hydrologiques distribués et intégrés à bases physiques, reposant sur un couplage intégral des flux de surface et souterrains. Dans le cadre de ce projet, nous envisageons (i) de développer trois versions originales de modèles couplés (une par partenaire du projet) reposant sur des approches numériques innovantes ; (ii) de construire des benchmarks synthétiques ou expérimentaux complétant ceux disponibles dans la littérature et couvrant une large gamme de processus de genèse du ruissellement pour différentes situations géométriques, pédologiques et climatiques ; (iii) de développer de nouvelles approches d'inter-comparaison des modèles couplés ; (iv) d'appliquer les versions de ces modèles sur des jeux de données d'un bassin versant réel.

Le projet COSMOS est structuré en 6 tâches incluant une tâche de coordination. La Tâche

1 est dévolue au développement des modèles, sur la base de travaux antérieurs des partenaires de COSMOS. La Tâche 2 vise la définition d'un jeu de benchmarks regroupant des cas issus de la littérature et des résultats de nouvelles expérimentations de laboratoires ou numériques. La Tâche 3 correspond à la définition des critères locaux et globaux d'évaluation de la performance des modèles et à l'application des trois modèles au jeu de benchmarks. La Tâche 4 évalue la capacité des modèles développés à simuler le cas réel d'un bassin fortement hétérogène et la différence de performance par rapport à une approche standard. Enfin, la Tâche 5 vise la diffusion des résultats du projet, en organisant un workshop international sur les approches couplées, en mettant à disposition de la communauté scientifique les modèles, benchmarks et procédures d'évaluation sur un site web d'accès libre et en organisant des sessions de formation. Il est prévu que je sois responsable de la Tâche 2 et de différentes sous-tâches de ce projet.

Le projet COSMOS a été soumis à l'appel d'offre ANR blanc en 2012. Dans la thématique « Système terre, environnement, risques », seulement 13 projets sur 170 ont été retenus pour financement ; COSMOS ne fait malheureusement pas partie de ces heureux élus. Selon les remarques et suggestions des reviewers, nous le soumettrons à nouveau à l'ANR en 2013 ou à d'autres appels d'offres.

Selon le financement obtenu, j'envisage de réaliser ce travail de modélisation du couplage surface-souterrain en encadrant un étudiant en thèse ou en post-doctorat en 2013.

À plus long terme, une fois le projet COSMOS terminé, nous disposerons d'un outil numérique de modélisation du couplage entre les écoulements de surface et souterrains. Cet outil pourra alors être utilisé dans de nombreuses applications. Par exemple, dans le cadre d'une collaboration avec l'IRD, nous pourrions envisager une modélisation distribuée de l'hydrologie de bassins versants du sud-est asiatique. Une telle modélisation permettrait d'améliorer les méthodes de prédiction de l'influence du changement climatique et/ou de l'usage des terres sur l'érosion de ces bassins versants et donc d'apprécier la vulnérabilité des terres agricoles mais également des ressources en eau de cette région. J'envisage également d'utiliser cet outil de modélisation des processus pour valider ou mettre en défaut les hypothèses de modélisation hydrologique faites dans les codes à plus grande échelle comme par exemple le modèle de surface ORCHIDÉE développé au LSCE.

Bibliographie

- Addesio F., Baumgardner J., Dukowicz J., Johnson N., Kashiva B., Rauenzhan R. et Zemach C. : CAVEAT : a computer code for fluid dynamics problems with large distortion and internal slip. *Los Alamos National Laboratory*, 10613, 1990.
- Adenot F. : *Durabilité du béton : Caractérisation et modélisation des processus physiques et chimiques de dégradation du ciment*. Thèse de doctorat, University d'Orléans (France), 1992.
- Adenot F. et Buil M. : Modelling of the corrosion of the cement paste by deionized water. *Cement and Concrete Research*, 22(2-3):489–496, 1992.
- Albert B. : *Altération de matrices cimentaires par des eaux de pluie et des eaux sulfatées : approche expérimentale et thermodynamique*. Thèse de doctorat, École des Mines de Saint-Etienne (France), 2002.
- Allen D. et Seyfried Jr W. : Serpentinization and heat generation : constraints from Lost City and Rainbow hydrothermal systems. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 68(6):1347–1354, 2004.
- Alon U., Hecht J., Ofer D. et Shvarts D. : Power laws and similarity of Rayleigh-Taylor and Richtmyer-Meshkov mixing fronts at all density ratios. *Physical Review Letters*, 74(4):534–537, 1995.
- Baldwin B. et Lomax H. : Thin layer approximation and algebraic model for separated turbulence flows. *AIAA journal*, 78-257, 1978.
- Bary B. et Le Bescop P. : Simplified chemo-transfert modelling of carbonation and sulphate attack in saturated cement pastes. *Proceedings of Computational Mechanics WCCM VI in conjunction with APCOM'04, Beijing (Chine)*, II(408), 2004.
- Bary B. et Mügler C. : Simplified modelling and numerical simulations of concrete carbonation in unsaturated conditions. *Revue européenne de génie civil*, 10(9):1049–1072, 2006.
- Batchelor G. : Computation of the energy spectrum in homogeneous two-dimensional turbulence. *Physics of Fluids*, 12:233, 1969.
- Bejaoui S., Sercombe J., Mügler C. et Peycelon H. : Modelling of radionuclide release from a concrete container. *Transport in Porous Media*, 69(1):89–107, 2007.
- Bénard H. : Les tourbillons cellulaires dans une nappe liquide transportant de la chaleur par convection en régime permanent. In *Annales de Chimie et de Physique*, volume 23, pages 62–144, 1901.

- Bender C. et Orszag S. : *Advanced mathematical methods for scientists and engineers : Asymptotic methods and perturbation theory*, volume 1. Springer Verlag, 1978.
- Bernard O., Ulm F. et Germaine J. : Volume and deviator creep of calcium-leached cement-based materials. *Cement and Concrete Research*, 33(8):1127–1136, 2003.
- Bernard-Michel G., Le Potier C., Beccantini A., Gounand S. et Chraïbi M. : The Andra Coupex 1 test case : Comparisons between finite-element, mixed hybrid finite element and finite volume element discretizations. *Computational Geosciences*, 8(2):187–201, 2004.
- Berner U. : Modelling the incongruent dissolution of hydrated cement minerals. *Radiochimica Acta*, 44(45):387–393, 1988.
- Boisson J., Cabrera J. et de Windt L. : étude des écoulements dans un massif argileux, laboratoire souterrain de Tournemire. *Rapport CEA-IPSN DPRE/SERGD 98/06*, 1998.
- Boussinesq J. : *Théorie analytique de la chaleur*, vol. 2. Gauthier-Villars, Paris, 1903.
- Camporese M., Paniconi C., Putti M. et Orlandini S. : Surface-subsurface flow modeling with path-based runoff routing, boundary condition-based coupling, and assimilation of multisource observation data. *Water Resources Research*, 46:W02512, 2010.
- Carde C. et François R. : Effect of the leaching of calcium hydroxide from cement paste on mechanical and physical properties. *Cement and Concrete Research*, 27(4):539–550, 1997.
- Carde C., François R. et Torrenti J. : Leaching of both calcium hydroxide and csh from cement paste : modeling the mechanical behavior. *Cement and Concrete Research*, 26(8):1257–1268, 1996.
- Cartalade A., Montarnal P., Filippi M., Mügler C., Lamoureux M., Martinez J., Clément F., Wileveau Y., Coelho D. et Tevissen E. : Application of inverse modeling methods to thermal and diffusion experiments at Mont Terri rock laboratory. *Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C*, 32(1-7):491–506, 2007.
- Charlou J., Donval J., Fouquet Y., Jean-Baptiste P. et Holm N. : Geochemistry of high H₂ and CH₄ vent fluids issuing from ultramafic rocks at the Rainbow hydrothermal field (36°14'N, MAR). *Chemical Geology*, 191(4):345–359, 2002.
- Charlou J., Donval J., Konn C., Ondreas H., Fouquet Y., Jean-Baptiste P. et Fourré E. : High production and fluxes of H₂ and CH₄ and evidence of abiotic hydrocarbon synthesis by serpentinization in ultramafic-hosted hydrothermal systems on the Mid-Atlantic Ridge. *Diversity of Hydrothermal Systems on Slow-Spreading Ocean Ridges, Geophys. Monogr. Ser.*, 188, 2010.
- Charlou J., Fouquet Y., Bougault H., Donval J., Etoubleau J., Jean-Baptiste P., Dapoigny A., Appriou P. et Rona P. : Intense CH₄ plumes generated by serpentinization of ultramafic rocks at the intersection of the 15 20'n fracture zone and the Mid-Atlantic Ridge. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 62(13):2323–2333, 1998.
- Chen J., Thomas J., Taylor H. et Jennings H. : Solubility and structure of calcium silicate hydrate. *Cement and Concrete Research*, 34(9):1499–1519, 2004.
- Cherkaoui A. et Wilcock W. : Characteristics of high Rayleigh number two-dimensional convection in an open-top porous layer heated from below. *Journal of Fluid Mechanics*, 394:241–260, 1999.

-
- Coumou D., Driesner T., Geiger S., Heinrich C. et Matthäi S. : The dynamics of mid-ocean ridge hydrothermal systems : Splitting plumes and fluctuating vent temperatures. *Earth and Planetary Science Letters*, 245(1):218–231, 2006.
- Coumou D., Driesner T., Geiger S., Paluszny A. et Heinrich C. : High-resolution three-dimensional simulations of mid-ocean ridge hydrothermal systems. *Journal of Geophysical Research*, 114, 2009a.
- Coumou D., Driesner T., Weis P. et Heinrich C. : Phase separation, brine formation, and salinity variation at black smoker hydrothermal systems. *Journal of Geophysical Research*, 114(B3):B03212, 2009b.
- Coumou D., Matthäi S., Geiger S. et Driesner T. : A parallel FE-FV scheme to solve fluid flow in complex geologic media. *Computers & Geosciences*, 34(12):1697–1707, 2008.
- Crank J. : *The mathematics of diffusion*, volume 1. Oxford University Press, 2nd Edition, 1975.
- Dabbene F. : Mixed-hybrid finite elements for transport of pollutants by underground water. In *10th International Conference of Finite Elements in Fluids. Tucson, Arizona (USA)*, 1998.
- de Marsily G. : Hydrogéologie. Comprendre et estimer les écoulements souterrains et le transport des polluants. Rapport technique, École des Mines de Paris, 1994.
- De Windt L., Burnol A., Montarnal P. et Van der Lee J. : Intercomparison of reactive transport models applied to UO₂ oxidative dissolution and uranium migration. *Journal of Contaminant Hydrology*, 61(1-4):303–312, 2003.
- Douville E. : *Les fluides hydrothermaux océaniques, comportement géochimique des éléments traces et des terres rares, processus associés et modélisation thermodynamique*. Thèse de doctorat, Université de Bretagne occidentale, 1999.
- Douville E., Charlou J., Oelkers E., Bienvenu P., Jove Colon C., Donval J., Fouquet Y., Prieur D. et Appriou P. : The Rainbow vent fluids (36°14'N, MAR) : the influence of ultramafic rocks and phase separation on trace metal content in Mid-Atlantic Ridge hydrothermal fluids. *Chemical Geology*, 184(1-2):37–48, 2002.
- Dukowicz J. : A general, non-iterative Riemann solver for Godunov's method. *Journal of Computational Physics*, 61(1):119–137, 1985.
- Emmanuel S. et Berkowitz B. : Suppression and stimulation of seafloor hydrothermal convection by exothermic mineral hydration. *Earth and Planetary Science Letters*, 243(3-4):657–668, 2006.
- Fontaine F., Rabinowicz M. et Boulègue J. : Permeability changes due to mineral diagenesis in fractured crust : implications for hydrothermal circulation at mid-ocean ridges. *Earth and Planetary Science Letters*, 184(2):407–425, 2001.
- Fontaine F. et Wilcock W. : Two-dimensional numerical models of open-top hydrothermal convection at high Rayleigh and Nusselt numbers : Implications for mid-ocean ridge hydrothermal circulation. *Geochemistry Geophysics Geosystems*, 8(7):Q07010, 2007.

- German C., Parson L., Bougault H., Collier D., Critchley M., Dapoigny A., Day C., Eardley D., Fearn A., Flewellen C. et others : Hydrothermal exploration near the Azores triple junction : tectonic control of venting at slow-spreading ridges? *Earth and Planetary Science Letters*, 138(1-4):93–104, 1996.
- German C., Thurnherr A., Knoery J., Charlou J., Jean-Baptiste P. et Edmonds H. : Heat, volume and chemical fluxes from submarine venting : A synthesis of results from the rainbow hydrothermal field, 36°N MAR. *Deep Sea Research Part I : Oceanographic Research Papers*, 57(4):518–527, 2010.
- Godunov S. : A difference scheme for numerical computation of discontinuous solution of hydrodynamic equations. *Math. Sbornik*, 47:271–306, 1959.
- Haan S. : Weakly nonlinear hydrodynamic instabilities in inertial fusion. *Physics of Fluids B : Plasma Physics*, 3:2349, 1991.
- Haar L., Gallagher J. et Kell G. : *NBS/NRC Steam Tables : Thermodynamic and transport properties and computer programs for vapor and liquid states of water in SI units*. CRC, 1984.
- Harris A., Atkinson A., Balek V., Brodersen K., Cole G., Haworth A., Malek Z., Nickerson A., Nilsson K. et Smith A. : The performance of cementitious barriers in repositories. Rapport technique, European Commission Nuclear Science and Technology Report, Report EUR 17643 EN, 1998.
- Harris A., Manning M., Tearle W. et Tweed C. : Testing of models of the dissolution of cements-leaching of synthetic CSH gels. *Cement and Concrete Research*, 32(5):731–746, 2002.
- Hayek M., Mouche E. et Mügler C. : Modeling vertical stratification of CO₂ injected into a deep layered aquifer. *Advances in Water Resources*, 32(3):450–462, 2009.
- Heukamp F., Ulm F. et Germaine J. : Poroplastic properties of calcium-leached cement-based materials. *Cement and Concrete Research*, 33(8):1155–1173, 2003.
- Höglund L. : Project SAFE. modelling of long-term concrete degradation processes in the Swedish SFR repository. Rapport technique, SKB Report, R-01-08, 2001.
- Hirschfelder J., Curtiss C. et Bird R. : *Molecular theory of gases and liquids*. Wiley, New York, 1954.
- Hromadka T. et Lai C. : Solving the two-dimensional diffusion flow model. *In Hydraulics and Hydrology in the Small Computer Age*, pages 555–562. ASCE, 1985.
- Ingraham R. : Taylor instability of the interface between superposed fluids-solution by successive approximations. *Proceedings of the Royal Society of London. Series B, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character*, 67:748–752, 1954.
- Jain M., Kothiyari U. et Ranga Raju K. : A GIS based distributed rainfall-runoff model. *Journal of Hydrology*, 299(1-2):107–135, 2004.
- Jean-Baptiste P., Fourre E., Charlou J., German C. et Radford-Knoery J. : Helium isotopes at the Rainbow hydrothermal site (Mid-Atlantic Ridge, 36°14'N). *Earth and Planetary Science Letters*, 221(1-4):325–335, 2004.

-
- Johannsen K. : On the validity of the Boussinesq approximation for the Elder problem. *Computational Geosciences*, 7(3):169–182, 2003.
- Kadlec R. : Overland flow in wetlands : vegetation resistance. *Journal of Hydraulic Engineering*, 116:691, 1990.
- Kamali S. : *Comportement et simulation des matériaux cimentaires en environnements agressifs : lixiviation et température*. Thèse de doctorat, École Normale Supérieure de Cachan (France), 2003.
- Kawada Y., Yoshida S. et Watanabe S. : Numerical simulations of mid-ocean ridge hydrothermal circulation including the phase separation of seawater. *Earth, Planets and Space*, 56(2):193–215, 2004.
- Kelley D., Karson J., Blackman D., Früh-Green G., Butterfield D., Lilley M., Olson E., Schrenk M., Roe K., Lebon G. et others : An off-axis hydrothermal vent field near the Mid-Atlantic Ridge at 30°N. *Nature*, 412(6843):145–149, 2001.
- Kelley D., Karson J., Früh-Green G., Yoerger D., Shank T., Butterfield D., Hayes J., Schrenk M., Olson E., Proskurowski G. et others : A serpentinite-hosted ecosystem : the Lost City hydrothermal field. *Science*, 307(5714):1428–1434, 2005.
- Kida S. et Orszag S. : Enstrophy budget in decaying compressible turbulence. *Journal of Scientific Computing*, 5(1):1–34, 1990.
- Kirkby M. : *Hillslope hydrology*. Wiley, Chichester (UK), 1978.
- Kollet S. et Maxwell R. : Integrated surface-groundwater flow modeling : A free-surface overland flow boundary condition in a parallel groundwater flow model. *Advances in Water Resources*, 29(7):945–958, 2006.
- Kull H. : Theory of the Rayleigh-Taylor instability. *Dokl. Akad. Nauk SSSR*, 31:538, 1941.
- Kull H. : Decay of isotropic turbulence in incompressible viscous fluids. *Physics Reports*, 206(5):197–325, 1991.
- Lansard B., Rabouille C. et Massias D. : Variability in benthic oxygen fluxes during the winter-spring transition in coastal sediments : an estimation by in situ micro-electrodes and laboratory mini-electrodes. *Oceanologica Acta*, 26(3):269–279, 2003.
- Lawrence D. : Macroscale surface roughness and frictional resistance in overland flow. *Earth Surface Processes and Landforms*, 22(4):365–382, 1997.
- Lesieur M. : *Turbulence in fluids, fluid mechanics and its applications*, vol. 40, 1997.
- Lovera P. : *Comportement physico-chimique du béton de barrière ouvragée - couplages chimie/hydrodynamique*. Rapport technique, Rapport interne CEA, CEA DEN/DESD/SESD 99.63, 1999.
- Lowell R., Crowell B., Lewis K. et Liu L. : Modeling multiphase, multicomponent processes at oceanic spreading centers. *Magma to Microbe : Modeling Hydrothermal Processes at Ocean Spreading Centers*, 178:15–44, 2008.

- Lowell R. et Germanovich L. : On the temporal evolution of high-temperature hydrothermal systems at ocean ridge crests. *Journal of Geophysical Research*, 99:565–565, 1994.
- Lowell R., Gosnell S. et Yang Y. : Numerical simulations of single-pass hydrothermal convection at mid-ocean ridges : Effects of the extrusive layer and temperature-dependent permeability. *Geochemistry Geophysics Geosystems*, 2007.
- Lowell R. et Rona P. : Seafloor hydrothermal systems driven by the serpentinization of peridotite. *Geophysical Research Letters*, 29(11):1531, 2002.
- Lowell R. et Yao Y. : Anhydrite precipitation and the extent of hydrothermal recharge zones at ocean ridge crests. *Journal of Geophysical Research*, 107:2183, 2002.
- Lowell R., Yao Y. et Germanovich L. : Anhydrite precipitation and the relationship between focused and diffuse flow in seafloor hydrothermal systems. *Journal of Geophysical Research*, 108:2424, 2003.
- MacDonald A. et Fyfe W. : Rate of serpentinization in seafloor environments. *Tectonophysics*, 116(1-2):123–135, 1985.
- Mainguy M., Tognazzi C., Torrenti J. et Adenot F. : Modelling of leaching in pure cement paste and mortar. *Cement and Concrete Research*, 30(1):83–90, 2000.
- Marcaillou C. : *Serpentinisation et production d'hydrogène en contexte de dorsale lente : approche expérimentale et numérique*. Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier de Grenoble, 2011.
- Marcaillou C., Muñoz M., Vidal O., Parra T. et Harfouche M. : Mineralogical evidence for H₂ degassing during serpentinization at 300°C/300bar. *Earth and Planetary Science Letters*, 303:281–290, 2011.
- Mariani P., Mazabrard-Mügler C., Garbesi A. et Spada G. : A study of the structure of the lyomesophases formed by the dinucleoside phosphate d (GpG). an approach by X-ray diffraction and optical microscopy. *Journal of the American Chemical Society*, 111(16):6369–6373, 1989.
- Mason E. et Saxena S. : Approximate formula for the thermal conductivity of gas mixtures. *Physics of Fluids*, 1:361, 1958.
- Meshkov E. : Instability of the interface of two gases accelerated by a shock wave. *Fluid Dynamics*, 4(5):101–104, 1969.
- Mével C. : Serpentinization of abyssal peridotites at mid-ocean ridges. *Comptes Rendus Geoscience*, 335(10):825–852, 2003.
- Meyer K. et Blewett P. : Numerical investigation of the stability of a shock-accelerated interface between two fluids. *Physics of Fluids*, 15:753, 1972.
- Mügler C. : *Étude par diffusion neutronique de cristaux liquides nématiques sous écoulement de Rayleigh-Bénard*. Thèse de doctorat, Université de Paris-Sud, centre d'Orsay (France), 1991.
- Mügler C., Filippi M., Montarnal P., Martinez J. et Wileveau Y. : Determination of the thermal conductivity of opalinus clay via simulations of experiments performed at the Mont Terri underground laboratory. *Journal of Applied Geophysics*, 58(2):112–129, 2006.

-
- Mügler C. et Gauthier S. : Numerical simulations of single-mode Richtmyer-Meshkov experiments. *Physical Review E*, 58(4):4548, 1998.
- Mügler C. et Gauthier S. : Two-dimensional Navier-Stokes simulations of gaseous mixtures induced by Richtmyer-Meshkov instability. *Physics of Fluids*, 12:1783, 2000.
- Mügler C., Genty A. et Cabrera J. : Numerical modelling of hydraulic decompression due to the excavation of tunnel and drifts at the Tournemire underground laboratory. *Geotechnical and Geological Engineering*, 22(4):525–543, 2004a.
- Mügler C., Hallo L., Gauthier S. et Aubert S. : Validation of an ALE Godunov algorithm for solutions of the two-species Navier-Stokes equations. *AIAA journal*, 96-2068, 1996.
- Mügler C., Montarnal P., Dimier A. et Trotignon L. : Reactive transport modelling on the ALLIANCES software platform. *Developments in Water Science*, 55:1103–1115, 2004b.
- Mügler C., Planchon O., Patin J., Weill S., Silvera N., Richard P. et Mouche E. : Comparison of roughness models to simulate overland flow and tracer transport experiments under simulated rainfall at plot scale. *Journal of Hydrology*, 2011.
- Mügler C., Rabouille C., Bombled B. et Montarnal P. : Impact of spatial heterogeneities on oxygen consumption in sediments : Experimental observations and 2D numerical modelling. *Journal of Geochemical Exploration*, 112:76–83, 2012.
- Mohamed M. et Larue J. : The decay power law in grid-generated turbulence. *Journal of Fluid Mechanics*, 219(1):195–214, 1990.
- Montarnal P., Mügler C., Colin J., Descostes M., Dimier A. et Jacquot E. : Presentation and use of a reactive transport code in porous media. *Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C*, 32(1-7):507–517, 2007.
- Mouche E., Hayek M. et Mügler C. : Upscaling of CO₂ vertical migration through a periodic layered porous medium : The capillary-free and capillary-dominant cases. *Advances in Water Resources*, 33(9):1164–1175, 2010.
- Nayfeh A. : *Perturbation methods*. Wiley, New York, 1973.
- Nonat A., Courault A. et Damidot D. : A new model describing the variation of C-S-H Ca/Si ratio with lime concentration in solution. *Cement-Wapno-Beton*, 8:184–191, 2001.
- Oberbeck A. : Über die wärmeleitung der flüssigkeiten bei berücksichtigung der strömungen infolge von temperaturdifferenzen. *Annalen der Physik*, 243(6):271–292, 1879.
- Panday S. et Huyakorn P. : A fully coupled physically-based spatially-distributed model for evaluating surface/subsurface flow. *Advances in Water Resources*, 27(4):361–382, 2004.
- Parkhurst D. et Appelo C. : User's guide to PHREEQC (version 2) - a computer program for speciation, batch-reaction, one-dimensional transport, and inverse geochemical calculations. *US Geological Survey Water-Resources Investigations Report*, 99(4259):312, 1999.
- Passot T. et Pouquet A. : Numerical simulation of compressible homogeneous flows in the turbulent regime. *Journal of Fluid Mechanics*, 181(1):441–466, 1987.

- Patin J. : *Approches de modélisation pour la partition ruissellement-infiltration à différentes échelles spatiales et temporelles. Cas de la parcelle de Thiès (Sénégal) et du bassin versant de Houay Pano (Laos)*. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Lorraine, 2011.
- Phrommavanh V. : *Étude de la migration de l'Uranium en milieu naturel : approche expérimentale et modélisation géochimique*. Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier de Grenoble (France), 2008.
- Planel D. : *Les effets couplés de la précipitation d'espèces secondaires sur le comportement mécanique et la dégradation chimique des bétons*. Thèse de doctorat, Université de Marne la Vallée (France), 2002.
- Poggi F. : *Analyse par vélocimétrie d'un mélange gazeux créé par l'instabilité de Richtmyer-Meshkov*. Thèse de doctorat, Université de Poitiers, 1998.
- Poggi F., Thorembey M. et Rodriguez G. : Velocity measurements in turbulent gaseous mixtures induced by Richtmyer-Meshkov instability. *Physics of Fluids*, 10:2698, 1998.
- Rabouille C., Denis L., Dedieu K., Stora G., Lansard B. et Grenz C. : Oxygen demand in coastal marine sediments : comparing in situ microelectrodes and laboratory core incubations. *Journal of experimental marine biology and ecology*, 285:49–69, 2003.
- Ramshaw J. : Simple model for linear and nonlinear mixing at unstable fluid interfaces with variable acceleration. *Physical Review E*, 58(5):5834, 1998.
- Rayleigh L. : On the dynamics of revolving fluids. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character*, 93(648):148–154, 1917.
- Read D. et Falck W. : *CHEMVAL 2 : a coordinated research initiative for evaluating and enhancing chemical models in radiological risk assessment*. European Commission, 1996.
- Reynolds O. : An experimental investigation of the circumstances which determine whether the motion of water shall be direct or sinuous, and of the law of resistance in parallel channels. *Proceedings of the Royal Society of London*, 35(224-226):84–99, 1883.
- Richtmyer R. : Taylor instability in shock acceleration of compressible fluids. *Communications on Pure and Applied Mathematics*, 13(2):297–319, 1960.
- Saffman P. et Taylor G. : The penetration of a fluid into a porous medium or Hele-Shaw cell containing a more viscous liquid. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences*, 245(1242):312–329, 1958.
- Schoofs S. et Hansen U. : Depletion of a brine layer at the base of ridge-crest hydrothermal systems. *Earth and Planetary Science Letters*, 180(3-4):341–353, 2000.
- Seyfried W., Pester N., Ding K. et Rough M. : Vent fluid chemistry of the Rainbow hydrothermal system (36°N, MAR) : phase equilibria and in-situ pH controls on seafloor alteration processes. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 75(6):1574–1593, 2011.
- Smith M., Cox N. et Bracken L. : Applying flow resistance equations to overland flows. *Progress in Physical Geography*, 31(4):363, 2007.

-
- Sun H., Feistel R., Koch M. et Markoe A. : New equations for density, entropy, heat capacity, and potential temperature of a saline thermal fluid. *Deep Sea Research Part I : Oceanographic Research Papers*, 55(10):1304–1310, 2008.
- Tatard L., Planchon O., Wainwright J., Nord G., Favis-Mortlock D., Silvera N., Ribolzi O., Esteves M. et Huang C. : Measurement and modelling of high-resolution flow-velocity data under simulated rainfall on a low-slope sandy soil. *Journal of Hydrology*, 348(1-2):1–12, 2008.
- Taylor G. : The instability of liquid surfaces when accelerated in a direction perpendicular to their planes. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences*, pages 192–196, 1950.
- Therrien R., McLaren R., Sudicky E. et Panday S. : Hydrogeosphere : A three dimensional numerical model describing fully-integrated subsurface and surface flow and solute transport. Rapport technique, Technical report, Groundwater Simulations Group, University of Waterloo, Waterloo, Ontario, Canada, 2005.
- Tognazzi C. : *Couplage fissuration - dégradation chimique dans les matériaux cimentaires : caractérisation et modélisation*. Thèse de doctorat, INSA Toulouse (France), 1998.
- Tsihrintzis V. : Discussion on variation of roughness coefficients for unsubmerged and submerged vegetation. *Journal of Hydraulic Engineering*, 127(3):241–245, 2001.
- van der Lee J. et De Windt L. : CHESS tutorial and cookbook. *CIG-École des Mines de Paris, Fontainebleau (France)*, 1999.
- Vandenboomgaerde M., Gauthier S. et Mügler C. : Nonlinear regime of a multimode Richtmyer-Meshkov instability : A simplified perturbation theory. *Physics of Fluids*, 14:1111, 2002.
- Vandenboomgaerde M., Mügler C. et Gauthier S. : Impulsive model for the Richtmyer-Meshkov instability. *Physical Review E*, 58(2):1874, 1998.
- VanderKwaak J. : *Numerical simulation of flow and chemical transport in integrated surface-subsurface hydrologic systems*. Thèse de doctorat, University of Waterloo, Ontario (Canada), 1999.
- Velikovich A. et Dimonte G. : Nonlinear perturbation theory of the incompressible Richtmyer-Meshkov instability. *Physical Review Letters*, 76(17):3112–3115, 1996.
- Wasantha Lal A. : Weighted implicit finite-volume model for overland flow. *Journal of Hydraulic Engineering*, 124(9):941–950, 1998.
- Weill S. : *Modélisation des échanges surface/subsurface à l'échelle de la parcelle par une approche darcéenne multidomaine*. Thèse de doctorat, École des Mines de Paris, 2007.
- Weill S., Mouche E. et Patin J. : A generalized Richards equation for surface/subsurface flow modelling. *Journal of Hydrology*, 366(1-4):9–20, 2009.
- Wernet P., Testemale D., Hazemann J., Argoud R., Glatzel P., Pettersson L., Nilsson A. et Bergmann U. : Spectroscopic characterization of microscopic hydrogen-bonding disparities in supercritical water. *The Journal of Chemical Physics*, 123:154503, 2005.

- Wieland E. et Van Loon L. : Cementitious near-field sorption data base for performance assessment of an ILW repository in opalinus clay. Rapport technique, Paul-Scherrer-Institut/Nagra Technical report, PSI Bericht Nr. 03-06, Nagra NTB 02-20, 2003.
- Wilcock W. : Cellular convection models of mid-ocean ridge hydrothermal circulation and the temperatures of black smoker fluids. *Journal of Geophysical Research*, 103:2585–2596, 1998.
- Williamson J. : Low-storage Runge-Kutta schemes. *Journal of Computational Physics*, 35 (1):48–56, 1980.
- Wolery T., Laboratory L. L. N. et of Energy U. S. D. : *EQ3/6 : A software package for geochemical modeling of aqueous systems : package overview and installation guide (version 7.0)*. Lawrence Livermore National Laboratory, CA (USA), 1992.
- Zeitoun D. et Imbert M. : Interaction between the unsteady boundary layer and inviscid hot flow in a shock tube. *AIAA Journal*, 17:821–827, 1979.
- Zhang Q. et Sohn S. : Nonlinear theory of unstable fluid mixing driven by shock wave. *Physics of Fluids*, 9(4):1106–1124, 1997.
- Zhang Q. et Sohn S. : Quantitative theory of Richtmyer-Meshkov instability in three dimensions. *Zeitschrift für Angewandte Mathematik und Physik (ZAMP)*, 50(1):1–46, 1999.
- Zheng C. et Wang P. : MT3DMS : a modular three-dimensional multispecies transport model for simulation of advection, dispersion, and chemical reactions of contaminants in groundwater systems; documentation and user's guide. Rapport technique, DTIC Document, 1999.

Annexes : Articles scientifiques

Afin d'illustrer différents chapitres de ce manuscrit, j'ai sélectionné et reproduit dans les annexes suivantes cinq de mes articles déjà publiés.

Annexe A : Numerical simulations of single-mode Richtmyer-Meshkov experiments

Cette annexe présente l'article :

C. Mügler, S. Gauthier. Numerical simulations of single-mode Richtmyer-Meshkov experiments. *Physical Review E* 58, 4548, 1998.

Cet article illustre l'apport de la modélisation à la compréhension des premières phases de développement de l'instabilité de Richtmyer-Meshkov et vient en complément du §1.3 de la Partie 2 de ce mémoire.

Numerical simulations of single-mode Richtmyer-Meshkov experiments

Claude Mügler* and Serge Gauthier

Commissariat à l'Energie Atomique, Bruyères-le-Châtel, Boîte Postale 12, 91680 Bruyères-le-Châtel, France

(Received 23 February 1998)

Two-dimensional numerical simulation of the fluid instability of a shock-accelerated interface between a light fluid and a heavy one shows a flow pattern very similar to experimental pictures. Furthermore, numerical and experimental amplitude growth rates are in good agreement and are decaying in time in a similar way. Spectral analysis of the flow is performed with the help of two different methods. The peak-to-peak amplitude can be reproduced with 50 mesh zones in the wavelength whereas the streamwise kinetic energy decay in time due to molecular viscous dissipation requires 360 zones in the wavelength and a second-order accurate numerical scheme in space and time to be correctly described. [S1063-651X(98)04410-9]

PACS number(s): 47.20.-k, 47.40.Nm

I. INTRODUCTION

When two different fluids are impulsively accelerated into each other by a shock wave, small perturbations at the interface grow first linearly and then evolve into nonlinear structures having the form of “bubbles” and “spikes.” This instability was theoretically discovered and described by Richtmyer [1], and confirmed experimentally by Meshkov [2]. This phenomenon, known as the Richtmyer-Meshkov (RM) instability, is a typical mechanism for turbulent mixing of layered fluids. It may be related to the Rayleigh-Taylor (RT) instability [3], which is the instability of a planar interface undergoing constant acceleration, such as caused by the suspension of a heavy fluid over a lighter one in the earth's gravitational field. RT and RM instabilities are of critical importance to inertial confinement fusion. Indeed, the degree of compression achievable in laser fusion experiments is ultimately limited by RM and RT instabilities.

RM instability is often studied in shock tubes, where measurements are easier to carry out than in small pellets [4–8]. The major difficulty in shock-tube experiments is in maintaining a well-controlled sharp initial boundary between two gases. One solution to this problem is to initially separate the two gases using a thin membrane. The membrane has little strength and is expected to rupture upon passage of the first shock, although this is not always the case [4,5]. To impose the membrane rupture, discontinuous interfaces are sometimes made of a plastic membrane that is placed directly below a thin wire mesh [5,6]. The membrane is broken into small pieces by the incident shock wave passing through the grid. Other shock-tube experiments have attempted to avoid the effects of membranes by implementing systems in which gases are initially separated by a solid barrier, which is removed just prior to firing the shock tube [8,9]. However, this technique generates relatively thick diffuse interfaces. The diffuse interface tends to stabilize all but the longest wavelengths, thus greatly reducing the resulting instability growth rate.

A number of numerical studies have been performed on the RM instability [10,11]. The initial growth rate of the

perturbation, which is measured between the first and second shocks across the interface, was predicted in two-dimensional calculations to be approximately a factor of 2 too large, as compared with experimental data [10,12]. More recently, front-tracking numerical simulations produced growth rates in much closer agreement to the experimental values [13].

The present study uses the experimental conditions of Zaytsev and co-workers [14,15], who performed shock tube experiments of krypton incident on xenon. In these experiments, a very thin membrane separates the two gases and provides a known initial interface perturbation. The experimental images show well-resolved flow patterns, but do not lead to other flow characteristics. In this paper, we simulate the nonlinear instability growth observed in the experiments. In the next two sections, we present experimental and numerical results. Finally, these results are discussed in Sec. IV.

II. EXPERIMENTS

The experimental study of a two-dimensional RM instability has been carried out in a shock tube of square cross section of $72 \times 72 \text{ mm}^2$ [15]. At about 4.5 m from the diaphragm separating the high- from the low-pressure rooms of the shock tube, two inert gases, a light one (krypton) and a heavy one (xenon), are initially separated by a two-dimensional (2D) sinusoidal interface. This interface is modeled with a $2\text{-}\mu\text{m}$ -thick lavsan film. This film is pasted into a matrix inserted in the driven section. The study of the shock wave interaction with the 2D film has shown that the film does not affect the interface evolution [14]. Just before each experiment, both parts of the driven section are pumped out to 0.01 mm Hg and then filled with test gases. The diagnostics used during these experiments are some schlieren pictures. A detailed description of the setup can be found in Ref. [14].

The initial amplitude of the perturbation at the Kr/Xe interface is $a_0^- = 5 \text{ mm}$, the wavelength is 36 mm, and the pressure ahead of the shock is 0.5 bar. The Kr/Xe interface is accelerated by a 3.5-Mach number shock wave moving from Kr to Xe, i.e., from a light gas to a heavy one. The reflected wave is a shock wave. To observe the evolution of the insta-

*Electronic address: mugler@bruyeres.cea.fr

bility on a sufficiently long time scale, three experimental shots have been necessary. The Mach number is not exactly the same for the three experiments but does not differ too much from 3.5.

III. NUMERICAL METHOD

A. Motivation and description of the numerical choices

The code CADMEE, derived from CFDLIB [16], was developed in order to carry out two-dimensional numerical simulations of compressible mixing flows, such as those occurring in shock tubes. Features of the numerical method are detailed in Ref. [17] but let us recall here the main characteristics of the code CADMEE: (i) It solves the 2D unsteady full Navier-Stokes equations, with physical viscosity and thermal conductivity coefficients. (ii) Mixing of two gases is described within the single fluid approximation by a concentration governed by an advection-diffusion equation, written as

$$\frac{\partial \rho c}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (\rho \vec{u} c) = \vec{\nabla} \cdot (\rho D \vec{\nabla} c), \quad (1)$$

where ρ is the total density and $\vec{u}$ the vector velocity. Partial densities of fluids 1 and 2, ρ_1 and ρ_2 , respectively, and the total density ρ are related by the equation $\rho = \rho_1 + \rho_2$. The concentration of fluid 1 in the mixing, labeled c , is defined as the ratio ρ_1 / ρ . By doing so, no numerical interface and no mixed cells are needed. (iii) Mixing is assumed perfect and isothermal. The mixing model is then simply defined by $P = P_1 + P_2$, $T = T_1 = T_2$, and $e = ce_1 + (1 - c)e_2$, where ρ , P , and e are the total density, pressure, and internal energy, respectively. The indices refer to the partial corresponding quantities of fluids 1 and 2. The equation of state of each species is a perfect gas law. (iv) The viscosity and molecular diffusion coefficients of each species of the mixture are calculated from Ref. [18]. Thermal conductivity coefficients can be obtained directly from viscosity coefficients provided the Prandtl number of each species is assumed to be constant. Mixture viscosity and molecular diffusion coefficients are then determined from Wilke's mixture rule [19] and the thermal conductivity coefficient of the mixture is calculated from the model given in [20]. Finally, all transport coefficients (viscosity, diffusion, and thermal conductivity) depend on the two thermodynamic quantities: concentration and temperature. (v) CADMEE uses structured meshes made of quadrangular cells. (vi) State variables are cell centered. (vii) A Godunov method is used to accurately describe strong discontinuities such as shock waves. It uses the approximate Riemann solver of Dukowicz [21]. Consequently, no artificial viscosities are needed. (viii) A second-order differencing technique in space can be used and second and third Runge-Kutta schemes (RK2 and RK3) have been implemented. We shall see in the following sections the influence of the accuracy of numerical methods. (ix) The computation is performed in two phases: a Lagrangian phase and a remapping phase in which conservative variables are transferred from the Lagrangian mesh to an arbitrary specified mesh. This approach is the so-called arbitrary Lagrangian-Eulerian (ALE) formulation.

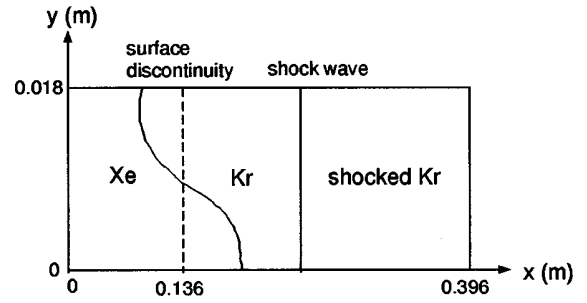


FIG. 1. Shock-tube geometry.

The code CADMEE has been validated against numerous configurations of compressible viscous flows [17].

B. Results of numerical simulations

In this subsection, we will first study the influence of spatial resolution and of the order of the temporal and spatial schemes on numerical results. The definition of the initial hydrodynamic conditions is based on shock-tube experiments previously described. The shock tube can be idealized by considering a long tube as presented in Fig. 1. The mesh extends from $x=0$ to 39.6 cm along the length of the shock tube and covers a quarter of the width of the square cross section. Although mixing is described by a concentration, at $t=0$, the concentration isovalue $c=0.5$ can be seen as a sharp interface. At later times, the mixing zone between krypton and xenon remains very thin. So, we will still use the word “interface.” The initial sinusoidal 2D interface between krypton and xenon is given by

$$x_{\text{interface}} = x_m + a_0^- \cos \frac{2\pi y}{\lambda}, \quad (2)$$

where $x_m = 13.6$ cm is the location of this interface, $a_0^- = 5$ mm the initial amplitude of the perturbation, and $\lambda = 3.6$ cm its wavelength. The dimensionless perturbation amplitude $a_0^- k$ is 0.87. The region to the left of the interface contains xenon while the region to the right contains krypton. The shock wave is initially in the krypton at $x = 14.8$ cm and is moving to the left at Mach number $M = 3.5$. The fluid velocity behind the shock is -55.5 m/s. The shocked krypton has a density of 6.01 kg/m³, a pressure of 75.3×10^4 Pa, and a ratio of specific heats $\gamma = 1.67$. The unshocked krypton has a density of 1.87 kg/m³ and a pressure of 5.0×10^4 Pa. The unshocked xenon has a density of 2.95 kg/m³, a pressure of 5.0×10^4 Pa, and a ratio of specific heats $\gamma = 1.67$. An ideal gas equation of state with constant specific heats is assumed. With such initial conditions, the interface is nearly stationary after shocking and is confined to the region $13 \text{ cm} \leq x \leq 14 \text{ cm}$ and $0 \leq y \leq 18 \text{ cm}$, which we cover with square zones. The region from $x = 14$ cm to $x = 39.6$ cm is used only to contain the reflected shock in such a way that no spurious numerical signal is reflected into the mixing region.

The instant $t=0$ corresponds to the moment the shock strikes the right edge of the perturbation. The right and left boundaries are of flow through type. In this part, only a half-wavelength is simulated and the top and bottom bound-

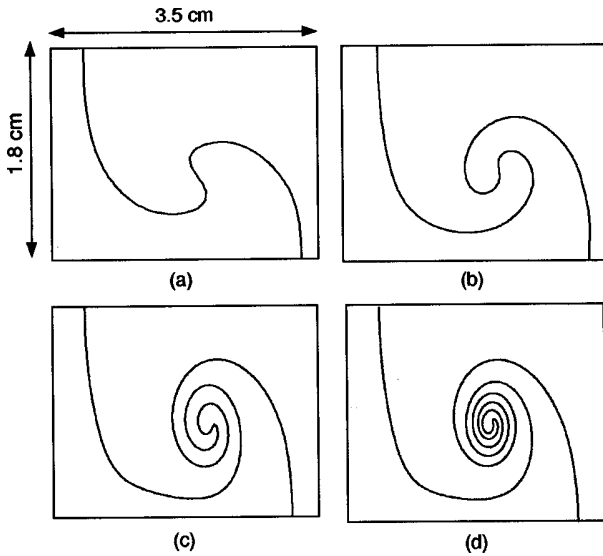


FIG. 2. Isovalue of the concentration $c=0.5$ for various grids: (a) cell size= $0.75 \times 0.72 \text{ mm}^2$, (b) cell size= $0.375 \times 0.36 \text{ mm}^2$, (c) cell size= $0.1875 \times 0.18 \text{ mm}^2$, (d) cell size= $0.1 \times 0.1 \text{ mm}^2$. The numerical scheme is second order accurate in space and time.

aries are free-slip boundaries. The calculation is started with a Lagrangian mesh with nodes located at the initial interface, and continued with a Eulerian grid before the shock reaches the interface. By doing so, the development of undesired perturbations of wavelengths of the order of the mesh size is avoided.

Several runs were carried out with various zone sizes $0.75 \times 0.72 \text{ mm}^2$, $0.375 \times 0.36 \text{ mm}^2$, $0.1875 \times 0.18 \text{ mm}^2$, and $0.1 \times 0.1 \text{ mm}^2$, and with a Courant-Friedrichs-Lewy number equal to 0.9. Such resolutions correspond to 50, 100, 200, and 360 zones in the wavelength, respectively. These calculations have been performed with the second-order scheme in space and time. Figure 2 shows the isovalue of the concentration $c=0.5$ at $t=1 \text{ ms}$ for each of these four zone sizes. The sizes of the window are 3.5 cm width and 1.8 cm height for all figures in this paragraph. At a zone size of $0.75 \times 0.72 \text{ mm}^2$ [Fig. 2(a)], the mushroom develops but the Kelvin-Helmholtz instability along the shaft of each spike needs a thinner grid to be well described [Figs. 2(b), 2(c), and 2(d)]. The thinner the grid, the greater the number of rolling-ups.

For a fixed grid, we also studied the influence of the spatial and temporal accuracy of the numerical scheme on the development of the instability (see Fig. 3). This study was

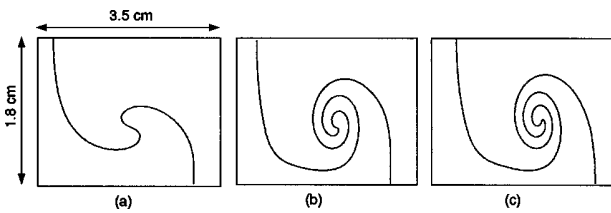


FIG. 3. Isovalue of the concentration $c=0.5$ for various spatial and temporal accuracy, with a fixed grid cell size= $0.1875 \times 0.18 \text{ mm}^2$: (a) first-order accuracy in space and time, (b) second order in space, first order in time, (c) second order in space and time.

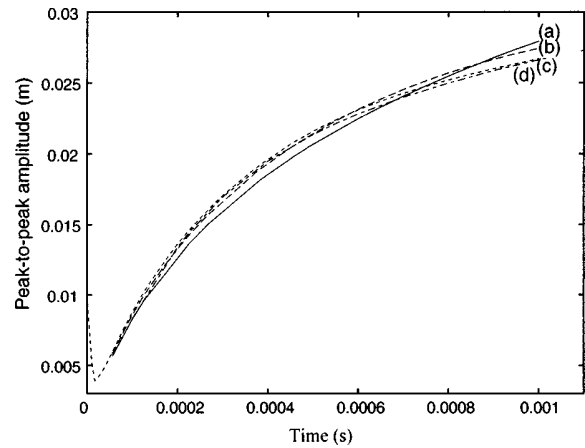


FIG. 4. Evolution of the perturbation amplitude vs time. This amplitude is defined as the peak-to-peak amplitude of the isovalue $c=0.5$ obtained from various grids: (a) cell size= $0.75 \times 0.72 \text{ mm}^2$, (b) cell size= $0.375 \times 0.36 \text{ mm}^2$, (c) cell size= $0.1875 \times 0.18 \text{ mm}^2$, (d) cell size= $0.1 \times 0.1 \text{ mm}^2$.

carried out with a zone size of $0.1875 \times 0.18 \text{ mm}^2$. With a first-order method in space and in time [Fig. 3(a)], the numerical scheme is too diffusive and prevents the Kelvin-Helmholtz instability development. With a second-order method in space and first order in time [Fig. 3(b)], the flow pattern has completely changed and the Kelvin-Helmholtz vortex has appeared. However, temporal accuracy effects are less spectacular than spatial accuracy ones: with a second-order method in space, the increase of the accuracy in time (use of RK2) induces only small differences [Fig. 3(c)]. Moreover, we have checked to be sure that a higher-order scheme in time such as a third Runge-Kutta scheme does not bring any significant improvement. These results illustrate the importance of the accuracy of numerical methods and of spatial resolution.

From the four calculations performed with various zone sizes, we can measure and plot the evolution of the perturbation amplitude versus time (see Fig. 4). This amplitude is defined as the peak-to-peak amplitude of the concentration isovalue $c=0.5$. The discrepancies between the various curves are less than the cell sizes. We can conclude that the peak-to-peak amplitude is converged in terms of zone sizes. However, the flow pattern, as shown in Fig. 3, is not converged. Indeed, Kelvin-Helmholtz instability is very sensitive to the shock description through the baroclinic term in the vorticity equation. The thinner the grid, the stiffer the shock, the more developed the Kelvin-Helmholtz instability. Convergence would require zone sizes smaller than the physical shock thickness. Such zone sizes are two or three orders of magnitude smaller than those used in this paper. In the next section, if it is not explicitly mentioned, numerical results correspond to calculations performed with a zone size of $0.1875 \times 0.18 \text{ mm}^2$.

IV. COMPARISONS AND DISCUSSIONS

Schlieren pictures of the RM instability evolution at the Kr/Xe interface are presented in Fig. 5. These results correspond to the three experimental shots presented in Sec. II. As the incident shock wave travels from the light gas to the

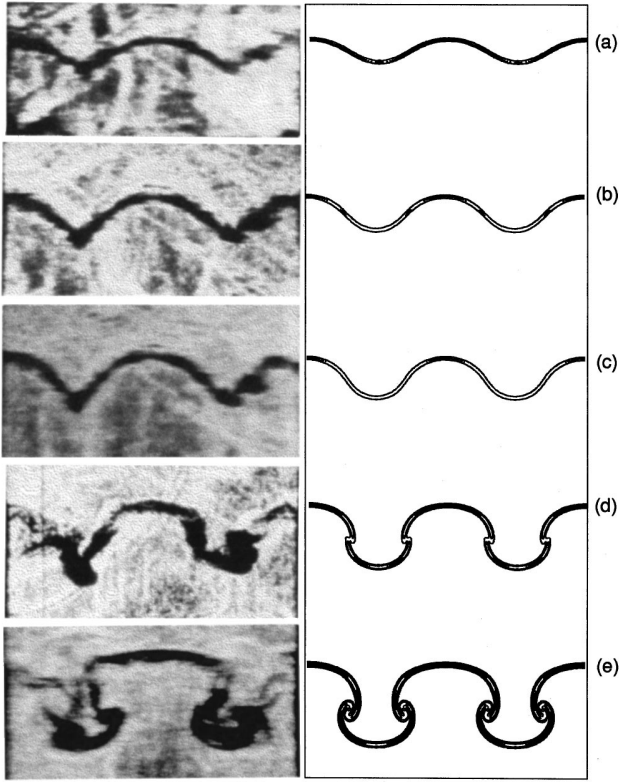


FIG. 5. Evolution of the flow pattern vs time: experimental schlieren pictures of the RM instability (left) and numerical schlieren-type images with $\alpha=2$ in Eq. (3) (right). (a)–(e) are for $t=0, 65, 108, 134, 276$, and $464 \mu\text{s}$, respectively.

heavy one, there is no inversion of concavity after the shock passage. As one can see in these pictures, the perturbation amplitude grows first linearly and then in a nonlinear stage. There is apparition of structures called “bubbles” and “spikes”: the heavy fluid penetrates in the light fluid. As the Atwood number is small ($A=0.22$ and $A=0.184$ before and after the passage of the incident shock wave) the difference of structure between bubbles and spikes is not important and the Kelvin-Helmholtz instability is well developed. In the above, the Atwood number is defined as $(\rho_2 - \rho_1)/(\rho_2 + \rho_1)$, where ρ_1 is the density of the first shocked fluid.

Figure 5 also shows the time evolution of the numerical patterns obtained from schlieren-type images. As the magnitude of the gradient of the density field near a shock wave is very large, the following nonlinear shading function Φ is used to accentuate weak flow features in numerical images:

$$\Phi = 1 - \exp\left(-\alpha \frac{|\vec{\nabla}\rho|}{|\vec{\nabla}\rho|_{\max}}\right), \quad (3)$$

where α is a constant (see, for example, Ref. [22]). As shown in Fig. 5, the visual agreement between experimental schlieren pictures and numerical schlieren-type images is good. Such numerical images are particularly useful to simultaneously visualize interface and shock structures. As an example, Fig. 6 gives the full numerical schlieren-type image of the flow at $t=108 \mu\text{s}$. It shows locations and structures of the interface and of the refracted and reflected shock on the Kr/Xe interface. The distortion of the reflected shock due to

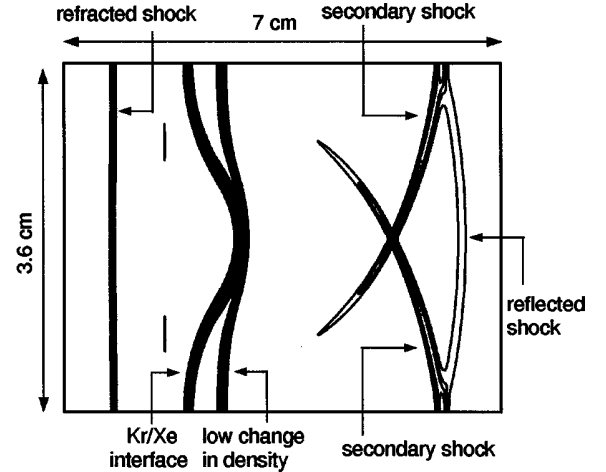


FIG. 6. Full numerical schlieren-type image at $t=108 \mu\text{s}$, with $\alpha=10$ in Eq. (3). The distortion of the shock reflected on the Kr/Xe interface clearly appears.

its reflection on the perturbed interface clearly appears. We can also observe crisscross lines between the Kr/Xe interface and the reflected shock wave. Indeed, at the end of the interaction between the incident shock wave and the Kr/Xe interface, the curved refracted and reflected shock waves generate local high-pressure areas. Zaytsev *et al.* [14] have experimentally shown that once the high-pressure regions have appeared, they start “outspreading.” For sufficiently high values of the pressure amplitude in these regions, this outspreading is accompanied by the generation of secondary shock waves. In Fig. 6, two secondary shock waves traveling behind the perturbed reflected shock wave have just interacted. We have verified that after traveling a certain distance, the reflected shock wave becomes nearly flat. The numerous shock interactions result in changes in density and velocity. For example, in Fig. 6, close to the Kr/Xe interface, very low density variations of the order of 3% can be seen on the schlieren-type image obtained with $\alpha=10$ in Eq. (3) because, with such a value of α , this diagnostic is very sensitive. On the other hand, they do not appear on schlieren-type images obtained with $\alpha=2$ (see Fig. 5).

From experimental schlieren pictures, the interface and the refracted shock locations and the perturbation height are measured at various times. In order to compare experiments with calculations on a quantitative way, we have plotted the perturbation height time evolution. In experiments, the perturbation height is defined as the longitudinal distance between the spike and bubble tips. In numerical simulations, this height is defined as the largest distance between the isovalues of the concentration $c=5\%$ and $c=95\%$. Experimental and numerical results are plotted in Fig. 7(a). Error bars of experimental data are equal to $\pm 5\%$. As we can see, the perturbation height in the simulation is approximately the same as in experimental pictures. We have also plotted in Fig. 7(b) the growth rate of the perturbation as obtained from experiments and numerical simulations. As can be seen from this figure, numerical simulation results are in agreement with experimental data even in the nonlinear regime. The growth rate of the perturbation, dL/dt , can be used to calculate the Mach number of the perturbation, defined as $(dL/dt)/c_s$ where c_s is an average of the sound speeds in

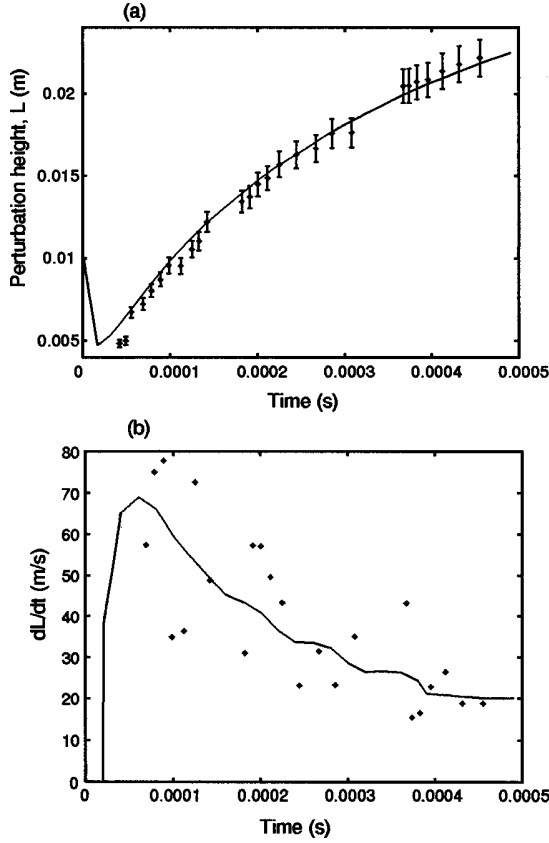


FIG. 7. Evolution of the perturbation height and perturbation growth rate vs time. Plots correspond to experimental data. The error bars are equal to $\pm 5\%$. Full lines correspond to numerical results obtained from code CADMEE.

krypton and xenon. This Mach number rapidly decreases versus time, from the value of 0.16 just after the shock passage, down to 0.04. We also noticed that the maximum value of the velocity divergence is always five orders of magnitude smaller than the maximum value of the vorticity. These results show that the RM unstable system rapidly evolves to a vortical dominated flow.

The impulsive model first proposed by Richtmyer [1] is commonly used to estimate the growth rate of a shock accelerated interface in the linear phase. However, a new general formula for the growth rate of the Richtmyer-Meshkov instability has been recently derived within the framework of the impulsive model [23,24]. This formula, which allows us to predict the growth rate in both configurations (heavy-light and light-heavy configurations) has been validated over more than one hundred cases with various values of both the shock strength parameter ϵ and the adiabatic exponents. It produces a good estimate of the growth rate of the RM instability provided it is used within its range of validity, i.e., $\epsilon \leq 0.4$ and a ratio of adiabatic exponents less than 1.5. In the experiments simulated in this paper, the shock strength parameter ϵ is equal to 0.93 and the dimensionless perturbation amplitude $a(0^-)k$ is equal to 0.87. As a result, a compressible and nonlinear theory is needed and the formulas [1,23,24] can no longer be used. A quantitative nonlinear theory of compressible Richtmyer-Meshkov instability has recently been developed [25]. It gives predictions in good agreement with the results of full numerical simulations from linear to nonlinear regimes.

The nonlinear evolution of the perturbation has been studied by two different methods of modal analysis. In the first spectral analysis, we isolate the concentration isovalue $c = 0.5$ and take its discrete Fourier transform. This first procedure gives an accurate representation of the interface at small times but it is no more valid when the “interface” becomes distorted and multivalued by the development of “bubble” and “spike” structures. So, a second spectral analysis has been developed. To this end, we introduce the new variable $w \equiv \sqrt{\rho}u$ where ρ is the density and u the streamwise velocity component, and we consider the one-dimensional transversal spectrum as done in Ref. [26],

$$E(k_y, t) = \frac{1}{2L_x} \int_{-L_x}^{+L_x} |\hat{w}(x, k_y, t)|^2 dx. \quad (4)$$

In this expression, $\hat{w}(x, k_y, t)$ is the longitudinal discrete Fourier transform of the variable w at a given abscissa x ,

$$\begin{aligned} \hat{w}(x, k_y, t) &\equiv \hat{w}\left(x, \frac{l}{N\Delta y}, t\right) \\ &= \frac{1}{N} \sum_{j=0}^{N-1} w(x, j\Delta y, t) \exp\left(-i \frac{2\pi l j}{N}\right), \end{aligned} \quad (5)$$

where $l = 0, 1, \dots, N-1$, N is the number of samples, and Δy the sample interval. The length $2L_x \leq d$ corresponds to an x span on which the transversal spectrum is averaged. We will commonly choose d equal to the shock-tube square section and the length $2L_x$ greater than or equal to the perturbation height at the final time. The advantage of this second spectral analysis is to give information on all scales present in the mixing zone, even if the flow develops into a turbulent regime. Moreover, the quantity obtained is homogeneous to an energy, but, as it is calculated from only one velocity component, it is not the total kinetic energy.

In Fig. 8, the first spectral analysis is used and the Fourier spectrum of the isovalue of the concentration $c = 0.5$ is displayed at four early increasing times. These times are the same as those used in Fig. 5 where we have plotted the corresponding physical space outline. In Fig. 8, the mode index $l = 1$ corresponds to the wavelength $\lambda = 3.6$ cm. Notice that even at early times the interface is no longer monomode. The shortness of the linear phase has been noticed on other calculations and with another numerical code [27]. Indeed, the simulation with a 2D Lagrangian code of a monomode Richtmyer-Meshkov instability with an incident shock wave at a Mach number equal to 1.3 also showed the early growth of the first harmonic of the principal mode [27]. This multimode behavior that shows the evolution of the amplitudes of the various modes versus time is more noticeable in Fig. 9. It seems that during the interaction, which occurs at $t = 0$, the incident shock wave excites the first harmonic that afterwards slowly increases versus time.

At later times, the flow enters into the nonlinear regime with the familiar asymmetry between bubble and spike regions (see Fig. 5). We can no longer use the Fourier spectrum of the isovalue of the concentration $c = 0.5$ and we now use the second spectral analysis. In this method, we calculate the one-dimensional transversal spectrum of the quantity w , given by Eq. (4) and Eq. (5). Figure 10 gives the evolution of

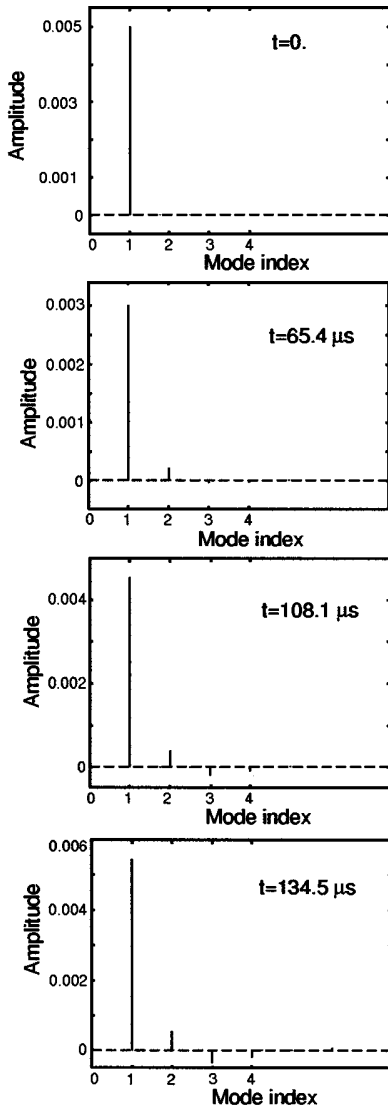


FIG. 8. Fourier transform of the concentration isovalue $c=0.5$ at four various times. At $t=0$, the interface is single mode. The mode index $l=1$ corresponds to the wavelength $\lambda=3.6$ cm.

the normalized amplitude $E(k_0)$ of the main mode k_0 versus time, with a $\ln$ scaling on the y axis. The three different symbols correspond to numerical simulations performed with three different spatial resolutions: a zone size of $0.375 \times 0.36 \text{ mm}^2$ (diamonds in Fig. 10), a zone size of $0.1875 \times 0.18 \text{ mm}^2$ (crosses) and a zone size of $0.1 \times 0.1 \text{ mm}^2$ (squares). Such resolutions correspond to 100, 200, and 360 zones in the wavelength, respectively. In Fig. 10, the straight line gives the theoretical decay of the kinetic energy due to the viscous dissipation: its slope is equal to the product $-2\nu k_0^2$, where the physical kinematic viscosity ν is equal to $10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$. Once again, this figure clearly stresses the importance of spatial resolution on the streamwise kinetic energy decay: it needs a zone size of $0.1 \times 0.1 \text{ mm}^2$, i.e., 360 zones in the wavelength, to recover an exponential energy decay equal to molecular viscous dissipation. This result shows that the one-dimensional transversal spectrum is very sensitive to the numerical resolution. At larger grids, the streamwise kinetic energy decay gives an estimate of numerical viscosity

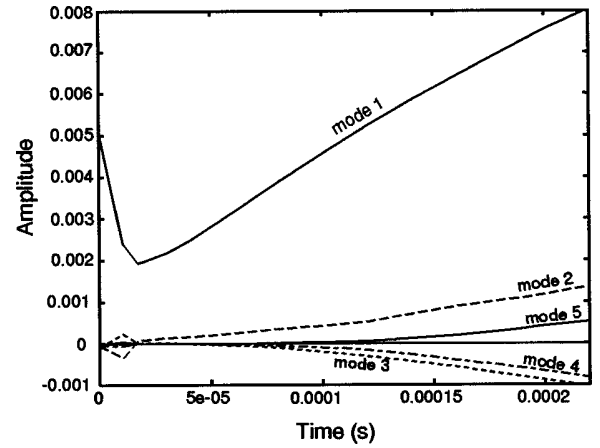


FIG. 9. Evolution of the amplitudes of the first five Fourier modes of the concentration isovalue $c=0.5$ vs time.

that becomes larger than molecular viscosity. The numerical viscosity ν_{num} is approximately 12 and 60 times larger than the physical kinematic viscosity ν at a resolution of 200 and 100 zones in the wavelength, respectively, if we assume that numerical dissipation is dominated by a Laplacian that is written in the spectral space as $-2\nu_{\text{num}}k^2$.

In order to verify that the exponential decay in time is really due to molecular viscous dissipation, we have performed two other numerical simulations with the thinnest spatial resolution and with greater values of the kinetic viscosity. Figure 11 gives the evolution of the normalized amplitude $E(k_0)$ of the main mode k_0 versus time, with a $\ln$ scaling on the y axis. The three different symbols correspond to numerical results obtained from three viscosity coefficient values: $\nu=1 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ (squares in Fig. 11), $\nu=12 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ (crosses), and $\nu=60 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ (diamonds).

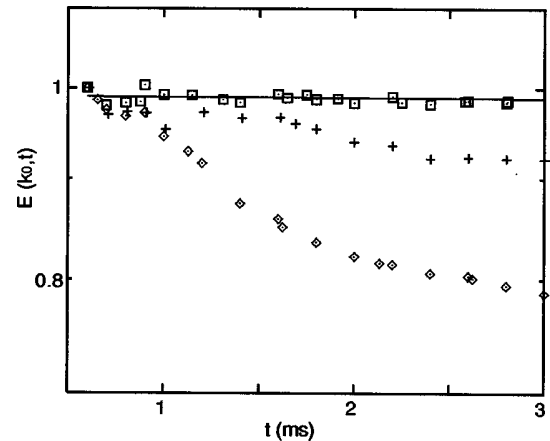


FIG. 10. Evolution of the normalized amplitude $E(k_0)$ of the main mode k_0 versus time, with a $\ln$ scaling on the y axis. The three different symbols correspond to numerical results obtained from three different zone sizes: $0.375 \times 0.36 \text{ mm}^2$ (diamonds), $0.1875 \times 0.18 \text{ mm}^2$ (crosses), and $0.1 \times 0.1 \text{ mm}^2$ (squares). The straight line represents the kinetic energy decay due to the main viscous dissipation term; its slope is equal to $-2\nu k_0^2$, where the physical kinematic viscosity ν is equal to $10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$. This figure clearly shows the importance of spatial resolution on the streamwise kinetic energy decay.

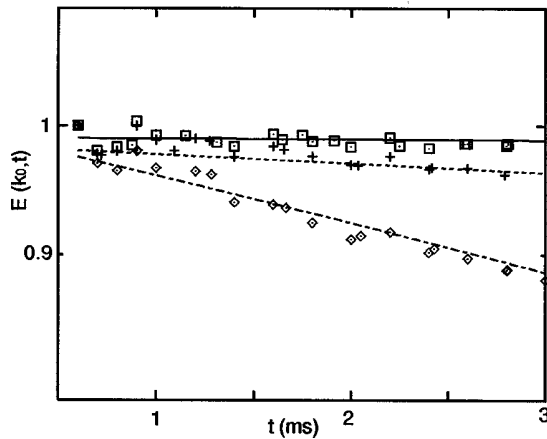


FIG. 11. Evolution of the normalized amplitude $E(k_0)$ of the main mode k_0 vs time, with a $\ln$ scaling on the y axis. The three different symbols correspond to numerical results obtained from three different viscosity coefficient values: $\nu = 1 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ (squares), $\nu = 1.2 \times 10^{-4} \text{ m}^2/\text{s}$ (crosses), and $\nu = 6 \times 10^{-4} \text{ m}^2/\text{s}$ (diamonds). In each case, numerical results are well fitted with straight lines of slope $-2\nu k_0^2$ where ν is the corresponding value of the kinematic viscosity.

In each case, numerical results are well fitted with straight lines of slope $-2\nu k_0^2$ where ν is the corresponding value of the kinematic viscosity. We can conclude that the streamwise kinetic energy decays exponentially in time and that this decay is due to molecular viscous dissipation.

V. CONCLUSION

2D numerical simulations of the fluid instability of a shock-accelerated interface between a light fluid and a heavy one shows a flow pattern very similar to experimental pictures. Furthermore, numerical and experimental amplitude growth rates are in good agreement and are decaying in time

in a similar way. On one hand, this comparison shows that it is possible to accurately simulate a RM instability provided the experimental initial conditions (amplitude and wave number of the 2D perturbation) are well known. On the other hand, this result allows us to conclude that the initial presence of the membrane at the interface, which is not simulated, has negligible effects on the development of the instability in this particular experiment. Simulations have been performed with the code CADMEE. In this numerical method, mixing is described by a concentration. This proves that front tracking is not necessary to obtain good agreement with experimental data.

At a sufficiently long time after the interaction between the shock wave and the interface, spectral analysis showed that the streamwise kinetic energy in the mixing zone decays exponentially in time. This exponential decay is clearly due to viscous dissipation. We have seen that we can recover the physical viscous dissipation behavior if we use a second accurate scheme in space and time and very high spatial resolution (360 zones in the wavelength). In such a case, physical viscous dissipation dominates numerical viscosity, which is not true with coarser grids. This result shows that higher-order numerical schemes would be welcome to accurately simulate Richtmyer-Meshkov experiments.

Spectral analysis also showed that the passage of an incident shock wave through an initially single-mode interface excites the main mode but also the first harmonic. Consequently, just after the interaction, the interface is no longer single mode. It is clear that there is still much to learn about the linear and nonlinear aspects of the Richtmyer-Meshkov instability to better understand how compressibility affects the fluid flow.

ACKNOWLEDGMENT

One of the authors (C.M.) is very grateful to Professor S. G. Zaytsev for useful discussions on his experiments.

-
- [1] R. D. Richtmyer, *Commun. Pure Appl. Math.* **13**, 297 (1960).
 - [2] E. E. Meshkov, *Fluid Dyn. (USSR)* **4**, 101 (1969).
 - [3] G. I. Taylor, *Proc. R. Soc. London, Ser. A* **201**, 192 (1950).
 - [4] G. Rodriguez, I. Galametz, M.-H. Thorembey, C. Rayer, and J.-F. Haas, *Visualization of Shocked Mixing Zones Using Differential Interferometry and X-rays*, 20th International Symposium on Shock Waves, Pasadena, California, edited by H. Hornung (World Scientific, Singapore, 1996).
 - [5] M. Vetter and B. Sturtevant, *Shock Waves* **4**, 247 (1995).
 - [6] F. Poggi, M.-H. Thorembey, G. Rodriguez, and J.-F. Haas, in *Measurements of Velocity in the Turbulent Stage at Gaseous Mixtures Induced by Shock Waves*, IUTAM Symposium on Variable Density Low Speed Turbulent Flows, Marseille, edited by L. Fulachier, J. L. Lumley, and F. Anselmet (Kluwer Academic, Dordrecht, 1997).
 - [7] R. Bonazza and B. Sturtevant, *Phys. Fluids* **8**, 2496 (1996).
 - [8] I. Galametz, G. Delouis, M.-H. Thorembey, C. Rayer, G. Rodriguez, and J.-F. Haas, in *Visualization of Shocked Mixing Zones Using Differential Interferometry and X-rays*, Proceedings of the Fifth International Workshop on the Physics of Compressible Turbulent Mixing, edited by R. Young, J. Glimm, and B. Boston (World Scientific, Singapore, 1996).
 - [9] M. Brouillette and B. Sturtevant, *J. Fluid Mech.* **263**, 271 (1994).
 - [10] L. D. Cloutman and M. F. Wehner, *Phys. Fluids A* **4**, 1821 (1992).
 - [11] R. M. Baltrusaitis, M. L. Gittings, R. P. Weaver, R. F. Benjamin, and J. M. Budzinski, *Phys. Fluids* **8**, 2471 (1996).
 - [12] K. A. Meyer and P. J. Blewett, *Phys. Fluids* **15**, 753 (1972).
 - [13] J. W. Grove, R. Holmes, D. H. Sharp, Y. Yang, and Q. Zhang, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 3473 (1993).
 - [14] S. G. Zaytsev, A. N. Aleshin, E. V. Lazareva, S. N. Titov, E. I. Chebotareva, V. Rozanov, I. Lebo, and V. Demchenko, in *Experimental Investigation of Rayleigh-Taylor and Richtmyer-Meshkov Instabilities*, edited by N. Wilke, Proceedings of the Third International Workshop on the Physics of Compressible Turbulent Mixing (CEA DAM Press, Paris, 1997).
 - [15] A. N. Aleshin, E. V. Lazareva, and S. G. Zaytsev (unpublished).

- [16] F. L. Addesio, J. R. Baumgardner, J. K. Dukowicz, N. L. Johnson, B. A. Kashiva, R. M. Rauenzhan, and C. Zemach, in Los Alamos National Laboratory, Report No. 10613 (1990).
- [17] C. Mügler, S. Gauthier, L. Hallo, and S. Aubert, AIAA Report No. 96-2068 (1996).
- [18] J. O. Hirschfelder, C. F. Curtiss, and R. B. Bird, *Molecular Theory of Gases and Liquids* (Wiley, New York, 1954).
- [19] C. R. Wilke, J. Chem. Phys. **18** (4), 517 (1950).
- [20] E. A. Mason and S. C. Saxena, Phys. Fluids **1**, 361 (1958).
- [21] J. K. Dukowicz, J. Comput. Phys. **61**, 119 (1985).
- [22] J. J. Quirk and S. Karni, ICASE Report No. 94-75 (1994).
- [23] C. Mügler, M. Vandenboomgaerde, and S. Gauthier, in *Richtmyer-Meshkov Instability in Inviscid and Viscous Flows*, Proceedings of the Fifth International Workshop on the Physics of Compressible Turbulent Mixing, edited by R. Young, J. Glimm, and B. Boston (World Scientific, Singapore, 1996).
- [24] M. Vandenboomgaerde, C. Mügler, and S. Gauthier, *Richtmyer-Meshkov Instability: the Impulsive Model Revisited*, Proceedings of the Sixth International Workshop on the Physics of Compressible Turbulent Mixing, edited by G. Jourdan and L. Houas (Caractère, Marseille, 1997); see also Phys. Rev. E **58**, 1874 (1998).
- [25] Q. Zhang and S. I. Sohn, Phys. Fluids **9**, 1106 (1997).
- [26] M. Lesieur, C. Staquet, P. Le Roy, and P. Comte, J. Fluid Mech. **192**, 511 (1988).
- [27] J.-M. Clarisse (private communication).

Annexe B : Two-dimensional Navier-Stokes simulations of gaseous mixtures induced by Richtmyer-Meshkov instability

Cette annexe présente l'article :

C. Mügler, S. Gauthier. Two-dimensional Navier-Stokes simulations of gaseous mixtures induced by Richtmyer-Meshkov instability. *Physics of Fluids* 12, 1783, 2000.

Cet article illustre l'apport de la modélisation à l'analyse et à la compréhension de la transition à la turbulence suite au développement de l'instabilité de Richtmyer-Meshkov. Il vient en complément du §1.6 de la Partie 2 de ce mémoire.

Two-dimensional Navier–Stokes simulations of gaseous mixtures induced by Richtmyer–Meshkov instability

Claude Mügler^{a)} and Serge Gauthier

Commissariat à l’Énergie Atomique/Bruyères-le-Châtel, Boîte Postale 12, 91680 Bruyères-le-Châtel, France

(Received 23 June 1999; accepted 3 April 2000)

Two-dimensional numerical calculations of the fluid instability of shock-accelerated interfaces between a heavy fluid and a light one are carried out in order to simulate experiments performed by Poggi *et al.* [Phys. Fluids **10**, 2698 (1998)]. In these experiments, the laser Doppler anemometry technique gives measurements of the fluctuating velocity. Experimental data show that a turbulent mixing zone is generated by the incident shock wave. This turbulent regime is reproduced by two-dimensional calculations. Before the first reshock, several quantities in the mixing zone, such as bubble and spike fronts, turbulent kinetic energy, enstrophy, adopt a quasi self-similar behavior versus time. In particular, we can see in numerical simulations the decay of the turbulent kinetic energy before the first reflected shock wave–mixing-zone interaction and its strong enhancement by reshocks. Furthermore, spectral analysis of the numerical results exhibit a k^{-3} energy spectrum. Experimental measurements also show that the turbulent boundary layers which develop on the shock-tube walls accelerate the fluid flow in the middle of the tube. Numerical simulations clearly reproduce both this acceleration and the lambda-shock structure observed in experiments. © 2000 American Institute of Physics. [S1070-6631(00)01207-1]

I. INTRODUCTION

When two different fluids are impulsively accelerated into each other by a shock wave, small perturbations at the interface grow first linearly and then evolve into nonlinear structures having the form of “bubbles” and “spikes.” Afterwards, it may lead to the formation of a turbulent mixing zone. This instability was theoretically discovered and described by Richtmyer,¹ and experimentally confirmed by Meshkov.² This phenomenon, known as the Richtmyer–Meshkov (RM) instability is a typical mechanism for turbulent mixing of layered fluids and is of critical importance to inertial confinement fusion.

RM instability is usually studied in shock tubes, where measurements are easier to carry out than in small pellets.^{3–7} In almost all the shock-tube experiments, two gases, a heavy one and a light one, are initially separated using a thin plastic membrane which is often placed directly below a thin wire mesh.^{4,6,7} The membrane is then broken into small pieces by the incident shock wave passing through the grid. Shock-tube experiments provide mostly schlieren visualizations for the mixing-zone thickness.^{3,4} This diagnostic gives only qualitative information about the intensification of mixing. More quantitative information is obtained by x-rays and differential interferometry measurements,⁵ or by infrared absorption.⁶ These diagnostics give the density profiles in the mixing zone. The thickening of these density profiles with time is then often attributed to turbulent diffusion in the mixing zone. After the interaction of the reflected shock at the end wall with the mixing zone, a relative intensification of the density fluctuation is sometimes observed and tends to

confirm that the flow is turbulent.⁶ But all the profiles are averaged along the shock-tube thickness and are consequently deformed by the presence of boundary layers which develop on the shock-tube walls. So, their interpretation remains difficult. Finally, in all previous experiments, the diagnostics give only an indirect measurement of turbulence: Intensification of mixing or intensification of averaged density fluctuations. Furthermore, there is no evidence of turbulence in the mixing before its interaction with the first reflected shock. Therefore, the new experiments performed by Poggi *et al.* are of particular interest.^{7,8} In these experiments, instantaneous velocities in a gaseous mixture arising from the shock-wave-induced Richtmyer–Meshkov instability are measured by Laser Doppler Anemometry (LDA). These experiments give for the first time a direct measurement of turbulence. Experimental data demonstrate that the initial small scale perturbations of the interface develop into a turbulent mixing zone after the incident shock-wave passage. Velocity measurements clearly show the strong amplification of turbulence when the shocks reflected at the end wall interact with the mixing zone. Furthermore, data exhibit a decrease of the turbulence level between two successive reshocks, which is explained by both diffusion and dissipation.

Numerous numerical studies have been performed on the RM instability. The first Lagrangian simulations are reported by Meyer and Blewett.⁹ Some years after, Cloutman and Wehner performed two- and three-dimensional simulations based on both the Euler and Navier–Stokes equations with a finite difference numerical method and a front-tracking technique.¹⁰ All these computations of the RM instability for singly shocked, sinusoidally perturbed interfaces predict growth rates greater than observed in single-interface experiments. Only recent computations show agreement with ex-

^{a)}Electronic mail: claude.mugler@cea.fr

perimental growth rates. First, this agreement has been attributed to the use of a front-tracking technique.^{11,12} A front-tracking technique seems well adapted to describe large-scale structures but it cannot be used to simulate turbulent gaseous flows. In this case, a mixing model which describes gaseous mixing at a molecular level is needed. Nowadays, other numerical methods give as good results as a front-tracking technique. For example, 2D (two-dimensional) numerical simulations of the RM instability at two nearby interfaces performed with an Adaptive Mesh Refinement (AMR) Eulerian code show flow patterns in agreement with experimental images.¹³ This AMR code and the front-tracking code were compared together with single-mode RM experiments performed with strong radiatively driven shocks.¹⁴ The two numerical techniques agree on the large-scale structures, such as the amplitude of the interface perturbation, and both of them are able to describe experimental data. Other 2D numerical simulations of single-mode RM experiments performed with an Arbitrary Lagrangian–Eulerian (ALE) code also give flow patterns very similar to experimental pictures.¹⁵ In these simulations, mixing of two gases is described within the single fluid approximation by using a concentration governed by an advection-diffusion equation. Numerical and experimental growth rates are in good agreement and are decaying in time in a similar way. All these computations show that experimental and numerical flow patterns are very similar provided the experimental initial conditions (amplitude and wave number of the perturbation) are well known.

The goal of our project is to perform highly resolved three-dimensional numerical simulations of flows subsequent to the RM instability, in order to study both the transitional and the turbulent regimes. Since the Reynolds number of such flows is moderate,¹⁶ direct numerical simulations seem to be feasible. In such an approach, the whole method — physical models, numerical schemes, implementation and resolution — is first confronted with experimental data. Then, numerical results processing gives access to physical quantities, such as vorticity, energy spectrum or statistical correlations, that cannot be measured or extracted from measurements.

In this paper, we apply this general strategy to two-dimensional calculations. As already stated, the whole method is confronted with the experimental data of Poggi *et al.*^{7,8} At this stage, experimental data are directly compared with the numerical results in order to interpret the experiments. These shock-tube experiments of SF₆ incident on air demonstrate that the initial small-scale perturbations of the interface develop into a turbulent mixing zone, whose turbulence level decays before the first reflected shock wave arrives from the end wall. Afterwards, the reshock interaction amplifies the turbulence level through a baroclinic effect. Experimental measurements also show that the turbulent boundary layers which develop on the shock-tube walls accelerate the fluid flow in the middle of the tube. Numerical simulations clearly reproduce both this acceleration and the lambda-shock structure observed in experiments. In a second step, we perform a detailed study of the numerical results. In particular, we show that right after the first shock passage the

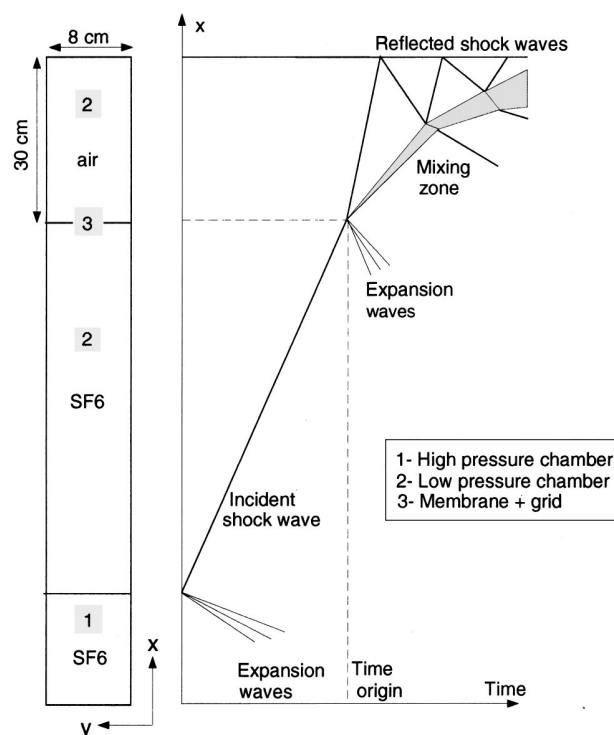


FIG. 1. Schematic shock tube and (x, t) diagram (Ref. 8).

flow still depends on the initial conditions through the large scales although a k^{-3} energy spectrum may be exhibited. After the first reshock, the flow also exhibits a k^{-3} energy spectrum. Moreover, we can see in numerical simulations the scenario detailed above, i.e., decay of the turbulence before the first reflected shock wave–mixing zone interaction and amplification by reshocks.

Experimental conditions will be described in Sec. II of this paper. Afterwards, Sec. III will give a description of the numerical methods used to perform the high-resolution simulations. In Sec. IV, experimental measurements and numerical results will be compared, and, finally, in Sec. V, a detailed study of the numerical results will be presented and discussed.

II. EXPERIMENTS

In the experiments performed in the vertical shock-tube at C.E.A.^{7,8} a discontinuous heavy-light interface between hexafluoride (SF₆) and air is impulsively accelerated by an incident upward shock wave (Mach number 1.45, shock strength 0.54) and decelerated by several reshocks of decreasing strength (0.38 for the first reflected shock, 0.15 for the second one), as shown in Fig. 1. The shock strength is defined as the pressure jump across the shock front normalized by the pressure behind the shock. The initial Atwood number, defined as $(\rho_2 - \rho_1)/(\rho_2 + \rho_1)$ where ρ_1 is the density of the first shocked fluid (here the SF₆), is equal to -0.67 . The tube has a square cross section ($80 \times 80 \text{ mm}^2$) with high (5 bar) and low-pressure (1 bar) chambers, 0.8 and 2.96 m long, respectively. The distance between the initial interface position and the upper end wall is set to 0.3 m. The

two gases, the heavy one (SF_6) and the light one (air), are initially separated by a plastic membrane $0.3 \mu\text{m}$ thick, which is placed directly below a thin wire mesh (wire spacing and diameter: 1.01 and 0.08 mm). The membrane is broken into small pieces by the passing incident shock wave through the grid. Therefore, the initial wavelengths of the perturbations at the SF_6 –air interface are supposed to be of the order of the mesh size.

A schlieren visualization allows us to measure the time-dependent location and thickness of the mixing zone. Another diagnostic, the Laser Doppler Anemometry (LDA), gives measurements of the fluctuating flow velocity at selected points in the shock tube. A detailed description of the setup and the characteristics of the diagnostics can be found in Ref. 7.

III. EQUATIONS AND NUMERICAL CHOICES

A. Governing equations

The code CADMÉE, derived from CFDLIB,¹⁷ was developed in order to carry out two-dimensional numerical simulations of unsteady compressible mixing flows, such as those occurring in shock tubes. Features of the modeling are the following:

(i) CADMÉE solves the 2D unsteady full Navier–Stokes equations, namely, the mass, momentum, and energy conservation equations for a viscous, compressible fluid:

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_j}(\rho u_j) &= 0, \\ \frac{\partial}{\partial t}(\rho u_i) + \frac{\partial}{\partial x_j}(\rho u_i u_j) &= -\frac{\partial P}{\partial x_i} + \frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial x_j}, \\ \frac{\partial}{\partial t}(\rho E) + \frac{\partial}{\partial x_j}(\rho E u_j) &= -\frac{\partial}{\partial x_j}(P u_j) + \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\chi \frac{\partial T}{\partial x_j} \right) + \frac{\partial}{\partial x_j}(\sigma_{ij} u_j). \end{aligned} \quad (1)$$

In these equations ρ is the mass density, T , the temperature, P , the pressure, u_i with $i=1,2$, the material velocity component in the x_i direction, with $x_1 \equiv x$ and $x_2 \equiv y$, $E = e + u_i u_i / 2$, the mass specific total energy, e , the mass specific internal energy, and χ , the thermal conductivity coefficient. The components σ_{ij} of the viscous stress tensor $\bar{\sigma}$ are defined in the Stokes approximation by

$$\sigma_{ij} = \mu \left(\frac{\partial u_j}{\partial x_i} + \frac{\partial u_i}{\partial x_j} - \frac{2}{3} \delta_{ij} \frac{\partial u_k}{\partial x_k} \right), \quad (2)$$

where μ is the dynamic viscosity coefficient.

(ii) Mixing of two gases is described within the single fluid approximation by a concentration governed by an advection-diffusion equation which writes

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho c) + \frac{\partial}{\partial x_i}(\rho c u_i) = \frac{\partial}{\partial x_i} \left(\rho D \frac{\partial c}{\partial x_i} \right). \quad (3)$$

where D is the diffusion coefficient. Partial densities of fluids 1 and 2, ρ_1 and ρ_2 , are equal to ρc and $\rho(1-c)$, respectively. By doing so, no numerical interface and no mixed cells are needed.

(iii) The pressure P and the density ρ are the sum of the partial pressures and densities of each component, respectively. They are related to temperature by the perfect gas law. The local thermal equilibrium hypothesis is assumed, which implies that the temperature is the same for each species

$$P = P_1 + P_2,$$

$$\rho = \rho_1 + \rho_2,$$

$$T = T_1 = T_2,$$

$$P_i = \rho_i \frac{\mathcal{R}}{\mathcal{M}_i} T = (\gamma_i - 1) \rho_i c_{vi} T, \quad i=1,2.$$

The indices refer to the partial corresponding quantities of fluids 1 and 2. The ratio of specific heats of the mixture, noted γ , can be evaluated with help of the following relations:

$$\begin{aligned} \gamma &= \frac{c_{p_{\text{mixing}}}}{c_{v_{\text{mixing}}}} = \frac{c c_{p_1} + (1-c) c_{p_2}}{c c_{v_1} + (1-c) c_{v_2}} \\ &= \frac{c c_{v_1} \gamma_1 + (1-c) c_{v_2} \gamma_2}{c c_{v_1} + (1-c) c_{v_2}}. \end{aligned} \quad (4)$$

The specific internal energy of the mixture is written

$$e = c_{v_{\text{mixing}}} T = (c c_{v_1} + (1-c) c_{v_2}) T. \quad (5)$$

With these hypotheses, the sound speed c and the Mach number M are defined as

$$c^2 = \frac{\gamma P}{\rho}, \quad M = \frac{\|\mathbf{u}\|}{c}. \quad (6)$$

(iv) Viscosity and molecular diffusion coefficients of each species of the mixture are calculated from Ref. 18. Thermal conductivity coefficients can be obtained directly from viscosity coefficients provided the Prandtl number of each species is assumed to be constant. Mixture viscosity and molecular diffusion coefficients are then determined from Wilke's mixture rule¹⁹ and the mixture thermal conductivity coefficient is calculated from the model given in Ref. 20. Finally, all transport coefficients, (viscosity, diffusion, and thermal conductivity), depend on the two thermodynamic quantities: concentration and temperature.

B. Description of the numerical choices

Features of the numerical method are detailed in Ref. 21 but let us recall here the main characteristics of the code CADMÉE:

- (i) CADMÉE uses structured meshes made of quadrangular cells;
- (ii) state variables are cell-centered;
- (iii) a Godunov method is used to accurately describe strong discontinuities such as shock waves. It uses the

- approximate Riemann solver of Dukowicz.²² Consequently, no artificial viscosity is needed;
- (iv) a second-order differencing technique in space can be used and a low-storage second order Runge–Kutta scheme has been implemented.²³ The importance of the scheme accuracy has been shown in a previous paper;¹⁵
 - (v) the computation is performed in two phases: A Lagrangian phase and a remapping phase in which conservative variables are transferred from the Lagrangian mesh to an arbitrary specified mesh. This approach is the so-called Arbitrary Lagrangian–Eulerian (ALE) formulation;
 - (vi) Although the code solves the 2D Navier–Stokes equations, a turbulent algebraic model, the Baldwin–Lomax model,²⁴ has been implemented in order to model turbulent boundary layers that usually develop along shock tube walls. Indeed, direct numerical simulations of transition and turbulence in the boundary layers would have required higher spatial resolutions. Furthermore, it would have been necessary to define the characteristics of the perturbations which destabilize the boundary layers. In experiments, schlieren pictures clearly show that the boundary layers are turbulent. Several defects on the shock-tube walls certainly contribute to the transition, but they are not well identified. So, as we are not interested in the boundary layers themselves but only in their effects on the flow, we prefer using a well-known turbulent model which acts only near the walls. The Baldwin–Lomax model is a two-layer eddy viscosity model in which the turbulence effects are modeled through the expression of turbulent transport coefficients which are added to the molecular transport coefficients in the Navier–Stokes equations. The turbulent eddy viscosity μ_t is given by

$$\mu_t = \begin{cases} (\mu_t)_{\text{in}} & 0 \leq y \leq y_c \\ (\mu_t)_{\text{out}} & y_c \leq y \leq \delta \end{cases}$$

where y is the normal distance from the wall and y_c can be defined as the smallest value for which the two formulations are equal. Consequently, the turbulent model does not act far from the walls.

The code CADMÉE has been validated against numerous configurations of compressible viscous flows.²¹ Of particular importance to the computations reported in this paper is the fact that we are performing direct 2D numerical simulations. Indeed, as already stated, the Baldwin–Lomax turbulence modeling used here acts only near the walls.

IV. COMPARISON OF EXPERIMENTS AND SIMULATIONS

A. Initial configurations

The definition of the initial hydrodynamic conditions for the computations is based on shock-tube experiments previously described. As said before, the CEA shock tube is ver-

tical. However, out of habit, the simulated shock tube will be horizontal. This rotation does not have any consequence in the configuration studied because gravity effects can be neglected. In numerical simulations, the initial perturbation of the interface is multimode and composed of eight wavelengths λ of the order of the experimental wire mesh size: $\lambda = 0.5, 0.625, 0.8, 1, 1.25, 1.6, 2$, and 2.5 mm. As we shall see below, before the reshock, the evolution of the mixing-zone width depends on the characteristics of the initial perturbations at the interface. So, in computations, we assume that the wavelengths are of the order of the experimental wire mesh size but we have no experimental information on the amplitude values. So, we arbitrarily take the same value for all the amplitudes. This value, equal to 0.2 mm, has been deduced from several simulations — performed with a coarser numerical grid than those used below in this section — in order to obtain, before the reshock, a time evolution of the mixing-zone width in agreement with experimental results. The largest dimensionless initial perturbation amplitude ak is equal to 0.25 . The initial shock Mach number is equal to 1.453 . Calculations are started with a Lagrangian mesh with nodes located at the initial interface, and continued with an Eulerian grid before the shock reaches the interface. By doing so, the development of undesired perturbations of wavelengths of the order of the numerical mesh size is avoided. The instant $t = 0$ corresponds to the moment the shock strikes the left edge of the perturbation.

The purpose of numerical and experimental studies is twofold: First, to study the evolution of the turbulent mixing zone and second, to quantify the influence of the turbulent boundary layers on the fluid dynamics in the middle of the tube. Only one simulation to accurately simulate both the mixing zone and the boundary layers would have required too many zones in the mesh. Therefore, two kinds of simulations of the experiment have been performed. They principally differ by the mesh and the boundary conditions used.

In the first kind of simulations, only a half-shock-tube is simulated and the walls are considered as reflective walls. The mesh zone size is regular in the transverse direction y but not in the longitudinal direction x . Two runs have been carried out with two various zone sizes in the y direction. The region where the instability initially develops is covered with $0.05 \times 0.08 \text{ mm}^2$ zones in the coarse grid and $0.05 \times 0.05 \text{ mm}^2$ zones in the fine one. At last time, the mixing zone moves in a region covered with $0.7 \times 0.08 \text{ mm}^2$ and $0.7 \times 0.05 \text{ mm}^2$ zones in the coarse and fine grids, respectively. The entire coarse (fine) mesh is done of $500\,000$ ($720\,000$) zones.

In the second kind of simulation, the entire shock tube is simulated and no slip type boundary condition for the velocity and isotherm type ($T_w = 293 \text{ K}$) boundary conditions for the temperature are assumed. Furthermore, turbulent boundary layers are computed with the Baldwin–Lomax model. The mesh is refined near the walls in order to accurately simulate the boundary layers: The lowest transversal zone size is equal to 0.05 mm and the largest one is equal to 0.78 mm . The entire mesh is done of $500\,000$ zones.

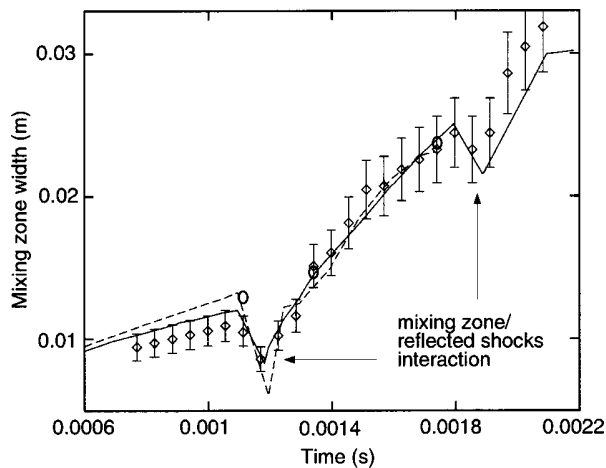


FIG. 2. Evolution of the mixing-zone width vs time. Diamonds correspond to the experimental width measured from schlieren pictures. The errorbars of this visual measurement are equal to $\pm 10\%$. The three small circles correspond to microdensitometry measurements of some schlieren pictures. Full and dotted lines correspond to numerical widths obtained from the coarse and fine grids, respectively.

B. Mixing-zone width

In the experiments, a schlieren visualization allows us to measure the mixing-zone thickness. To estimate the mixing-zone width from the numerical simulations, we calculate in each abscissa x the transversal averaged density $\rho_m(x)$. The density profile is then normalized and the mixing-zone width is defined as the distance between the two points where the normalized density is equal to 0.97 and 0.03. Figure 2 displays the evolution versus time of the experimental and numerical mixing-zone widths. Diamonds correspond to the experimental width measured from schlieren pictures. The errorbars of this visual measurement are equal to $\pm 10\%$. The three small circles correspond to microdensitometry measurements of some schlieren pictures. In Fig. 2, compressions due to the interaction of the reflected shock waves with the mixing zone clearly appear. Before the first reflected shock–mixing zone interaction, microdensitometry gives mixing-zone width greater than those obtained from direct measurement from optical pictures. The discrepancy between experimental results before the first reflected shock–mixing zone interaction may be attributed to the difficulty to correctly distinguish the initially thin mixing zone from the turbulent boundary layers which develop on the shock-tube walls. In Fig. 2, full and dotted lines correspond to mixing-zone width values calculated from numerical simulations with the coarse and fine grids, respectively. After incident shock–interface interaction and before the interaction of the mixing zone with the first reflected shock at the end wall tube, the mixing-zone width calculated from the simulation obtained from the finest mesh is larger than the other one. This discrepancy may be due to the small wavelengths which are smoothed when the mesh is not fine enough. Previous numerical simulations of single-mode Richtmyer–Meshkov experiments have shown that 50 mesh zones in the wavelength are necessary to correctly describe the evolution of the amplitude perturbation and a very high spatial resolution

(360 mesh zones in the wavelength) is required if we want the physical viscous dissipation to dominate the numerical viscosity effects.¹⁵ The finest resolution used in the present simulations corresponds to only 10 and 50 zones in the smallest and largest wavelengths, respectively. Consequently, only the largest wavelengths which are very close to the experimental mesh size are sufficiently described. On the other hand, the calculation of the small wavelengths is not converged and is responsible for the difference between the results obtained from the coarse grid and the fine grid numerical simulations. However, after the first reflected shock–mixing zone interaction, Fig. 2 shows that the mixing-zone widths obtained from the coarse and the fine meshes are very similar. It looks as if the grid resolution had no more effect on the mixing-zone width. This spatial convergence is achieved because larger and larger structures develop in the mixing zone and both numerical grids are fine enough to describe them. Spectral analysis presented in next section will confirm this result. Figure 2 allows us to compare numerical results with experimental ones. After the incident shock passage and before the reshock, mixing-zone widths obtained from numerical simulations are slightly greater than experimental ones. This result is not surprising since the values of the amplitudes of the initial perturbations have been chosen with this aim from numerical simulations performed with a coarser grid. After the first interaction and before the second one, experimental and numerical widths are very similar. In experiments, according to Vetter and Sturtevant,⁴ the thin membrane which forms the initially plane interface has a significant influence on the initial growth rate of the mixing-zone thickness. On the other hand, the measured growth rates after the first reflected shock–mixing zone interaction are independent of the membrane configuration.

C. Velocity in the mixing zone

As we said previously, the experiments performed at the C.E.A. use the Laser Doppler Anemometry (LDA). This diagnostic gives measurements of the fluctuating flow velocity which can be directly compared with results of numerical simulations. In the experiments^{7,8}, the position of the LDA probe is successively at 125.5, 161, and 178.5 mm downstream the initial interface abscissa. Figure 3 shows velocity measurements at the abscissa 161 mm. In this figure, diamonds correspond to experimental data.⁸ The full line corresponds to the numerical simulation obtained with the fine resolution in the mixing zone, without turbulent boundary layers. Hereafter, the instant $t=0$ corresponds to the moment the shock arrives at the probe. In Fig. 3, the first experimental velocity plateau at 130 m/s corresponds to air accelerated by the incident shock wave (for $t \leq 0.8$ ms). Then we observe a second perturbed plateau which includes the crossing of the turbulent mixture. The Rankine–Hugoniot relations give a theoretical mean velocity of 47 m/s in this plateau although experimental measurements give a mean velocity of 59 m/s. This acceleration is due to the boundary layer reversal effects in the SF_6 at shock crossing decelerated by the first reflected shock on the end wall. This second plateau ends with the arrival of the second reflected shock wave. In Fig. 3 the

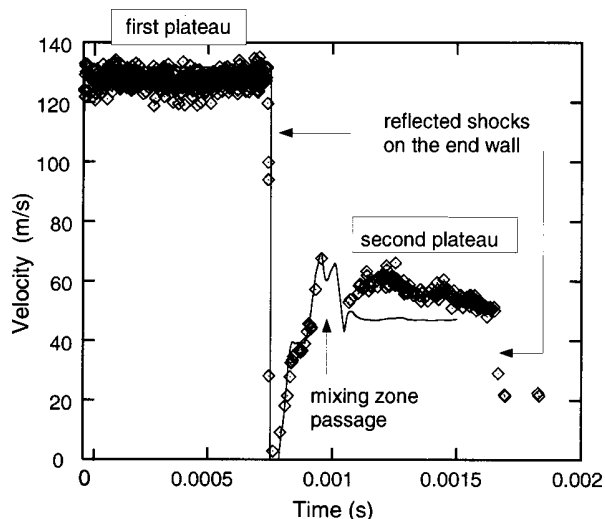


FIG. 3. Velocity measurements at 161 mm. Diamonds correspond to experimental data. The full line corresponds to the numerical simulation obtained with the fine resolution in the mixing zone, without turbulent boundary layers.

numerical velocity fluctuates in the mixing zone and the levels of the fluctuations are the same as the experimental ones. These low-frequency fluctuations can be correlated to spatial structures which develop in the mixing zone. In Figs. 4(a) and 4(b), three isovalues of the concentration of SF_6 in the mixing zone ($c = 5\%$, 50% , and 95% from right to left) are superimposed on the velocity colormaps at two various instants, just before [Fig. 4(a)] and just after [Fig. 4(b)] the first reflected shock–mixing zone interaction. In Fig. 4(a), the zones where the velocity is higher than the averaged value 131.5 m/s correspond to heavy gas pockets which penetrate in the light gas. On the other hand, the zones where the velocity is lower than the value 131.5 m/s correspond to light gas pockets which are pushed by the heavy gas. After the reflected shock passage through the mixing zone [Fig. 4(b)], the difference in velocity between air bubbles and SF_6 spikes is bigger.

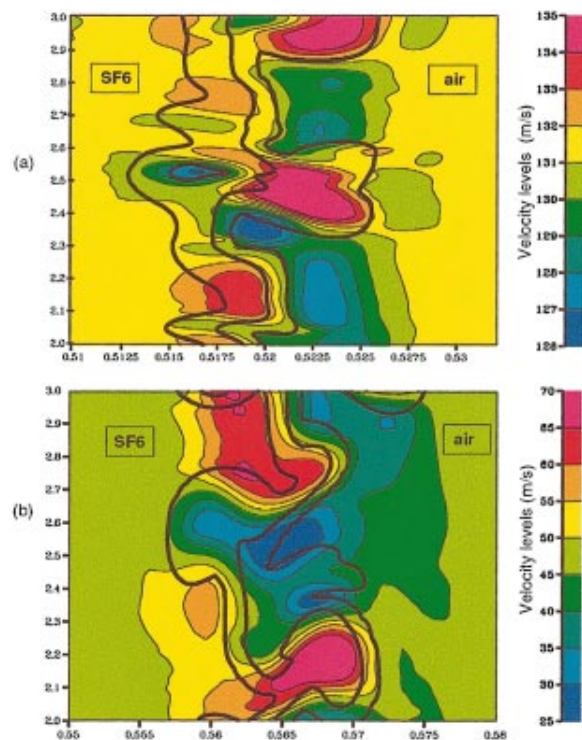


FIG. 4. (Color) Superimposition of concentration isocontours and velocity colormaps: (a) Before and (b) after the first reflected shock passage.

D. Effects of the boundary layers

Experimental measurements show that the turbulent boundary layers which develop on the shock-tube walls perturb the fluid dynamics in the middle of the tube. High-resolution 2D numerical computations with no slip type boundary condition for the velocity and isotherm type boundary condition for the temperature allow us to simulate this behavior. Figure 5(a) gives an example of density numerical isocontours in the mixing zone. It shows that the mixing zone is stretched along the shock tube walls in the boundary layers. Therefore, the density profiles obtained by

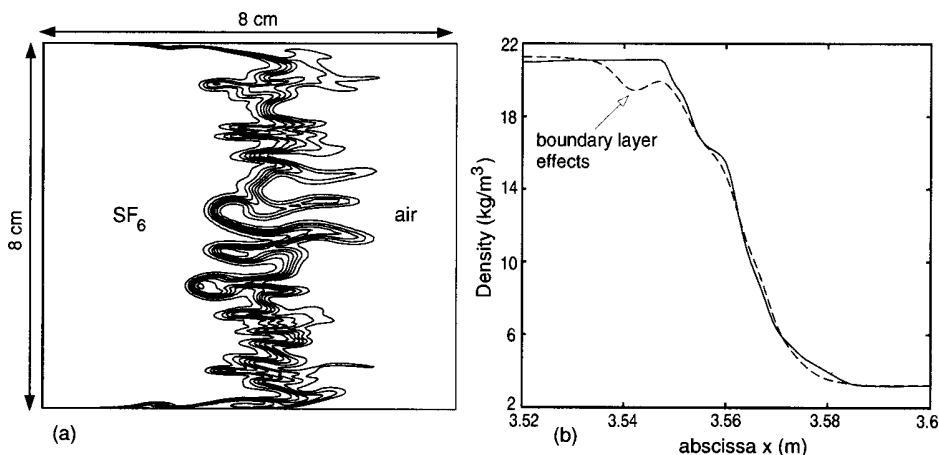


FIG. 5. Stretching of the mixing zone by the turbulent boundary layers which develop on the shock-tube walls: (a) Density isocontours and (b) density profiles obtained by taking the average of the density on all the shock-tube thickness (dotted line) or only in the middle of the tube (full line).

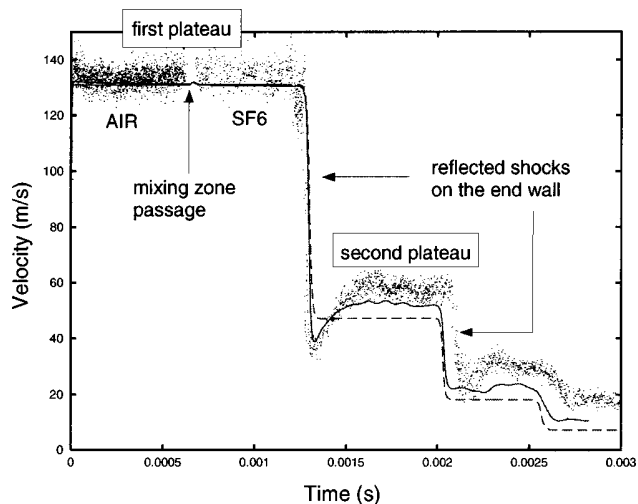


FIG. 6. Velocity measurements at 125 mm. Dots correspond to experimental data. Full and dashed lines correspond to numerical simulations with and without turbulent boundary layers, respectively.

taking the average of the density on all the shock tube thickness [dotted line in Fig. 5(b)] or only in the middle of the tube [full line in Fig. 5(b)] are not the same. As the experimental microdensitometry measurements of the mixing-zone width consist in calculating averaged density profiles from schlieren pictures which include boundary layer effects, it is not surprising to find a higher value than the width visually measured (see crosses and diamonds in Fig. 2). LDA measurements with the probe located at 125.5 mm downstream the initial interface abscissa allow us to study boundary layer effects. Figure 6 shows velocity measurements at this abscissa. In this figure, dots correspond to experimental data. Full and dashed lines correspond to numerical simulations with and without turbulent boundary layers, respectively. The instant $t=0$ corresponds to the moment the shock ar-

rives at the probe. In Fig. 6, the first velocity plateau at 130 m/s firstly corresponds to air accelerated by the incident shock (for $t \leq 0.6$ ms) and afterwards to SF_6 . The second plateau at 59 m/s corresponds to SF_6 decelerated by the first reflected shock on the end wall. This second plateau ends with the arrival of the second reflected shock wave. As one can see in Fig. 6, one effect of the turbulent boundary layers is to accelerate the SF_6 . The first simulation, whose results in pure gases are similar to the Rankine–Hugoniot solutions, gives a theoretical mean velocity of 47 m/s in the second plateau, while experimental measurements give a value of 59 m/s. In the 2D simulations presented in this paper, only two turbulent boundary layers are simulated and the mean velocity in the second plateau equals 52 m/s. By simulating with a 3D (three-dimensional) code the four turbulent boundary layers which really develop in the shock tube, we may expect to find a higher value close to the experimental one.

Another effect of the turbulent boundary layers is the velocity undershoot just after the passage of the first reflected shock. As this shock interacts with the mixing zone, a shock (Mach number equal to 1.37 in fluid-fixed reference frame) is transmitted in the SF_6 . Because of its interaction with the boundary layer in the SF_6 and according to the hydrodynamic conditions (Mach number and adiabatic coefficient values), this transmitted shock bifurcates. The experimental interferometric image given in Fig. 7(a) clearly shows the lambda shock structure, with the presence of a bubble at the shock foot.⁵ The bifurcation height increases as the shock moves in the SF_6 . Figure 7(b) shows the numerical schlieren-type image obtained at the same instant. Such numerical images are particularly useful to simultaneously visualize mixing-zone and shock structures. As shown in Fig. 7, the visual agreement between the experimental schlieren picture and the numerical schlieren-type image is very good for the shock structure. On the other hand, the numerical mixing zone is thicker than the experimental one. This dis-

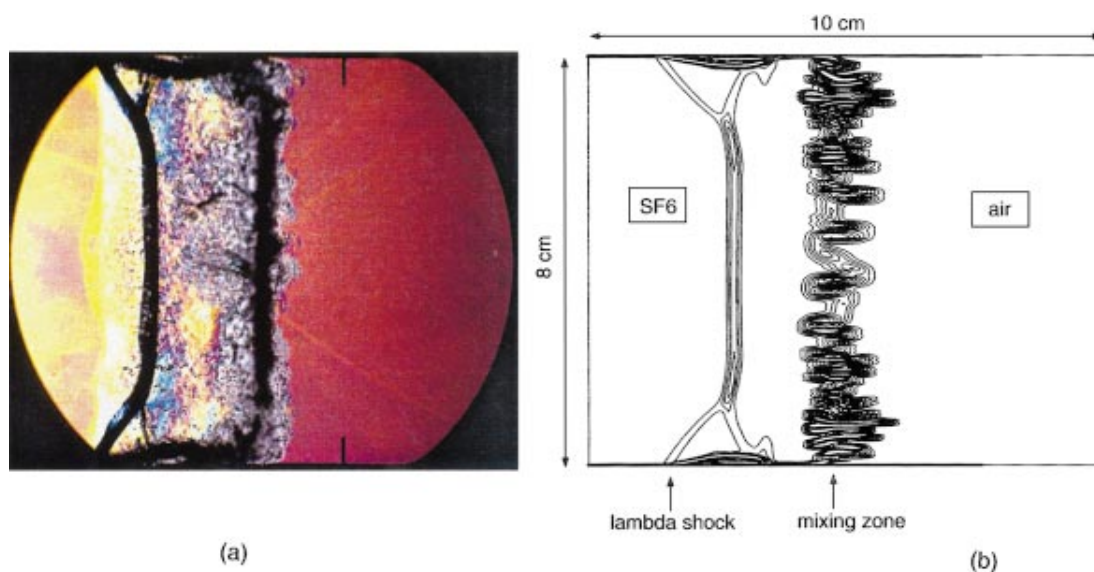


FIG. 7. (Color) (a) Experimental, from Galametz (Ref. 5), and (b) numerical schlieren pictures at a time t just after the first reflected shock wave–mixing zone interaction. Because of its interaction with the boundary layer, the transmitted shock in the SF_6 bifurcates.

crepancy has two reasons. First, the numerical image has been obtained from the computation performed with a high-spatial resolution near the walls. Consequently, the turbulent boundary layers and their interaction with the refracted shock wave are well described, but not the mixing zone which is too diffuse. Second, this nice experimental interferometric image has been obtained from previous experiments.⁵ In these experiments, the plastic membrane which initially separates the heavy gas from the light one is not placed directly below a thin wire mesh. Consequently, the membrane is not broken into small pieces by the incident shock and it slows down the mixing of the two gases. The experimental mixing-zone thickness is then thinner than expected. The influence of the boundary layers on the flow at the middle of the tube points out the interest of building shock tubes with larger cross-sectional areas, as it has been done by Vetter and Sturtevant.⁴

V. ANALYSIS OF THE NUMERICAL RESULTS

A. Scaling laws

In a general way, it is of interest to look for scaling laws for the evolution of the mixing-zone width. In that respect, several interpretations of the numerical results can be given. First, models for the nonlinear regime such as those proposed by Ramshaw²⁵ and Alon *et al.*²⁶ may be used. Second, statistical models of fully developed turbulence may also be used.^{27,28} For example, the solution of the diffusion-dissipation part of a two-equation k - ϵ model provides a self-similar behavior that can be compared with numerical results.

The first approach to model the evolution of the mixing zone gives a lot of importance to the nonlinear behavior of large structures in the mixing fronts. A numerical study has been performed by Alon *et al.*²⁶ in order to validate a 2D model based on bubble-rise dynamics. This theoretical and numerical study of the nonlinear evolution of large structures in RM mixing fronts gives a constant power-law coefficient β_b equal to 0.4 for multimode RM bubble fronts. On the other hand, the power-law coefficient β_s for the spike fronts is not constant: It increases with the Atwood number A_t from $\beta_s = 0.4$ for $A_t = 0$ to $\beta_s = 1$ for $A_t = 1$. According to Fig. 2 from Ref. 26, β_s is approximately equal to $(1 + A_t)\beta_b$. In our case, the Atwood number is equal to -0.67 whence the β_s value is equal to 0.66. Figure 8 displays the evolution versus time of the large structures in the RM mixing fronts. In numerical simulations, spike and bubble heights are inferred from the location of bubble and spike fronts relative to the unperturbed interface. The location of the unperturbed interface is obtained from the calculation of the theoretical interface velocity with the Rankine-Hugoniot relations. In Fig. 8, crosses and diamonds correspond to spike and bubble heights, respectively. Full and dotted lines correspond to the fits of the numerical results by power laws $L(t) = L_1 t^\beta$, with $\beta_s = 0.63$ for the spike front and $\beta_b = 0.39$ for the bubble front. The power-law coefficients β_b and β_s presently obtained from 2D CADMEE simulations are in good agreement with bubble-rise models ($\beta_b = 0.4$ and $\beta_s = 0.66$).

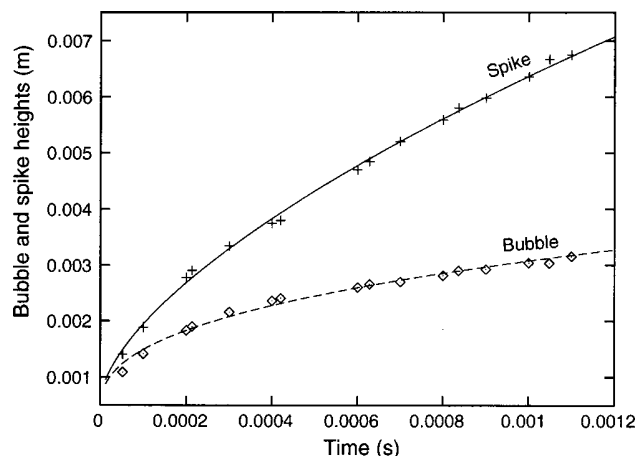


FIG. 8. Evolution of large structures in the RM mixing fronts. Crosses and diamonds correspond to spike and bubble heights, respectively. Full and dotted lines correspond to power laws $L(t) = L_1 t^\beta$ with $\beta_s = 0.63$ for the spike front and $\beta_b = 0.39$ for the bubble front.

In the second approach, by considering self-similar solutions of a one equation statistical turbulent model reduced to the diffusion and dissipation terms, Barenblatt²⁷ has shown that, at late time, the turbulent width varies as t^β with $\beta = 2/3$ in the case of zero dissipation and $\beta < 2/3$ otherwise. Cherfils and Harrison²⁸ also studied the evolution of a one-dimensional turbulence in the case where it is completely determined by diffusive and dissipative processes. On the bases of two-equation k - ϵ models, they found a self-similar solution asymptotic to the exact flow. The decay exponent of the kinetic energy was equal to -1.32 , -1.39 or -1.48 according to three various numerical values of the dissipation coefficient. This phenomenological dissipation coefficient is usually calibrated on 3D experiments. The layer thickness then scales as t^β where $\beta = 0.34$, 0.305 , and 0.26 , respectively. Such power-law behavior has also been found from numerical simulations carried out by several authors. For multiple-scale random perturbations, the layer thickness obtained by Pham and Meiron²⁹ from 2D RM instability simulations in continuously stratified fluids seems to scale with t^β . The time exponent β shows a weak dependency on the initial configurations but it always lies in the neighborhood of 0.25. According to Pham and Meiron, “the time variation of the layer thickness differs from the scaling derived using ideas of self-similarity due to Barenblatt²⁷ even at low Atwood ratio, presumably because of the inhomogeneity and anisotropy due to the excitation of vortical plumes.” Furthermore, “it is possible that the layer has not evolved over a sufficiently long time. At the end of the calculations the layer has only grown a factor of roughly two over its initial size.” Youngs³⁰ obtains a close value $\beta = 0.3$ from 3D numerical simulations but he notices “Richtmyer–Meshkov mixing due to a single shock does depend on the initial conditions, and different forms for the initial perturbations are likely to give different values for the power-law coefficient.” Very recently, a simple model for linear and nonlinear mixing at unstable fluid interfaces has been proposed by Ramshaw.²⁵ It reproduces the RM growth

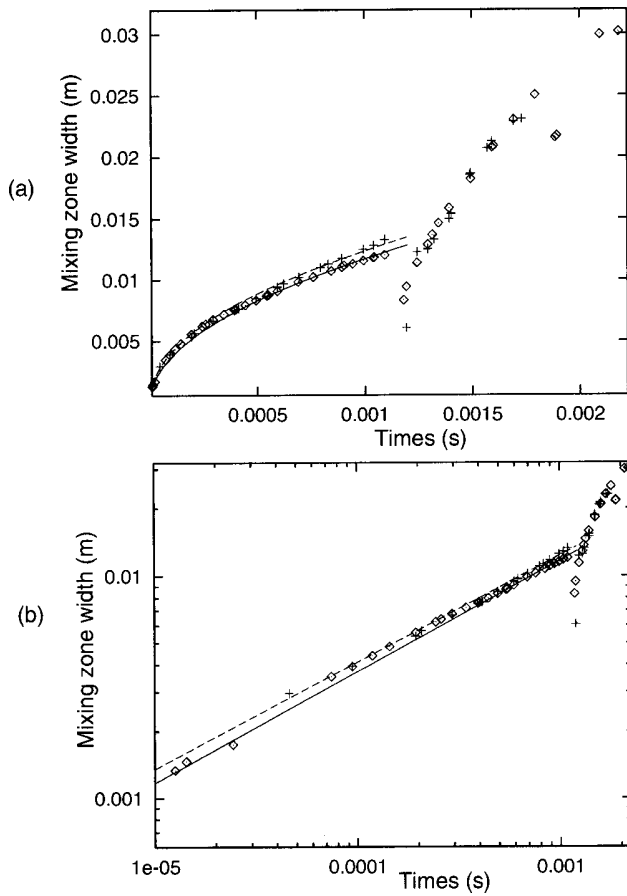


FIG. 9. Mixing-zone width vs time, (a) with a linear scale and (b) with a log–log scale. Diamonds and crosses correspond to numerical simulations with code CADMEE obtained from the coarse and fine grids, respectively. Full and dotted lines correspond to a power law $L(t) = L_1 t^\beta$. The fits of the numerical results give $L_1 = 0.37$, ($L_1 = 0.34$), and $\beta = 0.50$, ($\beta = 0.48$), for the simulation obtained from the coarse (fine) grid.

law $L(t) \sim t^\beta$ where β depends on the rate of kinetic energy dissipation: In the case of zero dissipation, it gives the previous theoretical value $\beta = 2/3$ first proposed in Ref. 27 and it further exhibits the expected reduction in β due to dissipation.

Figures 9(a) and 9(b) display the evolution versus time of the mixing-zone width with a linear and a log–log scale, respectively. In these figures, diamonds and crosses correspond to numerical simulations obtained from the coarse and fine grids, as previously presented in Fig. 2. In Figs. 9(a) and 9(b), full and dotted lines correspond to a power law $L(t) = L_0 + L_1(t - t_0)^\beta$. In this expression, $t_0 = 0$ and $L_0 = L(t_0) = 0$ because the instant $t = 0$ corresponds to the moment the incident shock strikes the discontinuous interface (see Fig. 1). After the incident shock passage and before the reshock, the fit of the numerical results gives $L_1 = 0.37$, ($L_1 = 0.34$), and $\beta = 0.50$, ($\beta = 0.48$), for the simulation obtained from the coarse (fine) grid. The power-law coefficients β presently obtained ($\beta = 0.48$ and 0.50) correspond to the complex flow behavior subsequent to the RM instability generated by a single shock wave. So, the power-law coefficients obtained from our simulations ($\beta \approx 0.5$) are in agreement with non zero dissipation ($\beta < 2/3$) and are equal to the power-law

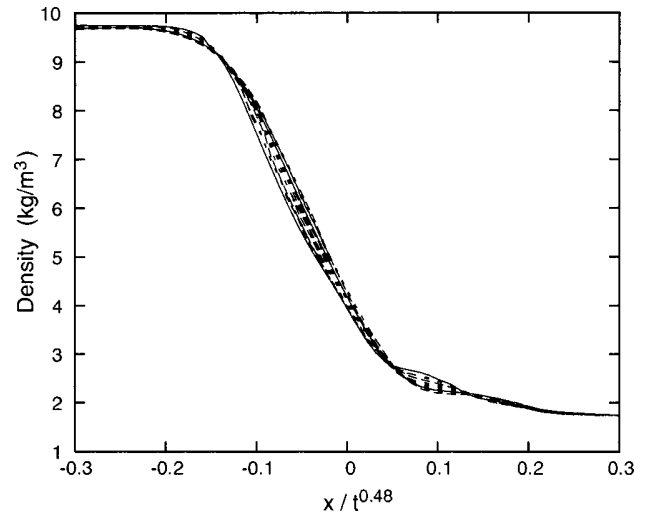


FIG. 10. Transversal averaged density profiles obtained from the fine grid at several times before the reshock and versus the abscissa $\xi = x/t^{0.48}$. These profiles show the quasi self-similar behavior of the mixing-zone.

values reported by Dimonte *et al.* ($\beta = 0.5 \pm 0.1$) from turbulent Richtmyer–Meshkov instability experiments performed with strong radiatively driven shocks.³¹ All these results concern the mixing-zone behavior after the incident shock passage and before the reshock. After the reshock, Fig. 9(b) shows that a power-law is no more valid. Figure 10 gives the transversal averaged density profiles ρ_m obtained from the fine grid simulations at several times and versus the abscissa $\xi = x/t^\beta$ with $\beta = 0.48$. These profiles show the quasi self-similar behavior of the mixing zone.

B. Spectral analysis

To characterize the flow regime, we study the nonlinear evolution of the interface perturbation by modal analysis, as done in Ref. 15. We introduce the new variable $\mathcal{U} = \sqrt{\rho}u$ where ρ is the density and u the streamwise velocity component. This quantity is equal to the square root of the kinetic energy per unit volume. Then, we consider the one-dimensional transversal spectrum

$$E(k_y, t) = \frac{1}{2L_x} \int_{-L_x}^{+L_x} |\hat{\mathcal{U}}(x, k_y, t)|^2 dx. \quad (7)$$

In this expression, $\hat{\mathcal{U}}(x, k_y, t)$ is the transversal discrete Fourier transform of the variable $\mathcal{U}$ at a given abscissa x , it reads

$$\begin{aligned} \hat{\mathcal{U}}(x, k_y, t) &\equiv \hat{\mathcal{U}}\left(x, \frac{\ell}{N\Delta y}, t\right) \\ &= \frac{1}{N} \sum_{j=0}^{N-1} \mathcal{U}(x, j\Delta y, t) \exp\left(-i \frac{2\pi\ell j}{N}\right), \end{aligned} \quad (8)$$

where $\ell = 0, 1, \dots, N-1$, N is the number of samples and Δy the sample interval. The length $2L_x \leq d$ corresponds to a x -span on which the transversal spectrum is averaged. We will commonly choose d equal to the shock-tube square section and the length $2L_x$ greater than or equal to the mixing-zone width at the final time. The advantage of this spectral

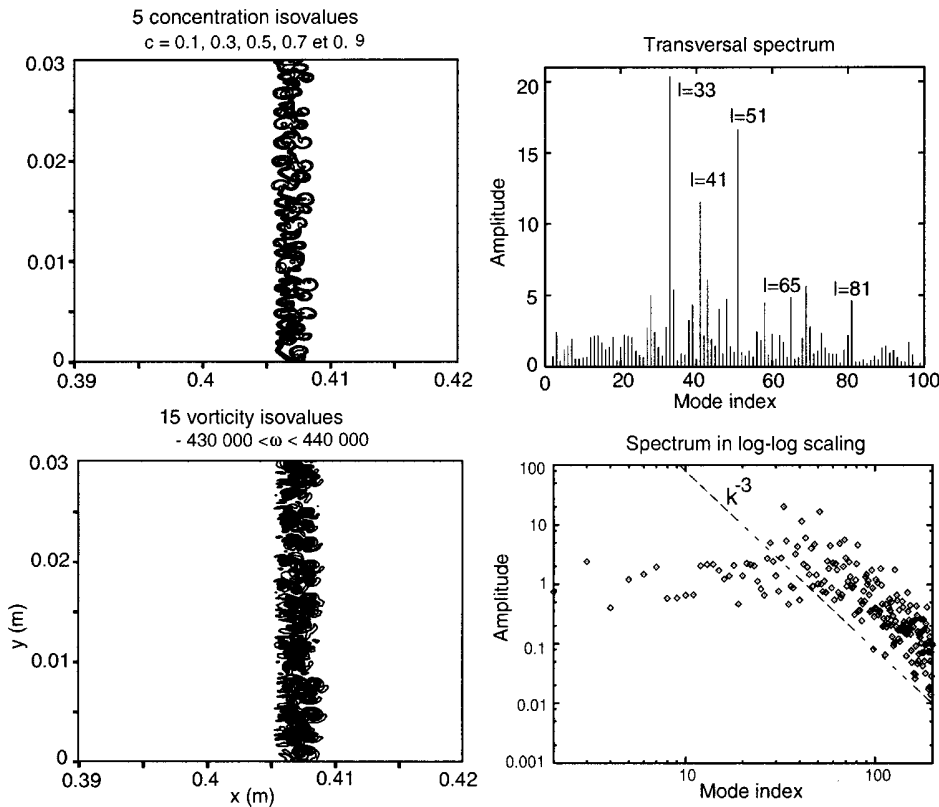


FIG. 11. Concentration isocontours, vorticity isocontours and energy spectrum $E(k_y, t)$ in a linear and in a log-log scale at the instant $t = 0.152$ ms, just after the incident shock passage through the initial perturbed interface.

analysis is to give information on all scales present in the mixing zone, even if the flow develops into a turbulent regime. In Eq. (7), the quantity $E(k_y, t)$ represents the spatial average of the streamwise kinetic energy spectral density. The total streamwise kinetic-energy is then given by $\langle E(t) \rangle = \sum_{k_y} E(k_y, t)$.

Figures 11–14 give the concentration and vorticity isocontours at four various times. The sizes of the windows are 3 cm width and 3 cm height for all these maps. Figures 11–14 also give the one-dimensional averaged transversal spectra of the quantity $\mathcal{U}$, given by Eqs. (7) and (8), in linear and log-log scales. We have superimposed the k^{-3} enstrophy cascade to the energy spectra. Just after the incident shock–interface interaction (see Fig. 11), the concentration isovalues already show the existence of bubble and spike structures in the mixing zone. The vorticity is concentrated in these structures. The interface perturbations have already evolved into the nonlinear regime. However, the lowest initial perturbation modes are still present and dominant in the energy spectrum. Afterwards, the mixing zone becomes larger and larger and the initial perturbation modes disappear (see Fig. 12). The energy spectrum moves towards the large wavelengths and exhibits the persistence of dominant modes smaller than the initial ones. After the reflected shock passage (Fig. 13), the mixing zone is compressed — as already seen in Fig. 2 — and the vorticity strongly increases through the baroclinic production term. Perturbation modes present in the mixing zone are all excited. However, the spectrum still contains some dominant low modes and shifts towards low wave numbers (see Fig. 14). Spectral analysis quantitatively confirms what can be seen in concentration and vor-

ticity isovalues: Larger and larger spatial structures develop in the mixing zone. Spectra globally move towards low wave numbers and exhibit a k^{-3} enstrophy cascade. This scaling law is valid for a limited range of wave numbers. Indeed, the high wave number end of the spectra is insignificant because of the mesh-size limitation. For example, the mode index $\ell = 101$ corresponds to the wavelength $\lambda = 0.8$ mm which is described with only 16 mesh zones. The k^{-3} enstrophy cascade was first predicted by Kraichnan.³² Kraichnan conjectured that, if energy is fed in at a constant rate to a band of wave numbers of the order of k_i , on one hand, an inverse cascade of energy with constant energy flux will take place following a $k^{-5/3}$ law for $k \ll k_i$ and, on the other hand, a k^{-3} range with constant enstrophy flux will be observed at largest wave numbers for $k \gg k_i$, up to the viscous cutoff. Batchelor³³ also obtained the k^{-3} inertial energy spectrum by phenomenological and dimensional considerations in the context of a freely decaying two-dimensional turbulence, where a self-similar evolving spectrum was assumed. But the confirmation by numerical simulations of this k^{-3} energy spectrum is not so evident.³⁴ However, the analysis of the relaxation of two-dimensional turbulence performed by McWilliams³⁵ shows the expected k^{-3} law but also exhibits the emergence of larger scales of turbulence and show that the long-time evolution of two-dimensional fields is dominated by coherent vortices whose vorticities are much stronger than that of the well-mixed background. Finally, the spectral analysis of our numerical simulations tends to prove that the flow in the mixing zone is turbulent. As we will see in the next paragraph, this turbulent behavior is confirmed by statistical analysis.

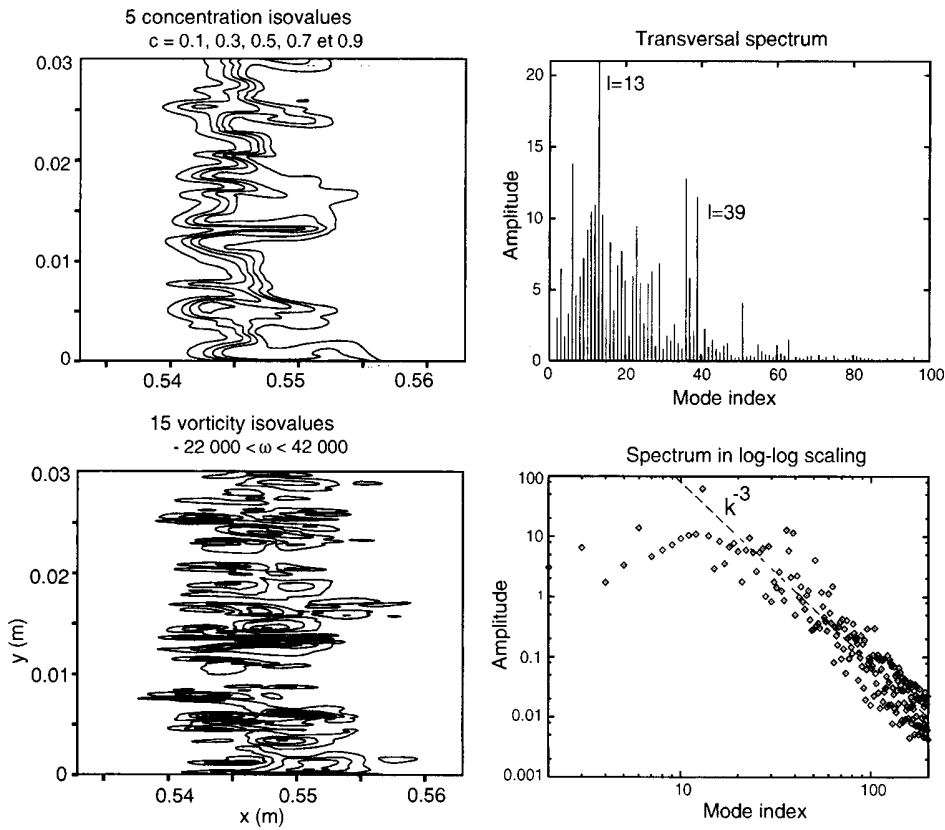


FIG. 12. Same as in Fig. 11 but at the instant $t = 1.2$ ms, just before the first reflected shock–mixing zone interaction.

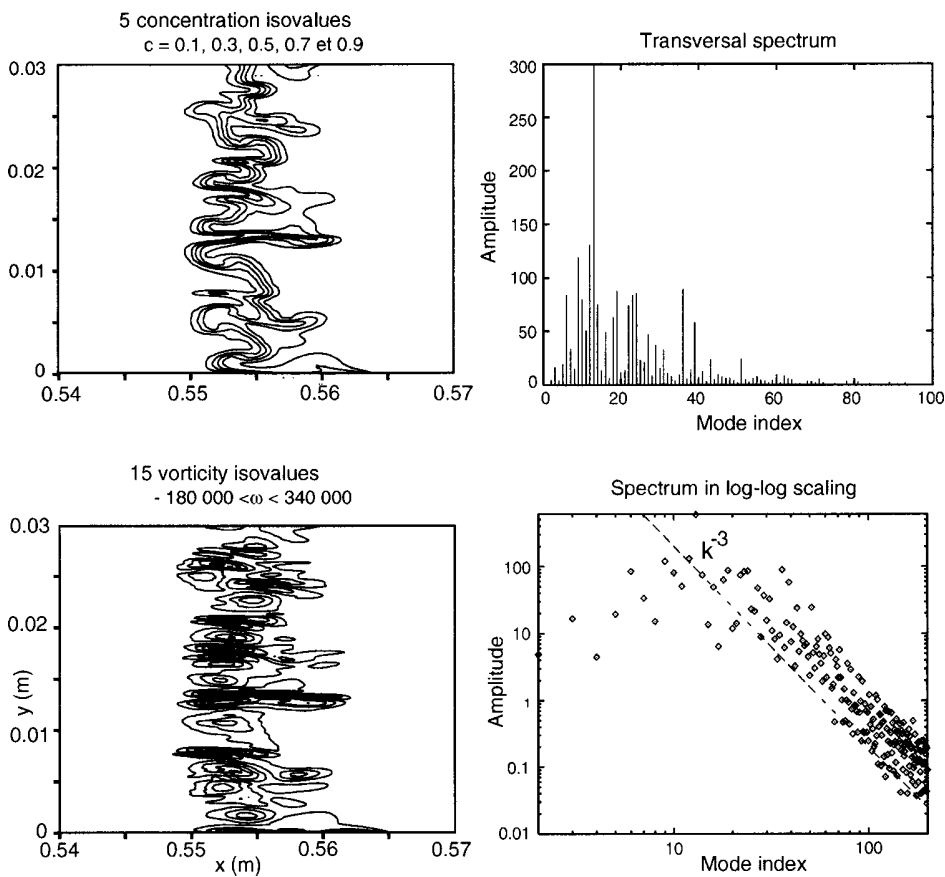


FIG. 13. Same as in Fig. 11 but at the instant $t = 1.3$ ms, just after the first reflected shock–mixing zone interaction. The scales of the transversal spectrum have been modified.

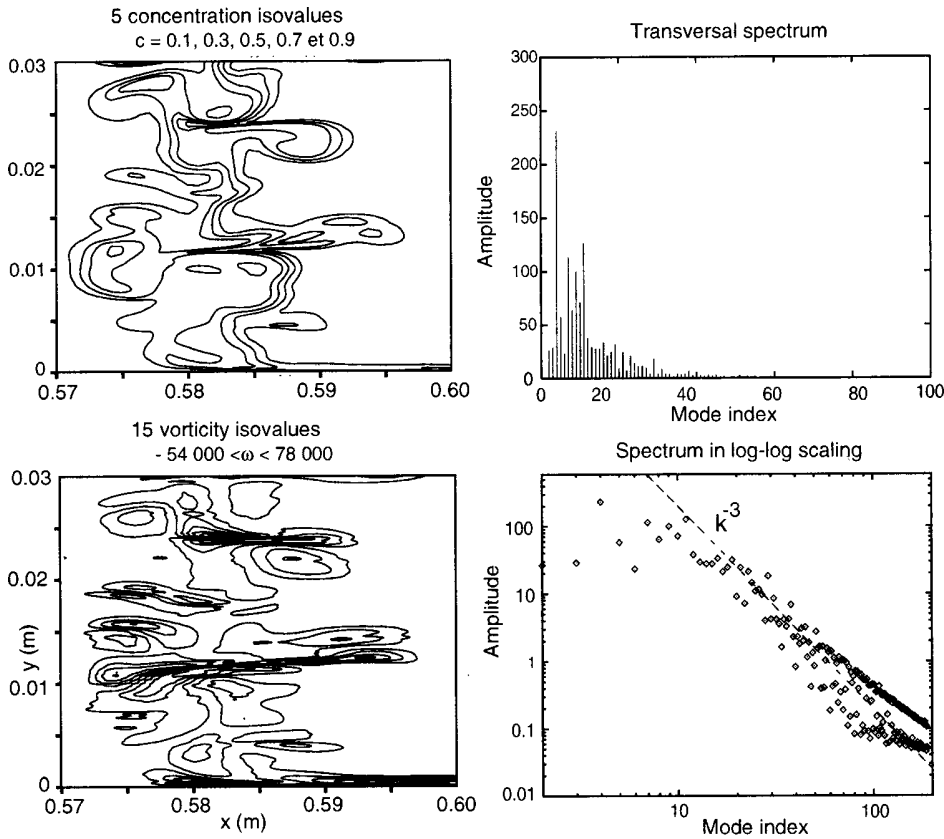


FIG. 14. Same as in Fig. 13 but at the instant $t = 1.84$ ms, a long time after the first reflected shock–mixing zone interaction.

C. Statistical analysis

A rigorous study of the statistical properties of compressible Richtmyer–Meshkov instability-induced turbulent mixing would need an average several numerical simulations. In practice, it is not possible yet because we are limited by the excessive memory requirements and long run times. So, hereafter, we use only the fine resolution simulation previously described. In this simulation, there are no boundary layers. Experimental LDA measurements have shown a strong anisotropy of the turbulence in the mixing zone.⁷ The most energetic component of the Reynolds stress is the axial one. Furthermore, mixing is certainly not homogeneous, especially in the axial direction which is the direction of propagation of the shock waves. Nevertheless, mixing is assumed homogeneous along the transversal y direction. Averaged quantities $\bar{a}(x, t)$ are then performed along this direction

$$\bar{a}(x, t) = \frac{1}{N} \sum_{j=0}^{N-1} a(x, j\Delta y, t). \quad (9)$$

For incompressible flows, turbulent fluctuations a' of the quantity a are expressed as

$$a'(x, y, t) \equiv a(x, y, t) - \bar{a}(x, t).$$

On the other hand, for compressible flows, turbulent fluctuations a'' of the quantity a are expressed within the Favre averaging framework

$$a''(x, y, t) \equiv a(x, y, t) - \tilde{a}(x, t),$$

where the mean velocity $\tilde{a}(x, t)$ is given by

$$\tilde{a}(x, t) \equiv \overline{\rho a(x, t)} / \overline{\rho(x, t)}.$$

Figure 15 displays the turbulent kinetic energy profiles $\tilde{K} = \overline{u_i'' u_i''} / 2$ at various times. We clearly see the strong generation of turbulent kinetic energy at the incident shock passage

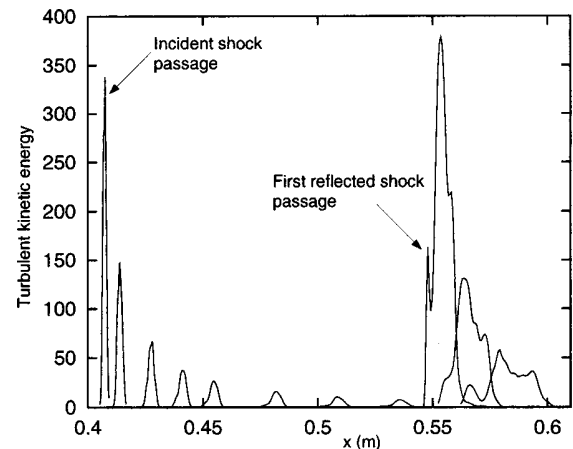


FIG. 15. Turbulent kinetic-energy profiles $\tilde{K} = \overline{u_i'' u_i''} / 2$ at various times. We clearly see the strong generation of turbulent kinetic energy at the incident shock passage through the interface (first profile on the left side of the figure), and at the reshock (the third profile from the right side of the figure corresponds to the time when the reflected shock, which travels from right to left, is still interacting with the mixing zone).

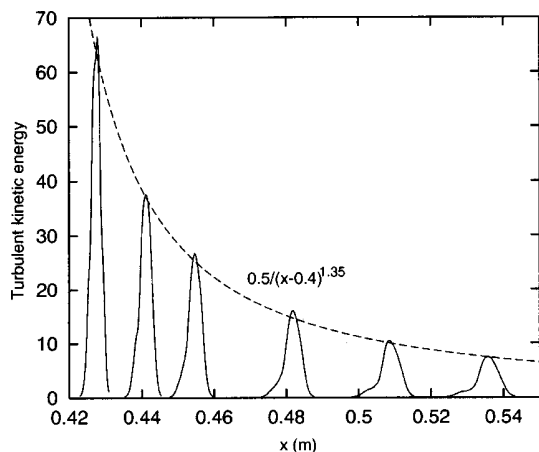


FIG. 16. Turbulent kinetic-energy profiles $\tilde{K} = \overline{u_i'' u_i''}/2$ at various times after the incident shock–interface interaction and before the first reflected shock passage. The maximum amplitude of these profiles $\tilde{K}_{\max}$ decreases as the mixing zone moves in the shock tube and it follows a $(x - x_0)^{-1.35}$ power law, where $x_0 = 0.4$ is the initial position of the unperturbed interface.

sage through the interface and at the reshock. Figure 16 gives a zoom of the profiles before the reshock. The maximum amplitude of these profiles $\tilde{K}_{\max}$ decreases by diffusion and dissipation as the mixing zone moves in the shock tube and it follows a $(x - x_0)^{-1.35}$ power law, where $x_0 = 0.4$ is the initial position of the unperturbed interface in the simulations. As the mixing-zone averaged velocity is almost constant, we obtain: $\tilde{K}_{\max}(t) \propto t^{-1.35}$. According to Kolmogorov,³⁶ the kinetic energy for freely evolving three-dimensional isotropic turbulence in incompressible fluids should decay as a power law $t^{-\alpha}$ where $\alpha = 10/7$. On the bases of EDQNM calculations, Lesieur³⁷ found $\alpha = 1.38$. From numerous results found in the literature and from their own grid turbulence experiments, Mohamed and Larue³⁸ show that the exponent in the decay power-law for the kinetic energy is equal to 1.3 and is independent of initial conditions such as Reynolds number, mesh size, solidity, and rod shape. We note that before the first reshock, the decay exponent $\alpha = 1.35$ of the kinetic energy given by the 2D CADMEE numerical simulations is close to all these values. However, since all the results cited concern the three-dimensional isotropic turbulence, we conclude that this is a pure coincidence. After the reshock, the kinetic-energy profiles are larger, (see Fig. 15), and it is no more easy to find a power-law behavior.

Figures 17(a) and 17(b) illustrate the anisotropy of the Reynolds stress tensor at the 125 mm abscissa and at the 169 mm abscissa, i.e., about 0.2 ms before and 0.3 ms after the interaction with the first reflected shock, respectively. Figure 17(c) gives the $\overline{u_1' u_1'}$ and $\overline{u_2' u_2'}$ profiles obtained from LDA experimental measurements at the 169 mm abscissa.⁷ These figures clearly show the strong anisotropy of turbulence in the mixing zone: At the maximum of the profiles, the ratio $\overline{u_1' u_1'}/\overline{u_2' u_2'}$ reaches the value 3 in the experiments and about 2.5 in the calculations. Numerical values of the axial and radial components are twice greater than experimental measurements. However, experimental and numerical results may not be compared on a quantitative way because of the

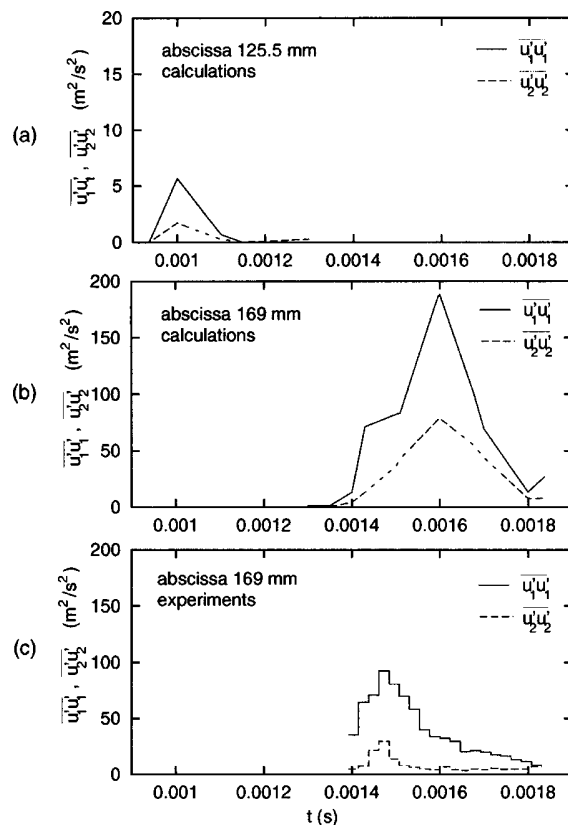


FIG. 17. Evolution of axial and radial components of the Reynolds stress tensor: (a) Numerical results at the 125 mm abscissa; (b) numerical results at the 169 mm abscissa; (c) experimental data at the 125 mm abscissa.

2D character of the computations and it is well-known that the phenomenology of 2D turbulence is very different from the 3D one.

To determine the incompressible or compressible character of the fluctuations, we have calculated the turbulent Mach number, defined as $\sqrt{\tilde{K}}/c_s$ where c_s is the local sound speed. This Mach number is always less than few percents. Consequently, the fluctuations of the velocity field are quasi-incompressible. However, we do note that in the mixing zone the r.m.s. (root-mean-square) value of the density fluctuations $((\rho - \bar{\rho})^2)^{1/2}/\bar{\rho}$ is about 0.4 after the incident shock passage and about 0.5 after the reshock.

We also calculated the turbulent kinetic-energy dissipation rate defined as $\tilde{\epsilon} = \sigma_{ij} \partial u_i'' / \partial x_j$. Figure 18 displays the profiles of the dissipation rate of turbulent kinetic energy at various times after the incident shock–interface interaction and before the first reshock. In Fig. 18, the maximum amplitude of these profiles $\tilde{\epsilon}_{\max}$ decreases as the mixing zone moves in the shock tube and it follows a $(x - x_0)^{-1.84}$ power law, where x_0 is the initial position of the unperturbed interface. As the mixing-zone averaged velocity is almost constant, we obtain: $\tilde{\epsilon}_{\max}(t) \propto t^{-1.84}$. However, within the framework of a two-equation statistical model, the dissipation rate of the turbulent kinetic energy decreases as $d\tilde{K}/dt$, so, in this configuration, the dissipation rate should decrease as $(x - x_0)^{-2.35}$ or $t^{-2.35}$. This discrepancy can be explained by

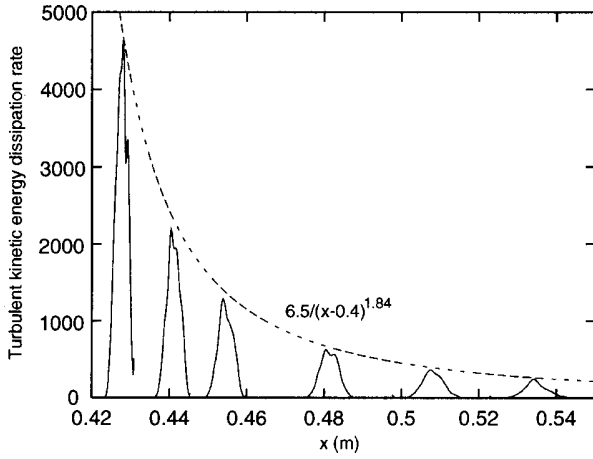


FIG. 18. Turbulent kinetic-energy dissipation rate profiles $\tilde{\epsilon}$ at various times after the incident shock–interface interaction. The maximum amplitude of these profiles $\epsilon_{\max}$ decreases as the mixing zone moves in the shock tube and it follows a $(x-x_0)^{-1.84}$ power law, where $x_0=0.4$ is the initial position of the unperturbed interface.

noticing that a turbulence created by a RM instability requires a certain amount of time to reach a perfect self-similar state. In other words, it requires a certain amount of time to reach an isotropic state with a spectral equilibrium. Moreover, the flow numerically simulated in this paper is a turbulence mixing and fluctuations of density, which are not taken into account in the turbulence model considered here, may alter the decay exponent. We also calculated the kinetic energy dissipation rate in the incompressible case, $\bar{\epsilon} = \nu(\partial u'_i/\partial x_j)(\partial u'_j/\partial x_i)$, and found profiles very similar to the compressible ones. This result is in agreement with the low values of the turbulent Mach number and proves that between interactions with the shock waves, the flow is quasi-incompressible.

D. The enstrophy behavior

The vorticity equation for a compressible viscous fluid is described by the Helmholtz equation

$$\frac{\partial}{\partial t} \boldsymbol{\omega} + \mathbf{u} \cdot \nabla \boldsymbol{\omega} = -\boldsymbol{\omega} \nabla \cdot \mathbf{u} + \boldsymbol{\omega} \nabla \mathbf{u} - \frac{1}{\rho^2} \nabla p \times \nabla \rho + \nabla \times \left(\frac{1}{\rho} \nabla \cdot \bar{\boldsymbol{\sigma}} \right). \quad (10)$$

In this equation, $\mathbf{u}$ is the velocity, $\boldsymbol{\omega} = \nabla \times \mathbf{u}$ the vorticity, $\nabla = (\partial/\partial x, \partial/\partial y, \partial/\partial z)$ the gradient operator and $\bar{\boldsymbol{\sigma}}$ the viscous shear stress tensor still defined in Eq. (2). The first and second terms on the right-hand-side of Eq. (10) represent the change of vorticity due to the compression and stretching of vortex lines, respectively. These two terms are linear in vorticity so that they would vanish in an irrotational flow. The third term on the right-hand-side, called the baroclinic term, may create vorticity in an initially irrotational flow. This term vanishes in a constant density incompressible fluid. The last term represents the change of vorticity by viscous effects and may be written as

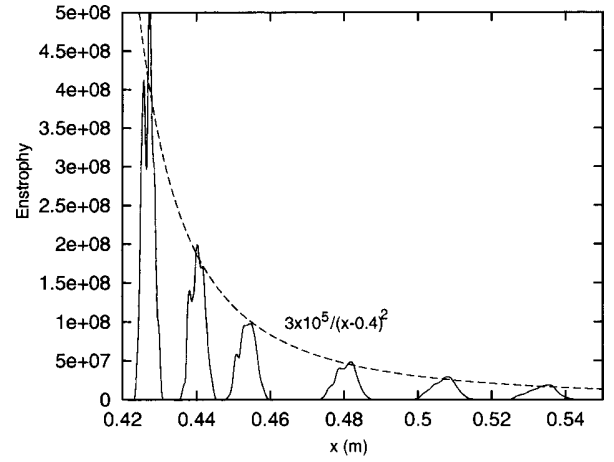


FIG. 19. Enstrophy profiles at various times after the incident shock–interface interaction. The maximum amplitude of these profiles $\Omega_{\max}$ decreases as the mixing zone moves in the shock tube and follows a $(x-x_0)^{-2}$ power law, where $x_0=0.4$ is the initial position of the unperturbed interface.

$$\nabla \times \left(\frac{1}{\rho} \nabla \cdot \bar{\boldsymbol{\sigma}} \right) = \mu \left[\frac{1}{\rho} \nabla^2 \boldsymbol{\omega} - \frac{1}{\rho^2} \nabla \rho \times \left(\nabla^2 \mathbf{u} + \frac{1}{3} \nabla (\nabla \cdot \mathbf{u}) \right) \right]. \quad (11)$$

For a Newtonian incompressible fluid with constant kinematic viscosity coefficient $\nu = \mu/\rho$, this term reduces to the Laplacian of the vorticity $\nu \nabla^2 \boldsymbol{\omega}$. In two-dimensional flow, the vorticity $\boldsymbol{\omega}$ is a vector perpendicular to the plane of the flow. The magnification of the vorticity by stretching of vortex lines, which is such an important feature of the inertial effect in three-dimensional turbulence, is consequently entirely absent in two-dimensional calculations. Finally, in a constant density incompressible fluid, Eq. (10) reduces to the well-known equation

$$\frac{\partial}{\partial t} \boldsymbol{\omega} + (\mathbf{u} \cdot \nabla) \boldsymbol{\omega} = \nu \nabla^2 \boldsymbol{\omega}. \quad (12)$$

In the 2D inviscid limit, the vorticity behaves as a pseudo-scalar conserved along the fluid trajectories. By taking the scalar product of $\boldsymbol{\omega}$ and Eq. (10) without the term of stretching of vortex lines (which is equal to zero in 2D-calculations), we obtain

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \Omega + \mathbf{u} \cdot \nabla \Omega = & -2\Omega \nabla \cdot \mathbf{u} - \frac{1}{\rho^2} \boldsymbol{\omega} \cdot (\nabla p \times \nabla \rho) \\ & + \nu \boldsymbol{\omega} \cdot \left[\nabla^2 \boldsymbol{\omega} - \frac{1}{\rho} \nabla \rho \times \left(\nabla^2 \mathbf{u} + \frac{1}{3} \nabla (\nabla \cdot \mathbf{u}) \right) \right]. \end{aligned} \quad (13)$$

In this equation, Ω is the enstrophy density defined by $\Omega = \frac{1}{2} |\boldsymbol{\omega}|^2$. The second term on the left-hand-side and the three terms on the right-hand-side of Eq. (13) are called the advection, compression, baroclinic production, and dissipation terms, respectively. Figure 19 displays the averaged enstrophy profiles $\Omega(x)$ obtained by averaging the enstrophy along the transversal y direction, at various times after the incident shock–interface interaction and before the first reshock. In

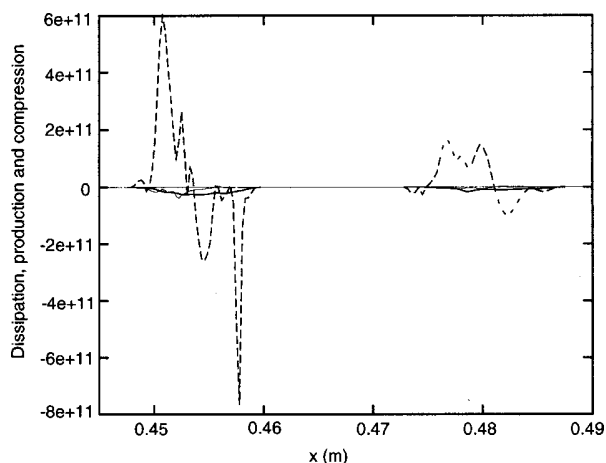


FIG. 20. Comparison of the profiles of the dissipation (thick full lines), baroclinic production (dotted lines) and compression terms (thin full lines) in the enstrophy budget at two instants after the incident shock–interface interaction.

Fig. 19, the maximum amplitude of these profiles $\Omega_{\max}$ decreases as the mixing zone moves in the shock tube and follows a $(x - x_0)^{-2}$ power law, where x_0 is the initial position of the unperturbed interface. As the mixing-zone averaged velocity is almost constant, we obtain $\Omega_{\max}(t)at^{-2}$. This time dependency of the mean-square vorticity is in agreement with the theoretical and numerical results of Batchelor in the context of a freely-decaying two-dimensional compressible turbulence.³³ In Eq. (13), the terms $(\nu\omega) \cdot (\nabla^2\omega)$ and $(\nu\omega) \cdot (- (1/\rho) \nabla\rho \times (\nabla^2\mathbf{u} + (1/3)\nabla(\nabla \cdot \mathbf{u})))$ represent the incompressible and compressible contributions to the enstrophy dissipation, respectively. After calculations of these contributions, we observed that the compressible part is at any time negligible towards the incompressible one. Figure 20 displays a comparison between various terms in the enstrophy budget at two instants after the incident shock–interface interaction. The profiles of dissipation, baroclinic production and compression show that the main contribution to the enstrophy budget comes from the baroclinic term. This result is in agreement with numerical simulations of two-dimensional homogeneous flows performed by Passot and Pouquet.³⁹ On the other hand, Kida and Orszag⁴⁰ showed that the main contributions to the enstrophy budget in three-dimensional flow come from the stretching and the dissipation terms, which give a positive and a negative contribution, respectively.

VI. CONCLUDING REMARKS

In this paper, we have presented the results of high-resolution 2D numerical simulations of shock-tube experiments of SF_6 incident on air performed by Poggi *et al.*^{7,8} In these experiments, measurements demonstrate that the initial small scale perturbations of the interface develop into a turbulent mixing zone. The main result of this paper is to show that 2D calculations exhibit a turbulent regime compatible with the experimental data. In particular, we can see in numerical simulations the decay of the turbulence before the

first reflected shock wave–turbulent mixing-zone interaction and its strong enhancement by reshocks. And finally, the mixing zone can be regarded as a region where large scales coexist with small scale turbulence more or less developed. So, we have compared our numerical results both with models for the nonlinear regime such as those proposed by Ramshaw²⁵ and Alon *et al.*,²⁶ and with statistical turbulence models, using the tools of fully developed turbulence, i.e., self-similar behavior, scaling laws and spectrum.

On one hand, after the incident shock passage and before the first reshock, large scales in the Richtmyer–Meshkov mixing fronts evolve versus time according to scaling laws given by models based on bubble-rise dynamics²⁶ ($t^{0.4}$ for the bubble fronts and $t^{0.66}$ for the spike fronts). These large scales of the motion govern the thickening of the mixing zone and retain memory of the initial conditions. In the literature, this dependence to the initial conditions has still been noticed in experiments, numerical simulations and models. In experiments,⁴ the thin membrane which forms the initial interface has an influence on the initial growth rate of the mixing-zone thickness. In numerical simulations,³⁰ results slightly depend on the initial interface perturbations (amplitudes and wavelengths) and on the mesh size refinement. In models,²⁵ the kinetic energy deposited at the interface by the impulsive acceleration is a function of the initial conditions.

On the other hand, a statistical processing of the numerical results shows that the decay of the turbulent kinetic-energy scales as t^α with $\alpha = -1.35$ before the first reshock. However, the agreement with the value of the scaling law of the decaying of a free-evolving three-dimensional isotropic turbulence is certainly a pure coincidence. The enstrophy also decays as a power law t^{-2} that is in agreement with the theoretical and numerical results of Batchelor in the context of a freely-decaying two-dimensional incompressible turbulence,³³ although the flows simulated in this paper are bounded. Moreover, spectral analysis of the mixing layer exhibits a k^{-3} enstrophy cascade which is in agreement with theoretical studies of two-dimensional turbulence.^{32,33} But some results moderate the conclusion that the flow is fully turbulent. We have seen that the turbulent kinetic-energy dissipation rate scales as $t^{-1.84}$ but in a fully 3D turbulent flow where dissipation plays an important role, we would have expected a $t^{\alpha-1}$ behavior where α is the exponent of the scaling law for the turbulent kinetic energy. However, we have to note that this agreement, using statistical turbulent models, does not take into account the density fluctuations. Moreover, let us recall that the theoretical scaling laws mentioned above give only an asymptotic limit in time and assume that the turbulence is homogeneous and isotropic, which is not true in our case. Indeed, measurement of the longitudinal and transversal velocity variances have proved that the flow is anisotropic in the mixing layer. Finally, before the first reshock, several quantities in the mixing zone adopt a quasi self-similar behavior even if the flow is not fully turbulent but still in a strongly nonlinear or weakly turbulent regime.

After the interaction between the first reflected shock wave with the mixing layer, the flow behavior is different.

Because of the 2D character of the simulations, large structures are still growing with time but power-law evolutions for various quantities (bubble and spike fronts, turbulent kinetic energy, enstrophy) are no more valid. This behavior may be explained by the presence of a weak turbulence far from equilibrium because the mixing layer has probably not evolved over a sufficiently long time between two reshocks to reach a spectral equilibrium.

Numerical simulations of these multimode Richtmyer–Meshkov experiments have also shown the influence of turbulent boundary layers on mean flow velocity measured in the middle of the tube. Indeed, turbulent boundary layers which develop on the shock-tube walls confine the flow and accelerate it. Furthermore, the lambda-shock structure observed in experiments is well reproduced by simulations.

Finally, numerical simulations presented in this paper allow us to characterize and better understand the flow in the Richtmyer–Meshkov instability induced mixing-zone. These 2D calculations have been done as a precursor to future three-dimensional simulations and the comparison between 2D and 3D results will permit to isolate effects that are due only to the 2D character, such as enstrophy cascade, or effects that are allowed by the third direction, such as vortex stretching.

ACKNOWLEDGMENTS

We thank O. Grégoire, F. Poggi, and D. Souffland for useful discussions.

- ¹R. D. Richtmyer, "Taylor instability in shock acceleration of compressible fluids," *Commun. Pure Appl. Math.* **13**, 297 (1960).
- ²E. E. Meshkov, "Interface of two gases accelerated by a shock wave," *Fluid Dyn.* **4**, 101 (1969).
- ³S. G. Zaytsev, E. V. Lazareva, V. V. Chernukha, and V. M. Belyaev, "Intensification of mixing at the interface between media of different densities upon the passage of a shock wave through it," *Sov. Phys. Dokl.* **30**, 579 (1985).
- ⁴M. Vetter and B. Sturtevant, "Experiments on the Richtmyer–Meshkov instability of an air–SF₆ interface," *Shock Waves* **4**, 247 (1995).
- ⁵I. Galametz, "Visualisation et mesure de masse volumique dans un mélange gazeux en tube à choc," thèse de l'Université de Lille (France), 1994; see also G. Rodriguez, I. Galametz, M.-H. Thorembey, C. Rayer and J.-F. Haas, *Visualization of shocked mixing zones using differential interferometry and X-rays, 20th ISSW, Pasadena (USA)*, edited by H. Hornung (World Scientific Press, Singapore, 1996).
- ⁶G. Jourdan, L. Houas, and M. Billiotte, "Density evolution within a shock accelerated gaseous interface," *Phys. Rev. Lett.* **78**, 452 (1997).
- ⁷F. Poggi, "Analyse par vélocimétrie d'un mélange gazeux créé par instabilité de Richtmyer–Meshkov," thèse de l'Université de Poitiers (France), 1997; see also F. Poggi, M.-H. Thorembey, J.-M. Koenig, G. Rodriguez, and J.-F. Haas, "Measurements of velocity in the turbulent stage of gaseous mixtures induced by shock waves," *Shock Waves* (to be published).
- ⁸F. Poggi, M.-H. Thorembey, and G. Rodriguez, "Velocity measurements in turbulent gaseous mixtures induced by Richtmyer–Meshkov instability," *Phys. Fluids* **10**, 2698 (1998).
- ⁹K. A. Meyer and P. J. Blewett, "Numerical investigation of the stability of a shock-accelerated interface between two fluids," *Phys. Fluids* **15**, 753 (1972).
- ¹⁰L. D. Cloutman and M. F. Wehner, "Numerical simulation of Richtmyer–Meshkov instabilities," *Phys. Fluids A* **4**, 1821 (1992).
- ¹¹J. W. Grove, R. H. Holmes, D. H. Sharp, Y. Yang, and Q. Zhang, "Quantitative theory of Richtmyer–Meshkov instability," *Phys. Rev. Lett.* **71**, 3473 (1993).
- ¹²R. H. Holmes, J. W. Grove, and D. H. Sharp, "Numerical investigation of Richtmyer–Meshkov instability using front tracking," *J. Fluid Mech.* **301**, 51 (1995).
- ¹³R. M. Baltrusaitis, M. L. Gittings, R. P. Weaver, R. F. Benjamin, and J. M. Budzinski, "Simulation of shock-generated instabilities," *Phys. Fluids* **8**, 2471 (1996).
- ¹⁴R. L. Holmes, G. Dimonte, B. Fryxell, M. L. Gittings, J. W. Grove, M. Schneider, D. H. Sharp, A. L. Velikovich, R. P. Weaver, and Q. Zhang, "Richtmyer–Meshkov instability growth: experiment, simulation and theory," in Los Alamos National Laboratory, Report No. LA-UR-97-2606 (1997).
- ¹⁵C. Mügler and S. Gauthier, "Numerical simulations of single-mode Richtmyer–Meshkov experiments," *Phys. Rev. E* **58**, 4548 (1998).
- ¹⁶S. Gauthier and M. Bonnet, "A $k-\epsilon$ model for turbulent mixing in shock-tube flows induced by Rayleigh–Taylor instability," *Phys. Fluids A* **2**, 1685 (1990).
- ¹⁷F. L. Addesio, J. R. Baumgardner, J. K. Dukowicz, N. L. Johnson, B. A. Kashiva, R. M. Rauenzhan, and C. Zemach, "CAVEAT: a computer code for fluid dynamics problems with large distortion and internal slip," in Los Alamos National Laboratory, Report No. 10613 (1990).
- ¹⁸J. O. Hirschfelder, C. F. Curtiss, and R. B. Bird, *Molecular theory of gases and liquids* (Wiley, New York, 1954).
- ¹⁹C. R. Wilke, "A viscosity equation for gas mixtures," *J. Chem. Phys.* **18**, 517 (1950).
- ²⁰E. A. Mason and S. C. Saxena, "Approximate formula for the thermal conductivity of gas mixtures," *Phys. Fluids* **1**, 361 (1958).
- ²¹C. Mügler, L. Hallo, S. Gauthier, and S. Aubert, "Validation of an ALE Godunov algorithm for solutions of the two-species Navier–Stokes equations," *AIAA Pap.* **96–2068**, (1996).
- ²²J. K. Dukowicz, "A general non-iterative Riemann solver for Godunov's method," *J. Comput. Phys.* **61**, 119 (1985).
- ²³J. H. Williamson, "Low-storage Runge–Kutta schemes," *J. Comput. Phys.* **35**, 48 (1980).
- ²⁴B. Baldwin and H. Lomax, "Thin layer approximation and algebraic model for separated turbulence flows," *AIAA Pap.* **78–257**, (1978).
- ²⁵J. D. Ramshaw, "Simple model for linear and nonlinear mixing at unstable fluid interfaces with variable acceleration," *Phys. Rev. E* **58**, 5834 (1998).
- ²⁶U. Alon, J. Hecht, D. Ofer, and D. Shvarts, "Power laws and Similarity of Rayleigh–Taylor and Richtmyer–Meshkov mixing fronts at all density ratios," *Phys. Rev. Lett.* **74**, 534 (1995).
- ²⁷G. I. Barenblatt, in *Nonlinear Dynamics and Turbulence*, edited by G. I. Barenblatt, G. Ioss, and D. D. Joseph (Pitman, Boston, 1983), p. 48.
- ²⁸C. Cherfilis and A. K. Harrison, "Comparison of different statistical models of turbulence by similarity methods," ASME Fluids Engineering Division Summer meeting, Nevada, June 19–23 1994.
- ²⁹T. Pham and D. I. Meiron, "A numerical study of Richtmyer–Meshkov instability in continuously stratified fluids," *Phys. Fluids A* **5**, 344 (1993).
- ³⁰D. L. Youngs, "Numerical simulation of mixing by Rayleigh–Taylor and Richtmyer–Meshkov instabilities," *Laser Part. Beams* **12**, 752 (1994).
- ³¹G. Dimonte and M. Schneider, "Turbulent Richtmyer–Meshkov instability experiments with strong radiatively driven shocks," *Phys. Plasmas* **4**, 4347 (1997).
- ³²R. H. Kraichnan, "Inertial ranges in two-dimensional turbulence," *Phys. Fluids* **10**, 1417 (1967).
- ³³G. K. Batchelor, "Computation of the energy spectrum in homogeneous two-dimensional turbulence," *Phys. Fluids Suppl. II* **12**, 233 (1969).
- ³⁴U. Frisch, *Turbulence, the legacy of A. N. Kolmogorov* (Cambridge University Press, Cambridge, 1995), pp. 241–243.
- ³⁵J. C. McWilliams, "The emergence of isolated coherent vortices in turbulent flow," *J. Fluid Mech.* **146**, 21 (1984).
- ³⁶A. N. Kolmogorov, "Decay of isotropic turbulence in incompressible viscous fluids," *Dokl. Akad. Nauk SSSR* **31**, 538 (1941).
- ³⁷M. Lesieur, *Turbulence in Fluids*, 3rd revised and enlarged ed. (Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, 1997).
- ³⁸M. S. Mohamed and J. C. Larue, "The decay power law in grid-generated turbulence," *J. Fluid Mech.* **219**, 195 (1990).
- ³⁹T. Passot and A. Pouquet, "Numerical simulations of compressible homogeneous flows in the turbulent regime," *J. Fluid Mech.* **181**, 441 (1987).
- ⁴⁰S. Kida and S. A. Orszag, "Enstrophy budget in decaying compressible turbulence," *J. Sci. Comput.* **5**, 1 (1990).

Annexe C : Comparison of roughness models to simulate overland flow and tracer transport experiments under simulated rainfall at plot scale

Cette annexe présente l'article :

C. Mügler, O. Planchon, J. Patin, S. Weill, N. Silvera, P. Richard, E. Mouche. Comparison of roughness models to simulate overland flow and tracer transport experiments under simulated rainfall at plot scale. *Journal of Hydrology* 402, 25-40, 2011.

Cet article vient en complément du §2.1 de la Partie 2 de ce mémoire.



Comparison of roughness models to simulate overland flow and tracer transport experiments under simulated rainfall at plot scale

C. Mügler^{a,*}, O. Planchon^b, J. Patin^a, S. Weill^{a,1}, N. Silveira^c, P. Richard^d, E. Mouche^a

^a Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, UMR 8212 CEA-CNRS-UVSQ, Orme des Merisiers, 91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France

^b Institut de Recherche pour le Développement, UMR LISAH, 2 Place Viala, F-34060 Montpellier Cedex 1, France

^c Institut de Recherche pour le Développement, UMR BIOEMCO, LDD Office of Science & Land Development 2003/61 Pahon Yothin Road, Chatuchak 10900 Bangkok, Thailand

^d Institut National de la Recherche Agronomique, UMR BIOEMCO, Campus AgroParisTech, Batiment EGER, 78850 Thiverval-Grignon, France

ARTICLE INFO

Article history:

Received 26 October 2010

Received in revised form 11 February 2011

Accepted 26 February 2011

Available online 10 March 2011

This manuscript was handled by K.P. Georgakakos, Editor-in-Chief, with the assistance of Attilio Castellarin, Associate Editor

Keywords:

Rainfall-simulation

Tracer injection

Roughness model

Friction law

SUMMARY

The Saint-Venant equations have consistently proved capable of accurately simulating hydrographs at plot scale. However, recent works showed that even though the hydrograph is satisfyingly reproduced, the flow velocity field within the plot might be wrong, with the highest velocity largely underestimated. Moreover, the choice of roughness models to be used in the Saint-Venant equations is most often done in the purpose of increasing the hydrograph quality, while the actual travel time of water is ignored. This paper presents a tracer experiment made on a 10-m by 4-m rainfall simulation plot, where travel time and tracer mass recovery as well as local flow velocity have been measured. Four roughness models are tested: (i) Darcy-Weisbach's model, (ii) Lawrence's model, (iii) Manning's model with a constant roughness coefficient, and (iv) Manning's model with a variable roughness coefficient which decreases as a power law of the runoff water depth.

Models with a constant friction factor largely underestimate high velocities. Moreover, they are not able to simulate tracer travel-times. Lawrence's model correctly simulates low and high velocities as well as tracer breakthrough curves. However, a specific set of parameters are required for each breakthrough curve from the same experiment. The best results are obtained with the Manning's model with a water-depth dependent roughness coefficient: simulated velocities are consistent with measurements, and a single set of parameters captures the entire set of breakthrough curves, as well as tracer mass recovery.

The study reported here brings the following findings: (i) roughness coefficient is flow-dependent, (ii) faithful simulation of the velocity fields does not imply a good prediction of travel time and mass recovery, (iii) the best model is a Manning type model with a roughness coefficient which decreases as a power law of water depth.

The full dataset used in this work is available on request. It can be used as benchmark for overland flow and transport models.

© 2011 Elsevier B.V. All rights reserved.

1. Introduction

Overland flow and transport of sediments, dissolved nutrients or contaminants in runoff water depth are important processes involved in water erosion and pollution. Modelling transport of sediments and chemicals requires accurate calculation of flow velocity. In hydraulic models, the hydraulic resistance, characterized by a roughness parameter, is one of the key parameters which determine runoff water depth and overland flow distribution. Many equations relate velocity to friction slope (Kirby, 1978). A

general formulation of the friction law expresses velocity as a function of flow depth and friction slope, as follows:

$$u_i = \alpha h^\beta \sqrt{S_{fi}}, \quad (1)$$

where u_i is the i -component of the local depth-averaged velocities ($i = x$ or y), h the local water depth and S_{fi} the friction slope in the i -direction. An appropriate choice of parameters α and β leads to the following familiar relationships:

- Chezy's relationship with $\beta = 1/2$ and α equal to the Chezy's resistance parameter;
- Darcy-Weisbach's relationship with $\beta = 1/2$ and $\alpha = (8g/f)^{1/2}$, where f is the Darcy-Weisbach's friction factor, proportional to the ratio of gravity to inertial forces;
- Manning-Strickler's friction law with $\beta = 2/3$ and $\alpha = 1/n$ where n is the Manning's roughness coefficient representing hydraulic resistance to flow.

* Corresponding author.

E-mail address: claudemugler@cea.fr (C. Mügler).

¹ Present address: Laboratoire d'Hydrologie et de Géochimie de Strasbourg, UMR 7517 CNRS, Université de Strasbourg, 1 rue Blessig, 67084 Strasbourg Cedex, France.

Chezy and Manning equations were originally developed in the purpose of sizing canals in the XIXth century (Mouret, 1921). Darcy-Weisbach equation was initially developed for pipe flow. These equations assume numerous restrictive conditions: flow is uniform, parallel to the surface, flow width is constant, grain roughness is homogeneous over the wetted perimeter and can be considered as random. None of the former conditions are met in overland flow (Smith et al., 2007). Nevertheless, Chezy, Manning and Darcy-Weisbach equations are the most widely used for calculating flow velocity in runoff and erosion models.

In the case of one-dimensional flow through pipes, the Reynolds number, which measures the relative significance of inertia and viscosity ($Re = 4uh/\nu$ where ν is the fluid kinematic viscosity), is an important dimensionless number to estimate the friction coefficient. Indeed, in laminar regime, the friction factor is inversely proportional to the Reynolds number, while in turbulent regime (i.e. at Reynolds numbers greater than 2000 in pipe flows) it is determined by the roughness ratio. According to Lawrence (1997), the Reynolds number at which the roughness ratio becomes dominant is much smaller for overland flow in presence of macroscale roughness than it is for classical pipe flow. Furthermore, previous experimental studies of resistance to overland flow on desert hillslopes (Abrahams et al., 1986) suggested that the conventional f - Re relationship for shallow flow over a plane bed whose shape is a function of the state of flow did not apply to desert hillslopes and should not be employed in mathematical models of overland flow on such hillslopes. As a consequence, Lawrence (1997) proposes to use the inundation ratio rather than the flow Reynolds number for modelling the hydraulics of overland flow on rough granular surfaces. The inundation ratio describes the average submergence of soil surface roughness. It is used to categorize flow regime into partially inundated, marginally inundated and well-inundated surfaces. Each category is characterized by a functional relationship which expresses the frictional resistance as a function of the inundation ratio. The author defines Λ , a dimensionless degree of inundation of a rough surface: $\Lambda = h/h_c$, where h is flow depth and h_c the characteristic roughness scale of the surface. In the literature, the surface roughness h_c is often equal to $d_{50}/2$ or $d_{90}/2$ where d_{50} and d_{90} are the median-weight diameter and 90%-weight diameter of the particle size distribution, respectively (Abrahams et al., 1986; Lawrence, 1997).

At partial inundation, when flow depth is less than the mean roughness height, flow resistance is associated with the drag force derived from individual roughness elements and increases with depth and percentage cover according to (Lawrence, 1997):

$$f = \frac{8PC_D}{\pi} \min\left(\frac{\pi}{4}, \Lambda\right), \quad (2)$$

where C_D is the drag coefficient for roughness elements and $\min[a, b]$ is used to refer for the minimum value of either expression a or b . In Eq. (2), P is the fractional cover or portion of the surface covered by the largest particles. In (Lawrence, 1997), C_D is assumed to be constant and equal to 1 although in (Lawrence, 2000), at partial inundation, C_D decreases with percentage cover.

At marginal inundation, when roughness elements are fully covered but their height has the same magnitude as flow depth, the ratio of the size of roughness elements to the depth of flow controls the degree of vertical mixing in the flow. Consequently, frictional resistance sharply decreases with increasing flow depth (Lawrence, 1997):

$$f = \frac{10}{\Lambda^2}. \quad (3)$$

Well-inundated flows, in which water depth is significantly greater than roughness height, are described by using rough turbulent flow hydraulics previously developed for open channel flows.

These flows exhibit a much more gradual decrease in frictional resistance with increasing depth than during the marginal inundation regime (Lawrence, 1997):

$$f = \frac{1}{(1.64 + 0.803 \times \ln \Lambda)^2}. \quad (4)$$

Despite the existence of more sophisticated models such as the heuristic physical Lawrence's model, Manning's roughness coefficient n (see Eq. (1) with $\beta = 2/3$ and $\alpha = 1/n$) is still often used for shallow water overland flow, where it is assumed constant in time and independent of flow depth. Manning's coefficient depends on soil type and vegetative cover (De Roo et al., 1989; Jain and Singh, 2005). Katul et al. (2002) showed that when the water depth is much larger than the characteristic soil roughness height, Manning's roughness coefficient n can be calculated from

$$n = 0.06(z_0)^{1/7}, \quad (5)$$

where z_0 is the momentum roughness height, defined as the bed-normal location of zero-velocity predicted by the "log-law" approximation of the velocity profile in the Prandtl-Karman mixing-length theory. This relationship between n and z_0 is used by Thompson et al. (2010), among others, to estimate Manning's friction factor of an idealized one-dimensional hillslope with uniform sinusoidal microtopography with fixed amplitude A . They assume that z_0 scales linearly with the fixed depression height $2A$. In the case of vegetative cover, several authors showed that the vegetative resistance varies with flow depth or the degree of submergence. For example, Wu et al. (1999) concluded from analysis of experimental data that the vegetative roughness coefficient of un-submerged vegetation reduces with increasing flow depth and is independent of bed slope. They also pointed out that the vegetative roughness coefficient of fully submerged vegetation tends to increase at low depths but then decrease to an asymptotic constant as the water level continues to rise. Tsihrintzis (2001) showed that most of these experimental data can be modelled with the Kadlec's power law for flow through vegetation (Kadlec, 1990). So, Jain et al. (2004) adopted such a simplified form of depth-dependent roughness formulation in a distributed rainfall-runoff model:

$$n = n_0 \left(\frac{h}{h_0}\right)^{-\varepsilon} \quad \text{for } h < h_0 \text{ and } n = n_0 \quad \text{for } h \geq h_0, \quad (6)$$

where n is depth-dependent Manning's roughness coefficient, n_0 is the minimum land surface-dependent Manning's roughness corresponding to flow depth h_0 beyond which n is assumed constant. ε is an exponent related to vegetation drag. With this model, the authors obtained numerical results for both temporal variations of the spatial distribution of flow depth and runoff over a catchment in fairly good agreement with measurements. Rai et al. (2010) also used a power law for the depth-dependent overland flow resistance. They showed that variable roughness preserved the hydrograph shape better than constant one.

The objective of this study is to compare different roughness models:

- Darcy-Weisbach (DW)'s model;
- Lawrence's model;
- Manning's model with constant roughness coefficient;
- Manning's model with a water-depth dependent roughness coefficient.

In order to test these models, a rainfall simulation experiment was held in Thies, Senegal. It was done with an improved version of the large rainfall simulator (4-m by 10-m) described by Esteves et al. (2000a). The experiment aimed at measuring both local flow velocity within the plot and breakthrough curves of point-source

injection of tracer. Because the two measurements could not be done during the same rainfall (see materials and methods section for details), two rainfall simulations have been successively done. The first one was devoted to capture the tracer breakthrough curves and mass recovery of tracer injected in several points of the plot. This rainfall simulation will be called the transport experiment. The next rainfall was devoted to local flow velocity measurements. We will call it the surface runoff experiment. The later has already been published (Tatard et al., 2008). In the present paper, the entire dataset is used. A dedicated code was written in order to achieve the desired comparison. Comparison with Tatard's et al. (2008) preliminary results is made when appropriate.

It must be emphasized that this type of joint model calibration on a flow and a transport experiment is fairly common in hydrogeology (Bear et al., 1993). Among such studies, the single fracture system with matrix diffusion (Grisak and Pickens, 1981) is a typical example of such studies, as well as a good analogue of the plot problem targeted in the present study. The literature on fracture models shows that the joint calibration of flow and transport is generally difficult to achieve: a good calibration of the flow model, i.e. of the transmissivity field, linked to the roughness of the fracture plane, leads to a poor calibration of the breakthrough curve and vice versa (Andersson et al., 2004). More recently, joint calibrations of runoff hydrograph and tracer measurements has also been done in hillslope hydrology. For example, McGuire et al. (2007) used a spatially explicit model constrained by soil hydrologic properties, runoff and applied tracer data to identify the dominant processes necessary to explain both water and solute flux from a steep hillslope. To the best knowledge of the authors, no attempt has been done in surface hydrology to do a joint calibration of local flow velocities and tracer breakthrough curves at the plot scale. According to the above cited literature in hydrogeology, the exercise promised challenging, as well as possibly very selective with regard to the selected roughness models.

In this paper, the materials and methods section presents the experiments and the four models. The results section presents the calibration of the surface runoff experiment with the four models, followed by the corresponding operation for the transport experiment. Models are compared to each other. This comparison is followed by a general discussion of the relative performance of the tested models. Especially, we discuss why the power Manning model, which is in essence a phenomenological model² performed better than the Lawrence model, which is in essence a physically-based model.³

2. Materials and methods

2.1. Experiments

The rainfall simulation experiment was held in Thies, Senegal. The plot was 10 m long by 4 m wide, with a 1% slope, and sandy soil (1% clay, 7% silt, 43% fine sand, 49% coarse sand). The granulometry of the sandy soil is given in Table 1. The rainfall simulator was as described by Esteves et al. (2000a). It allowed for rainfall at a constant average intensity of 70 mm h⁻¹. In order to limit wind effects, which may cause noticeable variations of rainfall intensity, simulations were carried out at a maximum wind speed of 1 m s⁻¹. Six tipping-bucket rain gauges with electronic recording were

Table 1

Granulometry of the sandy soil.

Grain size (μm)	50	100	150	200	250	500	750
Portion (%)	4	13	15	14	13	32	5

Table 2

Chronology of plot preparation and experiments.

Day from start	Work done
0	Initial rainfall in order to moisten the soil
1	Plot preparation: removing 5 cm at the surface already polluted by previous experiments, plowing upside-down the next 50 cm, adding fresh surface soil to replace the removed layer Raking and forming the V shape
2	Two hours of rainfall in order to produce an already 'old' surface, which was supposed to evolve much slower than the raked one
3	Microtopography measurement
4	Transport experiment
5	Microtopography measurement
6	First (unsuccessful) attempt of surface runoff experiment
7	Microtopography measurement
8	Surface runoff experiment (Tatard et al., 2008)
9	Microtopography measurement + high resolution photography for further mosaicing

placed along the plot borders for monitoring the actual rainfall intensity. The flow discharge was collected in a trough and alternately directed, via a 10-cm flexible hose, into two 150-l iron cylinders, one being filled while the other was drained. The volume in the filling cylinders was monitored by recording the rise of a float. The resolution of this apparatus was 2.5 l. The typical flow discharge at steady state was 0.5 l s⁻¹.

2.1.1. Plot preparation

Table 2 gives the chronology of plot preparation and experiments. On day 1 of the experiment, plot preparation consisted on manual plough of the plot to a depth of 50 cm. The surface was then raked in order to form a slight V shape, with 1% slope longitudinally and 1% slope towards the median axis of the plot. The purpose of the V shape was to avoid rill development at the edge of the plot. On day 2 of the experiment (see Table 2), a 2-hour long rainfall was applied at a constant intensity of 70 mm h⁻¹. Rainfall intensity of 70 mm h⁻¹ is common in the region (return time in the order of a year). However, a duration of 2 hours at this intensity has no possible point of comparison with natural rainfall. The experiment was designed in order to maintain steady runoff and infiltration rate during enough time to perform the flow velocity measurements. In this purpose, several hours of rainfall had been applied on the plot prior to the experiment in order to form an already 'old' surface with a well organized flow pattern that would erode very slowly during the experiment itself. The longitudinal slope had evolved from straight to slightly concave with some sand deposits in the concave downstream. Fig. 1 gives a general view of the plot. Days 3 and 5 were devoted to soil microtopography measurements. They were done with an automated device described in Planchon et al. (2000). It consists of a vertical rod with a sensor at the end that detects the soil surface. Stepper motors allow the apparatus to move in small increments in all directions. The horizontal resolution is 2.5 cm transversally to the plot and 5 cm longitudinally. The vertical precision is 0.5 mm. With a maximum acquisition rate of 1.6 point s⁻¹, the 16,000 measured points of the entire Digital Elevation Model (DEM) required a full working day. The calculation of the Random Roughness with a formulation which simultaneously removes slope and tillage effects (Planchon

² We call a phenomenological model a model based on empirical laws inspired by field observations. These laws are derived after being introduced in the conservation laws of Physics (mass, momentum, and/or others).

³ We call a physically-based model a model which describes as faithfully as possible the true physics of an idealized, simplified, and often uniformized vision of reality.

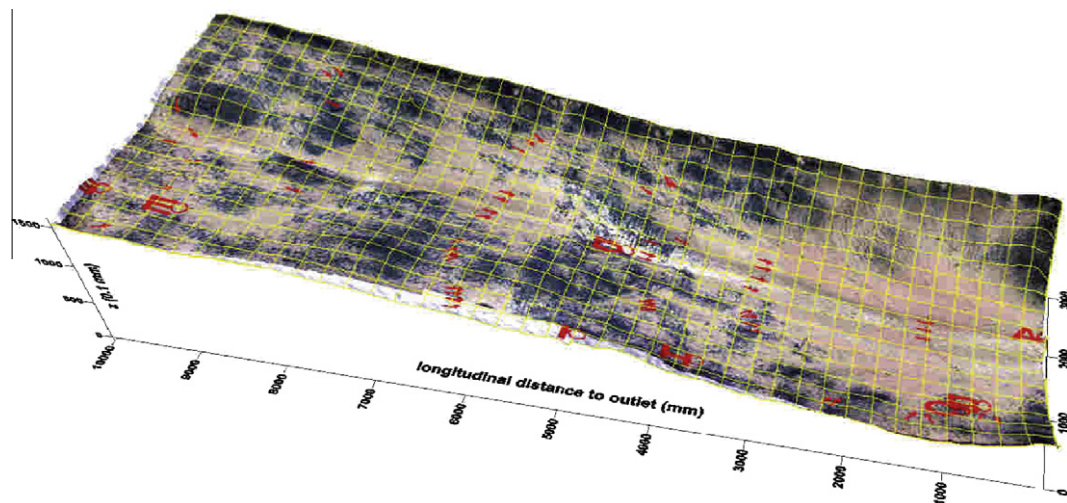


Fig. 1. General view of the plot. Horizontal coordinates are in mm. Vertical scale is magnified 10 times. Colour contrast and saturation are artificially enhanced in order to highlight the surface feature pattern which is tiny in reality, although important for understanding the plot behaviour and evolution. Arrows show flow velocity measured points during the surface runoff experiment. Letters show the injection points in the transport experiments. The grid space is 25 cm. Topography and overland image used in the figure were captured at the end of all experiments. The small, narrow, bright part at the middle of the right-hand side of the plot corresponds to missing data in the image mosaic (only elevation is known there).

et al., 2001) leads to a value lying between 0.5 mm and 2.5 mm depending on the considered zone in the plot.

2.1.2. Transport experiment

Although surface runoff experiments usually come first in numerical-versus-experimental works in hydrodynamics, we chose to perform the transport experiment first because the carbon chlorite used in the surface runoff experiment, even in the small quantities we needed (see Tatard et al., 2008), was prone to pollute the plot, which would jeopardize any further tracing experiment. Contrarily, even a significant pollution by tracers would not affect local velocity measurements. The tracer used was a mixture of H_2^{18}O (5 g), $^2\text{H}_2\text{O}$ (5 g), $\text{CaCl}_2(6\text{H}_2\text{O})$ (250 g) and KBr (15 g). A small and unknown quantity of water added to this composition because of CaCl_2 hygroscopicity. The bulk density of the final solution was 1437 kg m^{-3} . Each injection consisted in applying 1 g s^{-1} of tracer during 30 s at a predetermined point chosen from the DEM acquired the day before. Injection of tracer started after a time of 30 mn of rainfall, when the discharge had stabilized. Tracer was injected at eight locations in the plot, noted A to I in Fig. 1 (see also Fig. 6). The upper-stream locations (C, G) were chosen at source points of runoff (i.e. where no runoff could come from upstream). Locations D and E were in the main channel. Other injection points were on small, but clearly visible flow path. Location A, the most downstream point set at the outlet of the plot, was devoted to the characterization of the response of the experimental setup between the outlet of the plot and the sampling bottles. The experiment on day 4 (see Table 2) consisted of a 1h24'-long continuous rainfall at constant rainfall intensity ($75 \pm 5 \text{ mm h}^{-1}$). At the outlet of the plot, a peristaltic pump diverted a constant 20-ml s^{-1} flow, from the runoff water, into a silicon hose which served at collecting manually one sample at every second. Additionally, a conductivity sensor was plugged at the mouth of the hose, thus giving in real time the apparent conductivity of each one-second sample. The term apparent conductivity means that the sensor, which had to be handcraft in order to fit in the hose, was not calibrated. Further calibration of the conductivity measurement was done by comparison with ^{18}O analysis. The sensor was then proved linear and accurate. At the end of rainfall, all samples were hermetically sealed for further ^{18}O and ^2H isotopic analysis.

Uncertainties of tracer measurements can be estimated from the following considerations:

- Time synchronization between all operations was supervised by an operator with a whistle, which typically allowed a time uncertainty of $\pm 1 \text{ s}$.
- The overall mass of tracer injected at every location was known with high precision by weighting the remaining tracer before and after every injection.
- The mass of tracer in each one-second sample was measured by real-time apparent conductivity measurement. After the experiment, ^{18}O has been measured in 131 samples, the exact mass of tracer has been deduced from these and compared to the corresponding apparent conductivity measurement. The comparison gave a linear relation between tracer mass and conductivity ($r^2 = 0.985$), which corresponds to an uncertainty of $\pm 3\%$ on the mass in each single one-second sample.

2.1.3. Surface runoff experiment

The surface runoff experiment was described by Tatard et al. (2008). In essence, it consists in a miniaturized version of the salt velocity gauge (SVG) presented in Planchon et al. (2005). Two conductivity probes of 1-cm wide each are posted at exactly 10 cm to each other in the exact flow direction. Salt brine is injected manually a few centimetres upstream to the upper probe. Electric conductivity is measured simultaneously at the two probes at 250 Hz during 2.5 s. Velocity is obtained by inverse modelling of the 1D transport model of the brine between the two probes. 72 points were measured with one to three replications. These points were selected with the following objectives: (i) to cover the largest range of flow velocity as allowed with the SVG technology (i.e. $0.005\text{--}1 \text{ m s}^{-1}$) and, (ii) to be scattered within the entire plot.

Field problems as well as failure or poor quality of the inversion model brought the need of filtering the data in order to be certain to reject erroneous measurements. This was done thanks to additional data recorded by the device, such as peak height, root mean square error (RMSE) of the inverse model. The accuracy of the SVG technology observed in ideal conditions is typically $\pm 2.5\%$ (Darboux, 2011). In our experimental conditions, uncertainties on

velocity measurement can be estimated from the replications of measurement at the same location. From these, it appears that the best measuring conditions (standard deviation of 0.8 cm s^{-1}) occurred when velocity was below 3 cm s^{-1} or above 15 cm s^{-1} . The worst measuring conditions appeared at 5 cm s^{-1} , with a standard deviation of 1.4 cm s^{-1} . At the end, 62 mean local velocity measurements at 62 individual points were selected for further use.

2.2. Models

2.2.1. General equations

Overland flow is usually described by the depth-averaged two-dimensional unsteady flow equations commonly referred to as the Saint-Venant equations (Zhang and Cundy, 1989; Esteves et al., 2000b). They consist of balance equations for the mass of water (Eq. (7)), and for the flow momentum, the later being written for each planar-coordinate directions x (Eq. (8)) and y (Eq. (9)). They can be written as:

$$\frac{\partial h}{\partial t} + \frac{\partial(u_x h)}{\partial x} + \frac{\partial(u_y h)}{\partial y} = R - I, \quad (7)$$

$$\frac{\partial u_x}{\partial t} + u_x \frac{\partial u_x}{\partial x} + u_y \frac{\partial u_x}{\partial y} + g \left(\frac{\partial h}{\partial x} + S_{fx} - S_{ox} \right) = 0, \quad (8)$$

$$\frac{\partial u_y}{\partial t} + u_x \frac{\partial u_y}{\partial x} + u_y \frac{\partial u_y}{\partial y} + g \left(\frac{\partial h}{\partial y} + S_{fy} - S_{oy} \right) = 0, \quad (9)$$

where h is the local water depth, u_x and u_y the x - and y -components of the local depth-averaged velocities, R the rainfall intensity, I the infiltration rate and g the gravitational constant. S_{ox} and S_{fx} (resp. S_{oy} and S_{fy}) are the ground slopes and the friction slopes in the x - and y -directions, respectively.

Tracer transport in the water depth is described by the following depth-averaged advective–dispersive equation (Weill et al., 2009):

$$\frac{\partial hc}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (h \vec{u} c - \vec{D} \vec{\nabla} c) = q_c, \quad (10)$$

where h is the local water depth, c the depth-averaged concentration, $\vec{u}$ the runoff velocity, $\vec{D}$ the surface diffusion–dispersion tensor and q_c a source or sink of concentration. In the followings, q_c , equal to the product $-Ic$, represents the sink of concentration due to infiltration. The diffusion–dispersion tensor can be written as:

$$\vec{D} = h \vec{d}_1 + h \vec{d}_2 |\vec{u}|, \quad (11)$$

where $\vec{d}_1$ and $\vec{d}_2$ are the diffusion tensor and the surface dispersivity tensor, respectively.

2.2.2. Diffusive-wave approximation

Processes of overland flow and channel flow are usually modelled using approximations of the Saint-Venant equations based

on the diffusive and the kinematic wave models (Chow et al., 1988).

In the diffusive-wave approximation, inertia terms are neglected and the momentum balance equations (8) and (9) reduce to:

$$S_{fi} = S_{oi} - \frac{\partial h}{\partial x_i}, \quad (12)$$

where i stands for the x and y -horizontal directions. Following Wasantha Lal (1998) and according to Weill et al. (2009), this equation becomes:

$$S_{fi} = -\nabla_i (h + z_i), \quad (13)$$

where z_i is the land surface elevation, defined such that the soil topographic slope is equal to $-\nabla_i z_i$. Physical attenuation due to local and convective accelerations and due to lateral inflow perpendicular to flow direction is not accounted for in the diffusive wave approximation. However, there is still some physical dissipation due to the spatial change in flow depth.

In the kinematic-wave approximation, however, all terms in the momentum equations (8) and (9) which cause the wave energy to dissipate as it moves downstream are neglected and Eqs. (8) and (9) reduce to equate friction and bed slope:

$$S_{fi} = S_{oi}. \quad (14)$$

Woolhiser and Liggett (1967) introduced dimensionless forms of the Saint-Venant equations which involve only two dimensionless parameters: the Froude number F and the kinematic-wave number k , defined as:

$$F = \frac{u_0}{\sqrt{gh_0}}, \quad (15)$$

$$k = \frac{S_0 L_0}{h_0 F^2}, \quad (16)$$

where u_0 and h_0 are the depth-averaged velocity and the normal water depth at $y = L_0$, respectively. The kinematic-wave approximation is applicable to very steep slopes. Woolhiser and Liggett (1967) recommend this approximation whenever $k > 20$. This criterion has later been modified by Morris and Woolhiser (1980) to $kF^2 > 5$ when $F < 0.5$ and $k > 20$ when $F > 0.5$. Pearson (1989) suggests a new criterion for using the kinematic-wave approximation to the Saint-Venant equations for steady-state shallow water flow: $k > 3 + 5/F^2$. Finally, the calculation of actual amounts of errors of kinematic-wave and diffusive-wave approximations for steady-state overland flows led to the conclusion that for small values of kF^2 , the diffusive-wave approximation should be preferred over the kinematic-wave approximation (Singh and Aravamuthan, 1996; Moussa and Bocquillon, 1996, 2000).

In the experimental configuration studied in the present paper and already described in (Tatard et al., 2008), the maximum water depths h_0 measured on the plot ranged between 1 cm and 2 cm. Deepest water were located in the middle of the plot ($L_0 = 5 \text{ m}$). The measured velocities were 0.25 and 0.15 m s^{-1} , respectively.

Table 3
Characteristics of the four different models.

Model	Friction factor $f(h)$	Parameters
Darcy-Weisbach (DW)	$f(h) = \text{cte} = f$	f
Lawrence	for $0 < h < h_c/4$, $f(h) = (8P/h_c) \times h$ for $h_c/4 < h < (5/P)^{1/2} h_c$, $f(h) = 2P$ for $(5/P)^{1/2} h_c < h$, $f(h) = \min(10 \times h_c/h)^2, (1.64 + 0.803 \times \ln(h/h_c))^{-2}$	P and h_c
Manning with constant n	$f(h) = 8gn^2/h^{1/3}$	n
Manning with variable $n(h)$	$f(h) = 8g(n(h)^2)/h^{1/3}$ with $n(h) = n_0 \times (h/h_0)^{-\varepsilon}$ with limit $n \geq n_0$	n_0 , h_0 , ε

The value of the Froude and kinematic-wave numbers were 0.8 (resp. 0.3) and 8 (resp. 22) for $h_0 = 1$ cm and 2 cm, respectively. The product $(k - 3)F^2$ was consequently less than 5, which falls within the range of validity of the diffusive-wave approximation for modelling this data set.

As done in (Weill et al., 2009), assuming that the water depth gradient is much smaller than the surface elevation gradient, the friction law given by Eq. (1) may be written as a function of the mean local slope S as follows:

$$u_i = -\frac{\alpha h^\beta}{\sqrt{S}} \nabla_i(z_l + h). \quad (17)$$

Introducing this equation in Eq. (7) leads to the following diffusive-wave equation for overland flow:

$$\frac{\partial h}{\partial t} - \vec{\nabla} \cdot \left(\frac{\alpha h^{\beta+1}}{\sqrt{S}} \right) \vec{\nabla}(z_l + h) = R - I. \quad (18)$$

Numerical simulations presented in the following sections are for steady state flow only (see the end of the following paragraph for details). This allowed us to assume both rainfall intensity R and infiltration rate I constant in space and time. R and I were therefore not explicitly computed. Comparison (not reported here) between our results and a fully coupled model solving diffusive

equation and Richards equation on the entire hydrograph (Weill, 2007) showed that these assumptions were justified.

2.2.3. Friction factors

In this paper, we compare four models characterized by the same friction law Eq. (1) with $\beta = 1/2$ and $\alpha = (8g/f(h))^{1/2}$, but with the following expressions for the friction factors $f(h)$:

- $f(h) = cste$. This model is called Darcy-Weisbach (DW)'s model further on in the paper. It is characterized by the constant value of f .
- $f(h)$ given by Eqs. (2)–(4). This model is called Lawrence's model. It is characterized by the values of the characteristic roughness scale h_c and fractional cover P .
- $f(h) = 8gn^2/h^{1/3}$. This model is called Manning's model with a constant n . It is characterized by the value of Manning's coefficient n .
- $f(h) = 8g(n(h))^2/h^{1/3}$. This model is called Manning's model with a variable n . Even if we investigated a bare soil in the present paper, we have adopted the Manning's water-depth dependent coefficient $n(h)$ given by Eq. (6) and used by Jain et al. (2004) to model overland flow in a vegetated catchment. This model is characterized by the values of minimum Manning's roughness n_0 , exponent ε and flow depth h_0 beyond which n is assumed constant.

Characteristics of each model are summarized in Table 3.

The models were solved with the numerical code (Cast3M) developed by the French Atomic Energy Commission (CEA) (see the website www-cast3m.cea.fr for more information). A Mixed-Hybrid Finite Element (MHFE) formulation was used to solve the overland flow Eq. (18) and transport Eq. (10) (Dabbene, 1998; Bernard-Michel et al., 2004). The time discretization was implicit. Calculations were performed in two steps: the steady state overland flow was solved first. The tracer experiment was computed by using the steady state formerly calculated. One can notice that

Table 4
Calibrated parameter values and corresponding RMSE for each model.

Model	Calibrated parameter values	RMSE (m s ⁻¹)
Darcy-Weisbach (DW)	$f = 0.2$	3.2×10^{-2}
Lawrence	$P = 30\%$ and $h_c = 0.25$ mm	2.8×10^{-2}
Manning with constant n	$n = 0.02$	3.1×10^{-2}
Manning with variable $n(h)$	$n_0 = 0.013$, $h_0 = 3$ mm, $\varepsilon = 1/3$	2.6×10^{-2}
PSEM_2D with constant f	$f = 0.26$	3.1×10^{-2}
PSEM_2D with variable f	see Tatard et al. (2008)	3.1×10^{-2}

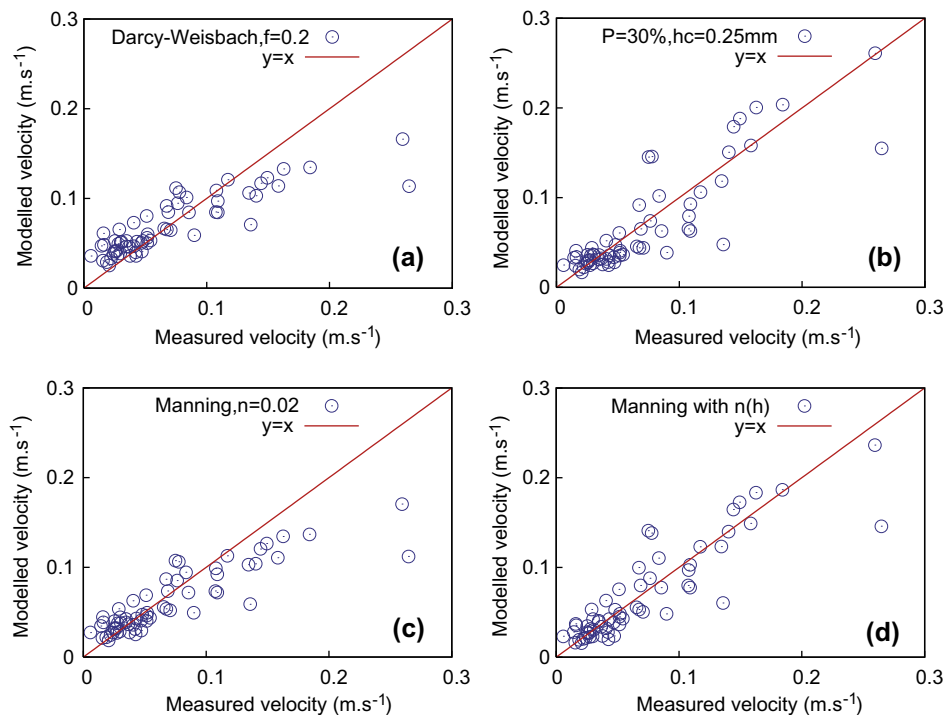


Fig. 2. Modelled versus measured velocities for four different friction laws: (a) Darcy-Weisbach's model with a constant friction factor f equal to 0.2; (b) Lawrence's model with $P = 30\%$ and $h_c = 0.25$ mm; (c) Manning's model with a constant n equal to 0.02; (d) Manning's model with $n(h)$ given by Eq. (6) where $n_0 = 0.013$, $h_0 = 3$ mm and $\varepsilon = 1/3$.

neither the rise nor the fall of the experimental hydrographs were used in the present work.

3. Results

3.1. Surface runoff experiment

To model the surface runoff experiment, we used the same DEM (made of $10 \times 10 \text{ cm}^2$ cells) as Tatard et al. (2008) used with the code PSEM_2D. The parameters involved in the expression of the

friction factor (see Table 3) were calibrated from the minimisation of the root mean square error (RMSE) which quantifies the global agreement between the simulated and the measured velocities. The RMSE is defined as follows:

$$RMSE = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (u_{obs,i} - u_{sim,i})^2}, \quad (19)$$

where $u_{obs,i}$ and $u_{sim,i}$ are the observed and simulated velocities at the location i . The total number of locations N was equal to 62. In

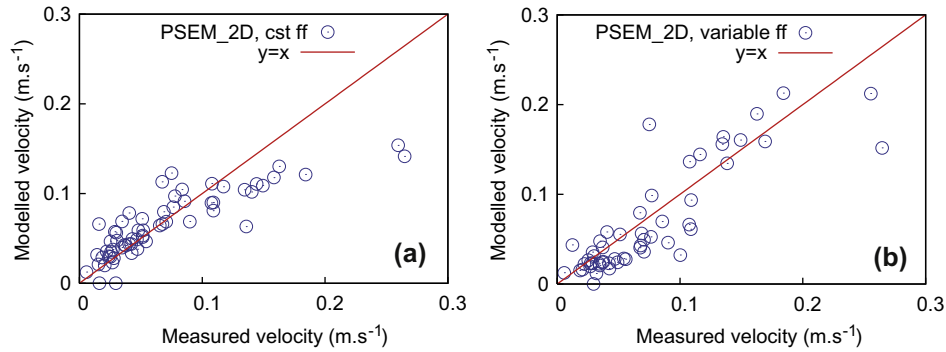


Fig. 3. Modelled versus measured velocities obtained from PSEM_2D with: (a) a constant friction factor f , (b) a varying friction factor f (see Figs. 4 and 5 in (Tatard et al., 2008)).

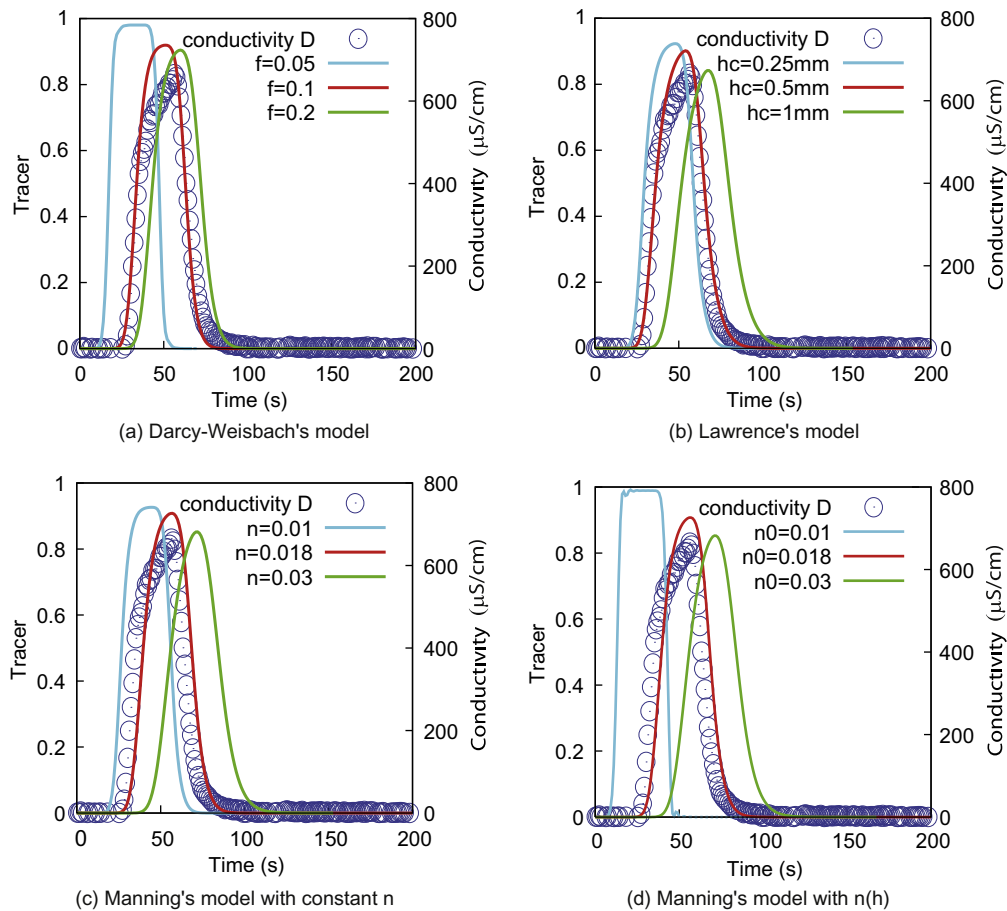


Fig. 4. Calibration of the four friction models from breakthrough curve of tracer injected in the main rill (point D). Best results are obtained with (a) $f = 0.1$ for Darcy-Weisbach's model; (b) $h_c = 0.5 \text{ mm}$ for Lawrence's model (no influence of parameter P); (c) $n = 0.018$ for Manning's model with constant n ; (d) $n_0 = 0.018$ for Manning's model with variable $n(h)$.

Table 5

Parameter values used to simulate transport experiments for each model.

Model	Injection at D	Injection at E	Injection at G	Injection at I	Injection at H
Darcy-Weisbach	$f = 0.1$	$f = 0.2$	$f = 0.4$	$f = 0.4$	$f = 0.6$
Lawrence	$h_c = 0.5$ mm no influence of P	$h_c = 0.5$ mm $P = 13\%$	$h_c = 0.5$ mm $P = 30\%$	$h_c = 0.5$ mm $P = 30\%$	$h_c = 0.5$ mm $P = 100\%$
Manning with constant n	$n = 0.018$	$n = 0.018$	$n = 0.025$	$n = 0.025$	$n = 0.03$
Manning with variable $n(h)$	$n_0 = 0.018$ $h_0 = 3$ mm $\varepsilon = 1/3$	$n_0 = 0.018$ $h_0 = 3$ mm $\varepsilon = 1/3$	$n_0 = 0.018$ $h_0 = 3$ mm $\varepsilon = 1/3$	$n_0 = 0.018$ $h_0 = 3$ mm $\varepsilon = 1/3$	$n_0 = 0.018$ $h_0 = 3$ mm $\varepsilon = 1/3$

calibration exercises, the calibrated parameter values are usually not unique and are slightly dependent on the type of objective criteria used. However, perhaps because of the large number of measurements, we did not have to face any problem of equifinality.

As presented in Table 4, calibration gave $f = 0.2$ for DW's model, $n = 0.02$ for Manning's model, $P = 30\%$ and $h_c = 0.25$ mm for Lawrence's model and $n_0 = 0.013$, $h_0 = 3$ mm and $\varepsilon = 1/3$ for Manning's model with $n(h)$. Parameters P and h_c involved in the expression of the friction factor for Lawrence's model could have been directly deduced from soil characteristics. The soil used in the Thies experiment was mainly made of fine and coarse sands which granulometry is given in Table 1. The percentage covered by large grains of 500- μ m diameter was equal to 32% and only 5% of sand was made of larger grains of 750- μ m diameter. The d_{90} value, equal to 0.5 mm, gives a theoretical characteristic roughness h_c equal to 0.25 mm. Finally, experimental values for Lawrence's model parameters should be: $P = 32\%$ and $h_c = 0.25$ mm, values which are very close to those obtained from calibration. Modelled velocities compared to observed ones are given in Fig. 2.

3.2. Transport experiment

3.2.1. Calibration

In this section and the followings, we call "breakthrough curve for injection point P" the experimental breakthrough curve of tracer injected at point P ($P = A$ to I in Fig. 6) and measured at the plot outlet. Model calibration is performed from the tracer arrival time and tracer mass recovery.

High-resolution flow-velocity measurements presented and modelled in previous section were performed 4 days after the tracer measurements (see Table 2). During these 4 days, a 2-hour simulated rainfall slightly modified topography, and more consistently plot roughness. DEMs used to model surface runoff experiment and transport experiment were therefore slightly different. Furthermore, the modelling of the transport experiment was performed on the measured topographic data (5 cm longitudinally, i.e. along the plot slope, and 2.5 cm transversely). Additional simulations (not reported here) with a coarser grid (10×10 cm² cells) showed that, compared to fine grid simulations, smoothing artificially plot roughness increased flow velocity and, correlatively, made tracers to arrive earlier at the outlet. Furthermore, simulations performed with the microtopography measured 1 day after the experiment showed a strong modification of tracer arrival times when the tracer is injected near to the bottom of the plot (injection points B and C, Fig. 6). This can be due to a real modification of the microrelief: erosion smoothes the area where water flow is fast. It also may be related to the presence of the trough where flow is collected, and which disturbs the topography. Consequently, in the following, we will disregard breakthrough curves for injection points B and C. Breakthrough curve for injection point A was only useful to estimate the fluid travel time between the plot outlet and the sampling bottles. Finally, we present in this section the breakthrough curves for the five injection points D, E, G, H and I. As the topography changed, parameters involved in the expression of friction

factors for the different models and calibrated from the surface runoff experiment are no more valid for the transport experiments and have to be calibrated again. As in previous sections, the four models used for the friction factor are DW's model, Lawrence's model and Manning's model both with a constant n or a variable $n(h)$ (see Table 3). The steady state of the hydraulic equation Eq. (18) was then solved for all models and model parameters were calibrated from the breakthrough curve of tracer injected in the main rill (point D). Indeed, when injected at point D, the tracer travels in zones where the velocity and the water depth are large and it allows us to calibrate flow parameters from high-velocity zones. The purpose of this paper is not to perform a precise calibration of all parameters but rather to compare their behaviour to each other. So, for the transport experiment, we performed a qualitative calibration from a finite number of high-resolution simulations.

Fig. 4 gives the evolution versus time of both the measured conductivity and the modelled tracer concentration at the plot outlet for injection point D and the four different models. Optimised parameter values are summarized in the first column of Table 5. The calibrated friction factor f for DW's model is equal to 0.1. As the tracer injected at D only travels in zones where water depth is large, the friction factor modelled with Lawrence's model is given by Eq. (3) and does not depend on the percentage cover P . In Fig. 4(b), the percentage cover is fixed to 30% and three various values of the characteristic roughness h_c are investigated. The best agreement with experimental measurements is obtained with $h_c = 0.5$ mm. This h_c value is two times larger than the value deduced from d_{90} and used in the previous section to model local velocities but is comparable with the calculated Random Roughness of the plot. Roughness is not only determined by the largest sand particles but also by the microtopography formed at the plot surface by previous rainfalls, such as very small furrows of millimetric mean depth.

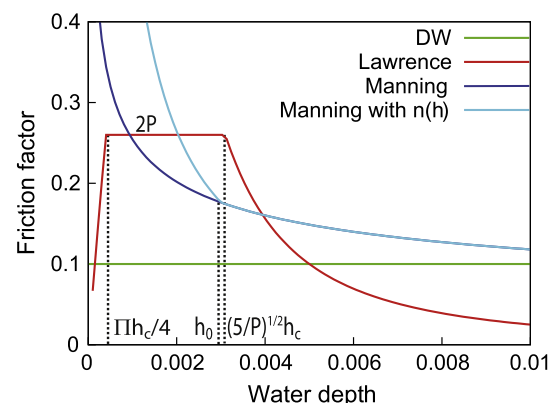


Fig. 5. Friction factor as a function of water depth according to Darcy-Weisbach's model with $f = 0.1$ (green curve), Lawrence's model with $P = 13\%$ and $h_c = 0.5$ mm (red curve), Manning's model with $n = 0.018$ (blue curve) and Manning's model with $n(h)$ given by Eq. (6) with $n_0 = 0.018$, $h_0 = 3$ mm and $\varepsilon = 1/3$.

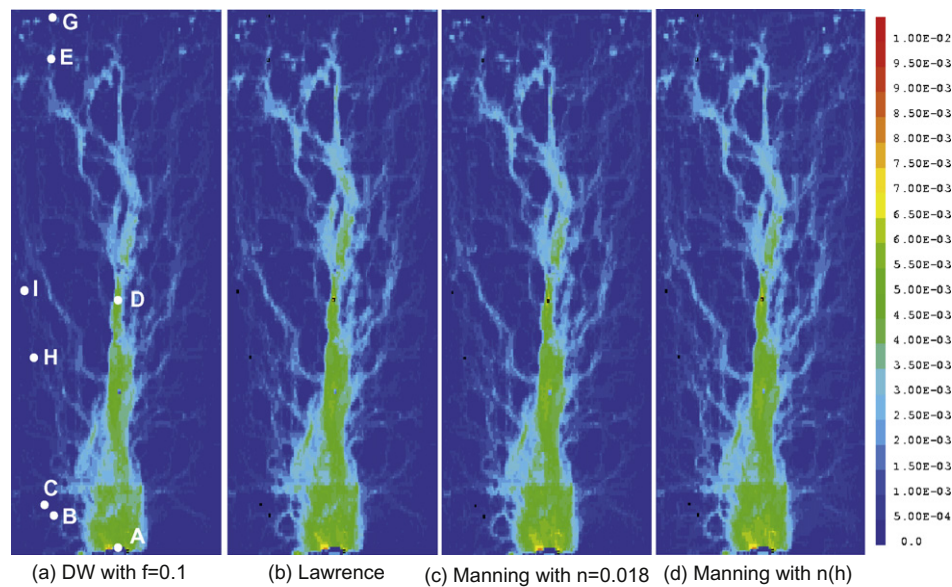


Fig. 6. Water depth (m) calculated with (a) Darcy-Weisbach's model with f constant equal to 0.1; (b) Lawrence's model with $P = 13\%$ and $h_c = 0.5$ mm. (c) Manning's model with n constant equal to 0.018; (d) Manning's model with $n(h)$ given by Eq. (6) with $n_0 = 0.018$, $h_0 = 3$ mm and $\varepsilon = 1/3$.

Calibration of Manning's coefficients gives $n = 0.018$ in the case of a constant n (Fig. 4c) and $n_0 = 0.018$ in the case of the variable $n(h)$ (Fig. 4d). These values are the same because in the main rill where the water depth is high, $n(h)$ reaches the threshold value n_0 . Because of the experiment calendar (Table 2), the soil during the tracer experiment may be less compacted than during the velocity experiment. Moreover, successive intensive rainfalls may have crusted the soil surface. Whatever the cause, the hydrograph rise was steeper in the velocity experiment than in the tracer experiment (Weill, 2007). As a consequence, friction factors have likely been higher during the tracer experiment than during the velocity experiment. This conjecture is consistent with Sepaskhah and Bondar (2002) who estimated the Manning roughness coefficient n for bare furrows irrigation. They showed that n was correlated with the number of irrigation and the inflow rates and decreased by about 60–70% after only three irrigations.

3.2.2. Flow characteristics

Fig. 5 gives friction factors as a function of water depth for the four following calculations: DW's model with $f = 0.1$, Lawrence's model with f given by Eqs. (2)–(4) with $P = 13\%$ and $h_c = 0.5$ mm, Manning's model with $n = 0.018$ and f defined as $8gn^2h^{-1/3}$ and Manning's model with $n(h)$ given by Eq. (6) with $n_0 = 0.018$, $h_0 = 3$ mm and $\varepsilon = 1/3$. Figs. 6–9 show the spatial distributions of water depth, friction coefficient, velocity and flux obtained with the four models. Patterns in the water depth maps are quite similar and exhibit a large main channel at the middle of the plot where several lateral smaller rills or furrows converge (see Fig. 6). As the various parameters of the four models were calibrated from the breakthrough curve for injection point D, which was located in the main channel, where the water depth lies between 3 and 7 mm (Fig. 6), the friction factor values are quite similar and approximately equal to 0.1 for this range of h (Figs. 5 and 7). On the contrary, for water depth less than 3 mm, friction coefficient values are much more variable. As quantitatively shown in Fig. 5 and illustrated in Fig. 7, the friction map obtained with Manning's model with $n(h)$ is very contrasted and exhibits very high values outside the rills. According to Figs. 7 and 8, the greater roughness, the smaller velocity.

These steady-state flows have been used to calculate the transport of tracer injected at various points noted D, E, G, H and I in Fig. 6.

3.2.3. Breakthrough curves

Figs. 10–13 give the tracer breakthrough curves. For each model, except for the Manning's model with $n(h)$, we did not succeed to simulate the five tracer experiments with the same set of parameters. Fig. 10 gives the results obtained with Darcy-Weisbach's model with four friction factor f values: $f = 0.1, 0.2, 0.4$ and 0.6 . Tracer simulated with DW's model with $f = 0.1$ always travels faster than the tracer simulated with $f = 0.2, 0.4$ or 0.6 . This result reflects the simple fact that the greater the roughness, the slower the velocity, and consequently, the slower the tracer. Table 6 gives the tracer arrival time at the plot outlet for the injection points D, E, G, I and H. The three values correspond to the time at which the arrived mass reached 1%, the mass flux was maximum, and the arrived mass reached 99%, respectively. Table 6 shows how strong is the impact of roughness on the arrival time of the tracer at the bottom of the plot. As already presented in Fig. 4, the tracer injected in the main channel at point D was correctly simulated with $f = 0.1$ (red curves⁴ in Fig. 10). A value $f = 0.2$ allowed to simulate the breakthrough curve for injection point E (green curves in Fig. 10). As points D and E are located in the main rill, the tracer injected at D or at E mainly travels within areas of high velocity and large water depth. Consequently, the transport of the tracer injected at D and E is better modelled with models having a low friction factor. Oppositely, low value of the friction factor is inappropriate for injections made outside the main rill. Since points G and I are located at source points of runoff, the tracer injected there was firstly transported by very slow flow, then gradually swept along into deeper runoff pathways. Fig. 10 shows that constant friction factor $f = 0.1$ led the tracer injected outside the main rill to travel too fast. Correct values of f for injection points G, I and H (i.e. the upper points) ranged between 0.4 and 0.6.

Similar results were obtained with Manning's model with a constant n . As shown in Fig. 11, the lowest value $n = 0.018$ correctly

⁴ For interpretation of colour in Figs. 5, 10–13, the reader is referred to the web version of this article.

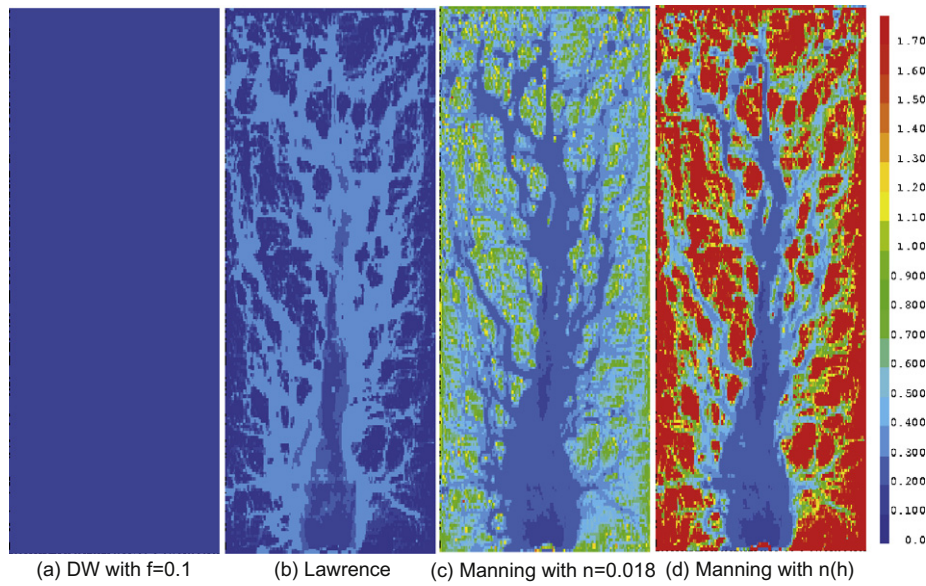


Fig. 7. Friction coefficient calculated with (a) Darcy-Weisbach's model with f constant equal to 0.1; (b) Lawrence's model with $P = 13\%$ and $h_c = 0.5$ mm. (c) Manning's model with n constant equal to 0.018; (d) Manning's model with $n(h)$ given by Eq. (6) with $n_0 = 0.018$, $h_0 = 3$ mm and $\varepsilon = 1/3$.

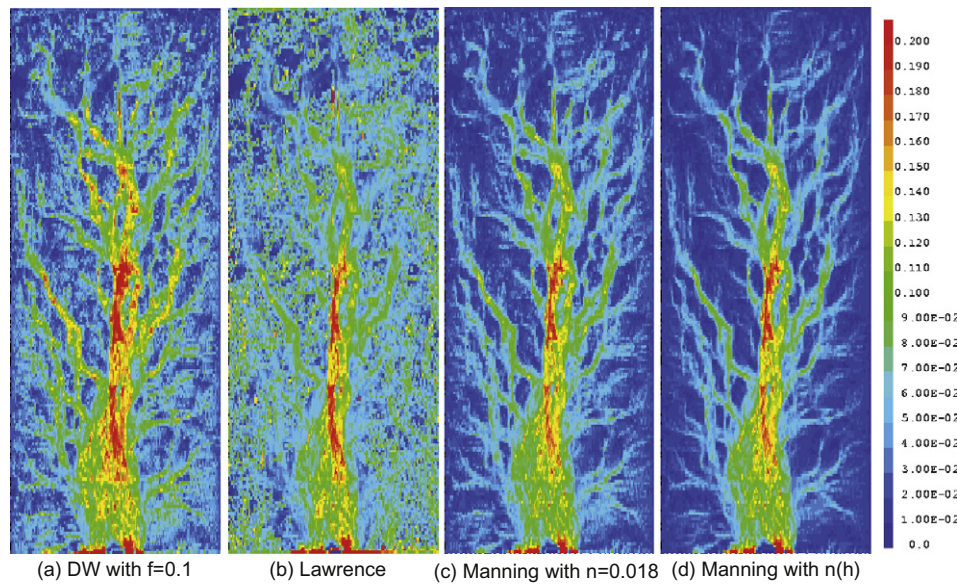


Fig. 8. Velocity (m s^{-1}) calculated with (a) Darcy-Weisbach's model with f constant equal to 0.1; (b) Lawrence's model with $P = 13\%$ and $h_c = 0.5$ mm. (c) Manning's model with n constant equal to 0.018; (d) Manning's model with $n(h)$ given by Eq. (6) with $n_0 = 0.018$, $h_0 = 3$ mm and $\varepsilon = 1/3$.

simulated tracer experiments when the tracer was injected at D or at E (i.e. in the channel) but higher values of n were necessary when the tracer was injected at G and I ($n = 0.025$) or at H ($n = 0.03$). According to Katul et al. (2002) and as done for example in (Thompson et al., 2010), if we assume that the resistance to the flow can be parametrized by relating the microtopography to the momentum roughness height (z_0), the Manning's friction factor n is estimated according to Eq. (5). For $0.5 \text{ mm} < z_0 < 2.5 \text{ mm}$, we obtain $0.02 < n < 0.025$. This range of values for n is consistent with values obtained from calibration.

Fig. 12 gives breakthrough curves obtained with Lawrence's model. With a characteristic roughness scale h_c fixed to the value of 0.5 mm deduced from calibration at point D (Fig. 4), fractional cover P value had to be taken equal to 13%, 30%, 30% and 100% to correctly simulate the tracer behaviour when injected at E, G, I and H, respectively.

Fig. 13 gives breakthrough curves obtained with Manning's model with a variable $n(h)$. Numerical simulations were performed with h_c and ε values calibrated from surface runoff experiment ($h_c = 3$ mm and $\varepsilon = 1/3$ in Fig. 2d) and the n_0 value calibrated from the breakthrough curve for injection point D ($n_0 = 0.018$ in Fig. 4d). Let us notice here that as good results were qualitatively obtained with $h_0 = 2$ mm, $n_0 = 0.018$ and $\varepsilon = 0.66$. We did not try to solve this problem of equifinality and selected the more coherent values.

3.2.4. Mass recovery

Table 7 gives the mass-recovery percentage of tracer measured at the plot outlet for tracers injected at points D, E, G, I and H. Bold underlined values correspond to sets of model parameters which gave the best fits of tracer breakthrough curves. Whatever the model used, calibrated results are consistent with experimental data: the relative error is about 10% for tracer injected in the main

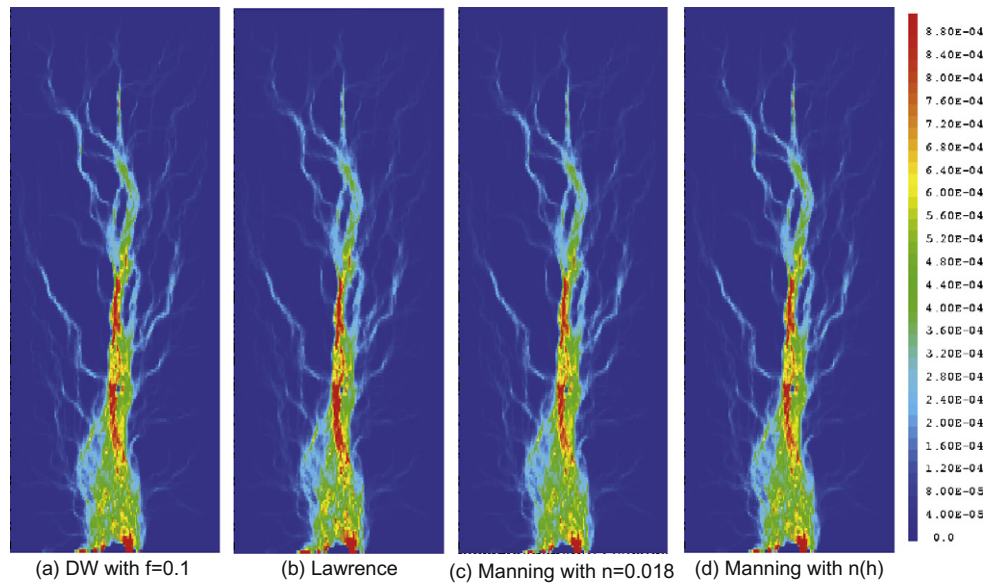


Fig. 9. Flux hu ($\text{m}^2 \text{s}^{-1}$) calculated with (a) Darcy-Weisbach's model with f constant equal to 0.1; (b) Lawrence's model with $P = 13\%$ and $h_c = 0.5$ mm. (c) Manning's model with n constant equal to 0.018; (d) Manning's model with $n(h)$ given by Eq. (6) with $n_0 = 0.018$, $h_0 = 3$ mm and $\varepsilon = 1/3$.

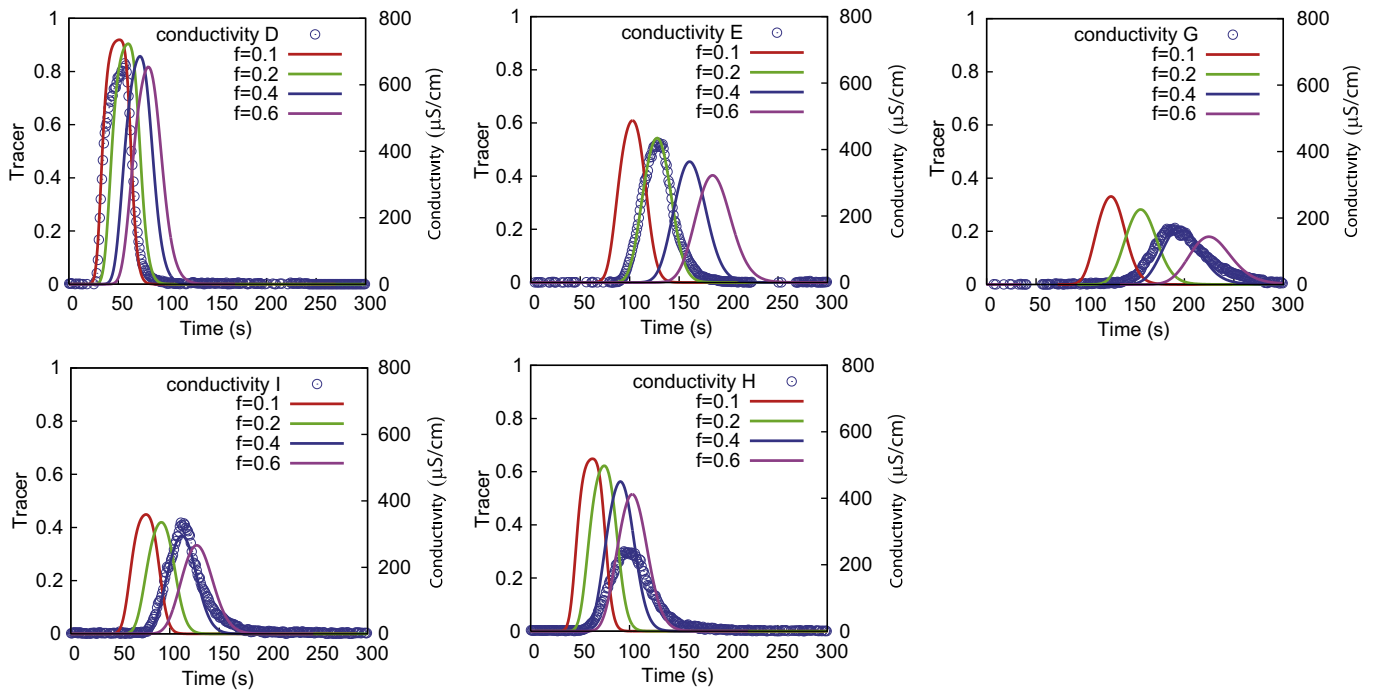


Fig. 10. Breakthrough curves of tracer injected at points D, E, G, I, H. Conductivity data (blue dots) and calibration with Darcy-Weisbach's model with four various constant f values: $f = 0.1$ (red curves), $f = 0.2$ (green curves), $f = 0.4$ (blue curves) and $f = 0.6$ (pink curves).

channel (points D and E) and 20% for the other cases (points G and I). Numerical simulations performed with a coarse DEM ($10 \times 10 \text{ cm}^2$ instead of $2.5 \times 5 \text{ cm}^2$) demonstrated the sensibility of breakthrough curve to the grid cell size. This dependency is even stronger when the tracer is injected outside the main channel (i.e. at points G, H and I).

4. Discussion

As already mentioned and discussed in (Tatard et al., 2008), the classical DW and Manning-type equations with constant friction

slope parameters better model low velocities than higher ones and Tatard et al. (2008) used spatially variable values of the DW friction factor f to enhance the high flow velocities (Fig. 3). This new f field was empirically calibrated against measurements. In our work, we use the heuristic physical model of Lawrence (1997) and the Manning's model with $n(h)$ which both give a spatially variable friction factor (see Eqs. (2)–(4) and Eq. (6)). Fig. 2 shows that the discrepancy between models and measurements at high velocities is globally reduced when the friction slope is modelled according to Lawrence's model or Manning's model with $n(h)$. Furthermore, numerical results are better than those obtained with a heuristic friction coefficient (see Table 4). These results

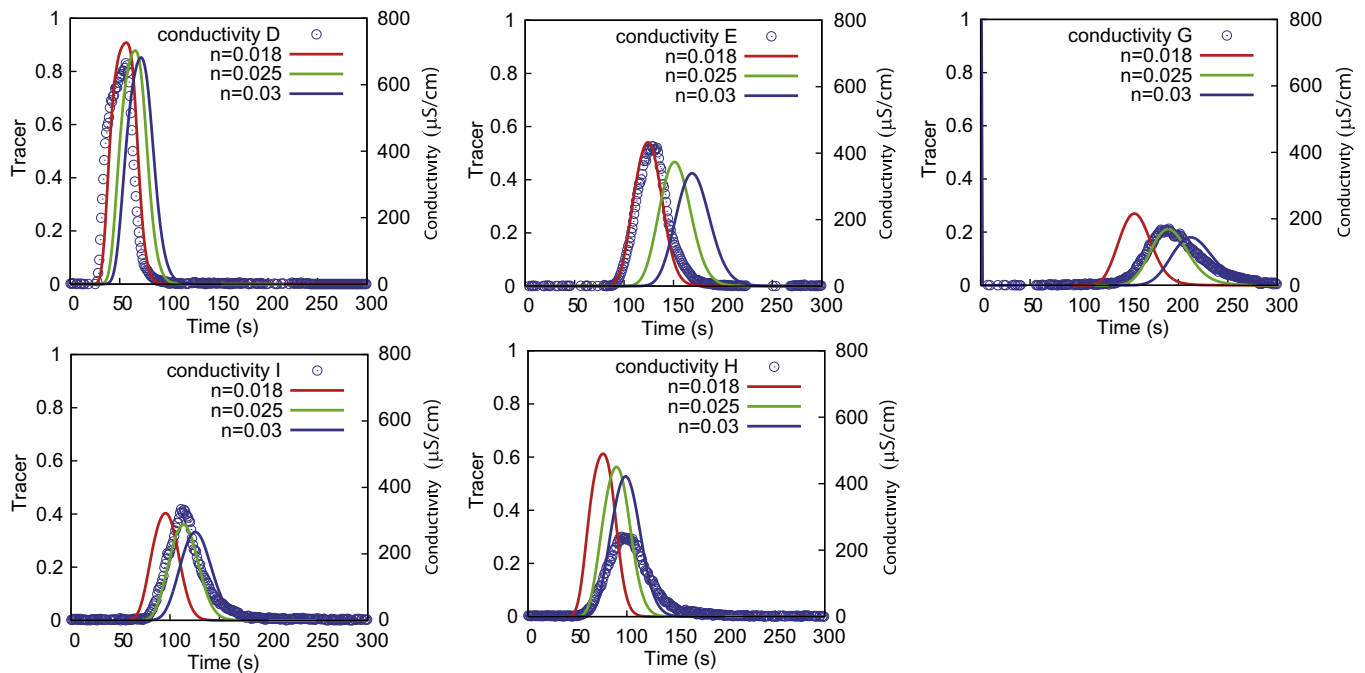


Fig. 11. Breakthrough curves of tracer injected at points D, E, G, I, H. Conductivity data (blue dots) and calibration with Manning's model with three various constant n values: $n = 0.018$ (red curves), $n = 0.025$ (green curves) and $n = 0.03$ (blue curves).

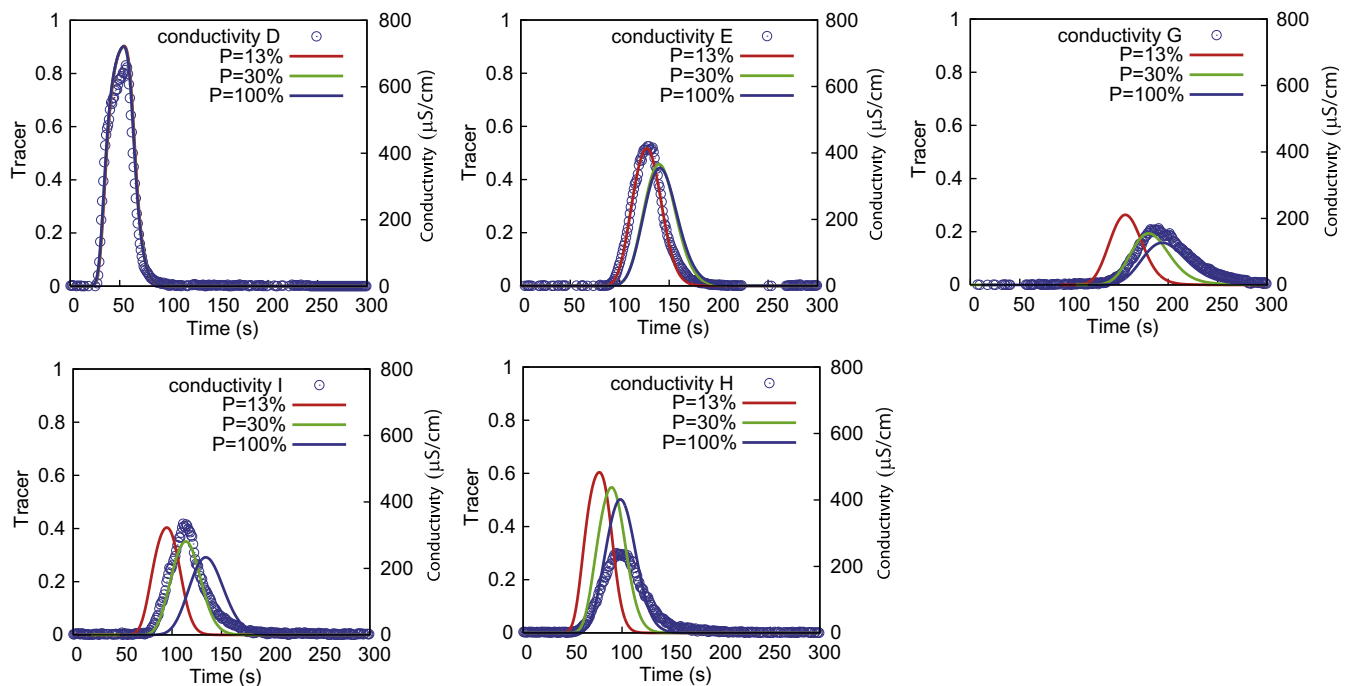


Fig. 12. Breakthrough curves of tracer injected at points D, E, G, I, H. Conductivity data (blue dots) and calibration with Lawrence's model with three various P values: $P = 13\%$ (red curves), $P = 30\%$ (green curves) and $P = 100\%$ (blue curves).

confirm the importance of considering a water-depth dependent friction factor or Manning coefficient in order to correctly simulate local flow velocities. In particular, it enhances the good behaviour of Manning's model with a roughness coefficient decreasing as a power law of the runoff water depth.

Modelling of transport experiment shows that the behaviour of DW's and Manning's models with constant parameters is consistent with results obtained from high-resolution velocity

measurements. These have shown that these models are not adequate to model both low and high velocities. The higher the roughness coefficients (f or n), the higher the arrival time of the tracer at the bottom of the plot (see Table 6). It is however interesting to calibrate each transport experiment independently to each other, and to analyze the expected discrepancy between the calibrated friction factors. The results of this numerical experiment are presented in Figs. 10 and 11, which show that satisfying results (although

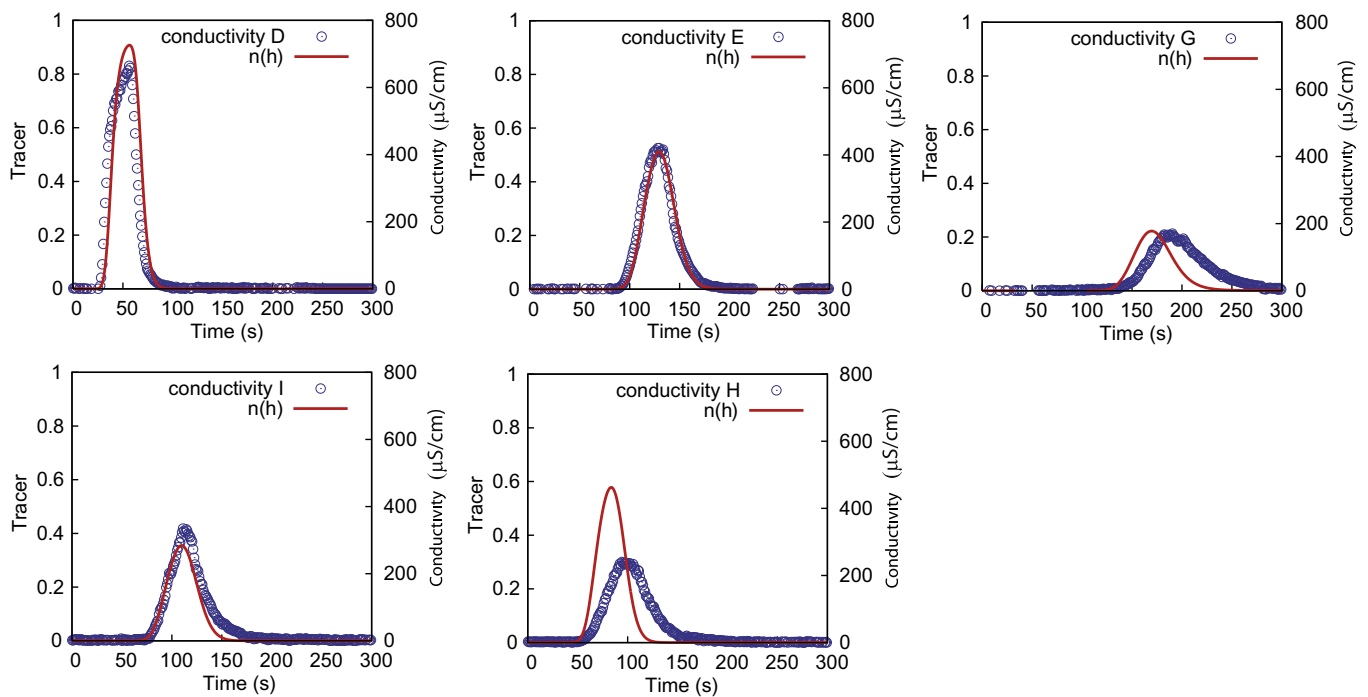


Fig. 13. Breakthrough curves of tracer injected at points D, E, G, I, H. Conductivity data (blue dots) and calibration with Manning's model with $n(h) = 0.018(h/0.003)^{-1/3}$.

Table 6

Tracer arrival time at the plot outlet for the injection points D, E, G, I and H. In each cell of the table the three values correspond to the time at which the arrived mass reached 1%, the mass flux was maximum, and the arrived mass reached 99%, respectively. Bold and underlined values correspond to the best calibrated parameter values.

	Injection at D	Injection at E	Injection at G	Injection at I	Injection at H
Experiment	<u>27-56-91</u>	<u>92-129-180</u>	<u>138-182-280</u>	<u>78-111-180</u>	<u>56-98-180</u>
Darcy-Weisbach					
$f = 0.1$	<u>24-51-78</u>	71-103-137	93-126-165	48-76-105	35-63-90
$f = 0.2$	31-60-91	<u>93-128-168</u>	119-156-201	61-92-125	44-74-107
$f = 0.4$	41-72-110	121-161-209	<u>155-196-250</u>	<u>78-112-152</u>	57-91-130
$f = 0.6$	47-80-123	141-184-238	180-225-286	90-127-172	<u>66-103-147</u>
Lawrence					
$h_c = 0.5$ mm, $P = 13\%$	<u>25-54-86</u>	<u>92-127-170</u>	120-157-204	63-95-129	46-77-111
$h_c = 0.5$ mm, $P = 30\%$	25-54-87	101-140-189	<u>140-180-239</u>	<u>79-114-155</u>	56-89-130
$h_c = 0.5$ mm, $P = 100\%$	25-54-87	101-141-194	150-194-261	95-134-182	<u>62-98-126</u>
Manning					
$n = 0.018$	<u>28-57-86</u>	<u>89-124-165</u>	119-155-203	64-96-130	46-76-109
$n = 0.025$	35-66-100	112-151-198	<u>149-190-245</u>	<u>79-114-154</u>	56-90-128
$n = 0.03$	41-72-110	128-169-221	169-212-273	90-126-169	<u>64-99-141</u>
Manning with $n(h)$ $n_0 = 0.018$, $h_0 = 3$ mm, $e = 1/3$	<u>28-57-87</u>	<u>93-129-174</u>	<u>130-170-226</u>	<u>75-110-151</u>	<u>51-84-121</u>

with parameters not consistent to each other) can be obtained this way. With such parameter values, the average behaviour such as the tracer arrival time and the shape of the breakthrough curve is correct although local characteristics of the flow such as local water depth and local velocity are very likely incorrect. The constant parameter of these models (f for Darcy-Weisbach and n for Manning) allows to model a mean roughness that the tracer encounters along its travel path on the plot surface.

Numerical results obtained with Lawrence's model are more surprising (Fig. 12). On the one hand, calibrated surface-runoff experiment from Lawrence's model are better than those from Darcy-Weisbach's or Manning's models (Fig. 2). On the other hand, here again, a same set of parameters does not allow to simulate the entire set of transport experiments, hence setting the Lawrence model back to the same level as those with constant roughness. Furthermore, DW's and Manning's models have only a single

parameter to calibrate while Lawrence's model has two. All of them need a specific set of parameters according to whether tracer is injected in a channel or not. The poor fit of Lawrence's model may be explained by the fact that the tracer travels in zones where, due to the presence of rills of various sizes and depths, roughness varies a lot. The correct simulation of several tracer breakthrough curves with the same flow field implies a good simulation of both velocity and water depth along all the tracer travel path. In Lawrence's heuristic model, soil surface is assumed homogeneous with larger particles periodically distributed. As shown in (Lawrence, 1997), when applied to experimental data, this model exhibits a similar behaviour in average, although with a significant level of scattering. It was also shown that the assumption of individual hemispherical roughness elements relatively uniform in size randomly distributed on a flat surface did not apply to tilled soil surfaces (Takken and Govers, 2000).

Table 7

Mass recovery percentage at the plot outlet for the injection points D, E, G, I and H. Bold and underlined values correspond to best calibrated parameter values.

	Injection at D	Injection at E	Injection at G	Injection at I	Injection at H
Experiment	82	57	44	53	50
Darcy-Weisbach					
$f = 0.1$	<u>92</u>	65	39	46	65
$f = 0.2$	92	<u>63</u>	37	45	65
$f = 0.4$	91	61	<u>34</u>	<u>44</u>	64
$f = 0.6$	91	59	32	43	<u>63</u>
Lawrence					
$h_c = 0.5$ mm, $P = 13\%$	<u>92</u>	<u>62</u>	36	44	64
$h_c = 0.5$ mm, $P = 30\%$	93	62	<u>32</u>	<u>43</u>	63
$h_c = 0.5$ mm, $P = 100\%$	93	63	30	42	<u>63</u>
Manning					
$n = 0.018$	<u>92</u>	<u>63</u>	37	45	64
$n = 0.025$	92	61	<u>34</u>	<u>44</u>	64
$n = 0.03$	91	60	32	43	<u>63</u>
Manning with $n(h)$					
$n_0 = 0.018$, $h_0 = 3$ mm, $\varepsilon = 1/3$	<u>92</u>	<u>63</u>	<u>35</u>	<u>44</u>	<u>64</u>

Behaviour of Manning's model with a variable $n(h)$ is rather different. Fig. 13 shows that, contrarily to other models, a same set of parameters gives acceptable numerical tracer breakthrough curves whatever the point of injection (except point H). When the tracer is injected in the main channel, it only travels in zones where water depth is higher than h_c : the model behaves like the Manning's model with a constant n equal to 0.018 (see injection at points D and E in Figs. 11 and 13). On the contrary, for injections at G or at I, the tracer encounters various water depths and consequently various soil roughnesses along its travel path.

Whatever the model considered, we did not succeed in simulating the shape of the breakthrough curve for injection point H. We noticed that discrepancy between numerical and experimental results increases with a coarser numerical grid (10×10 cm² cells instead of 2.5×2.5 cm² cells). So, discrepancy should be attributed to the use of a not enough precise DEM in this zone.

We can notice here that measured breakthrough curves are slightly asymmetric, which was not captured by the models. Asymmetry is mainly due to tracer dispersion. This dispersion can be heterogeneous on the plot. In the transport model, longitudinal and transversal coefficients of dispersion are assumed uniform and constant all over the domain (equal to 0.01 m). Furthermore, infiltration is modelled as a uniform and constant sink term: water which infiltrates is lost for the system.

Tables 6 and 7 show that arrival time of tracer I is shorter than arrival time of tracer E, but its mass recovery is lower. This is due to the fact that tracer injected at I, which is a point located out of main rills, is first transported by dramatically shallow water, and consequently submitted to a great loss of mass by infiltration. Indeed, in a shallow runoff layer the flow velocity is low and the tracer depth-averaged concentration is high, whereas in a thick runoff layer reversed conditions occur. This explains why one can expect higher mass loss in small lateral rills than in the main channel. Table 7 also shows that tracer mass recoveries simulated for a given injection point are very consistent throughout simulations, disregarding the model used and its roughness parameter, with the exception of point G. This observation may be explained by a simple model, given in Appendix A, of a flat plot soil surface with constant slope and steady state runoff. We show there that the tracer mass $M(t)$ is given by:

$$M(t)/M_0 = (X(t, x_0)/x_0)^{-1/(R-I)}, \quad (20)$$

where $X(t, x_0)$ is the position of the tracer injected at time $t = 0$ and point $x = x_0$ (the origin of x is chosen at the top of the plot). This expression shows that in this simplified runoff configuration, the mass of tracer which arrives at a given distance of the injection point is independent of the law which relates runoff velocity to runoff height, while it only depends on the rainfall rate R and the infiltration rate I , equal to 75 mm h^{-1} and 26 mm h^{-1} , respectively. In the case of injection at point D located at 5.31 m from the top of the plot where the runoff has its source, Eq. (20) gives a percentage of tracer arrived at the bottom of the plot ($X = 10$ m) equal to 71%. This value is less than the 81% obtained from measurements because on the real soil surface, all the water which transports the tracer does not flow only in the main channel where the tracer is injected but also arrives from lateral small rills. Tracer is then more diluted in the real 3D experiment than in the academic configuration presented in Appendix A. Consequently, less tracer is lost by infiltration. According to Eq. (A10) in Appendix A, tracer loss can also be written as a function of the flux hu alone. As can be seen in Fig. 9, runoff fluxes hu computed from the four models, each calibrated on breakthrough curve D, are very similar. This explains why mass recovery of each tracer does not depend a lot neither on the model nor on its parameters.

5. Conclusion

This work was based on a series of two rainfall simulation experiments which provided, for the first time at this scale (10-m by 4-m) both high-resolution flow-velocity data (the runoff experiment) and breakthrough curves of tracer injected at several locations (the transport experiment). This dataset has been used to test the four following roughness models:

- Darcy-Weisbach's model characterized by a constant friction factor f .
- Lawrence's model characterized by a characteristic roughness scale h_c and a fractional cover P .
- Manning's model with a constant roughness coefficient characterized by a constant Manning's coefficient n .
- Manning's model with a variable roughness coefficient, characterized by a Manning's water-depth dependent coefficient $n(h)$.

The four models were first tested against local flow-velocity measurements (already simulated by Tatard et al., 2008, with another code). As already mentioned by these authors, models with a constant friction factor largely underestimate high velocities. Oppositely, the heuristic Lawrence's model which intrinsically takes into account the dependence of friction factor with water depth, correctly simulates low and high velocities. Furthermore, the calibration of the Lawrence's model parameters led to values in perfect coherence with measurable characteristics of the soil of the plot: the characteristic roughness scale h_c corresponds to the d_{90} value of the soil granulometry, and the fractional cover P of the model corresponds to the percentage of large grains of sand. Best results, however, were obtained with Manning's model with a water-depth dependent roughness coefficient. With this model, simulation of both low and high velocities was better than from the other tested models, as well as those previously published in Tatard et al. (2008).

Calibration on the transport experiment confirmed the necessity of roughness models with variable parameters: Darcy-Weisbach's model with constant friction factor and Manning's model with constant roughness coefficient required different parameterisation for different injection points, which is not satisfying. Quite surprisingly, Lawrence's model did not succeed better than the constant-roughness models at modelling all tracer experiments

with the same set of parameters. This result shows that even if a model can correctly simulate low and high local velocities, it still can give unsatisfactory results for tracer transport. Manning's model with a roughness coefficient decreasing as a power law of water depth leads to the best calibration. This model allowed to simulate all breakthrough curves with the same set of parameters and results are almost as good as those obtained with the three other models calibrated for each injection point. Furthermore, the set of parameters used to model transport experiments is the same as the set used to model runoff experiments, except the minimum roughness coefficient which is less in the surface runoff experiments. This calibration result is consistent with field evidence of plot surface smoothing between the two experiments.

When tracer is injected in the main rills of the flow pattern, tracer mass recoveries are in good agreement with measurements and seem to be independent of friction laws. This result is confirmed by a simple model showing that the mass decrease of a non reactive tracer transported in the runoff water depth does not depend on the law which relates runoff velocity to runoff water depth.

All these conclusions are drawn for a steady flow. In the case of unsteady rainfall and/or infiltration, the entire wetted surface area can vary with time. As a consequence, flow resistance will vary both with space and time.

Velocity measurements and tracer breakthrough curves performed at the plot scale and presented in (Tatard et al., 2008) and in this paper can be used as benchmarks for overland flow and transport models.

Acknowledgments

The modelling part of the research was conducted at the Commissariat à l'Energie Atomique (CEA, Gif-sur-Yvette). Authors acknowledge Guillaume Nord, from the Laboratoire d'étude des Transferts en Hydrologie et Environnement (LTHE, Grenoble) for fruitful discussions about friction laws. The experimental part was granted by the RIDES project, an ECCO research program, and was hosted by the Ecole Nationale Supérieure d'Agriculture (ENSA) of Thies, Senegal. Authors acknowledge Thierry Bariac, from the laboratory Biogéochimie et Ecologie des Milieux Continentaux (BIOEMCO, Paris), for decisive advices and for putting his isotopic laboratory at our disposal for ^{18}O and ^2H analysis. Authors also acknowledge Kokou Abotsi Mensah, from the Institut de Recherche pour le Développement (IRD, Senegal), who built the rainfall simulator. Mbolanoro Rajoelisoa and Lucille Tatard, as Master trainees, did the preliminary data processing of the tracer experiment and preliminary modelling of the runoff experiment, respectively.

Appendix A. Non reactive tracer transport in runoff water depth

Let us study the transport of a non reactive tracer in runoff water produced by a constant rainfall on a 2D soil vertical cut with a constant slope (see Fig. A1).

The runoff water depth $h(x,t)$ is governed by the following water mass balance equation

$$\frac{\partial h}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x}(hu) = R - I, \quad (\text{A1})$$

where $u(x,t)$ is the runoff velocity, R , the recharge and $I(t)$, the infiltration rate. The axis x is aligned with the soil surface.

After integration along the z -axis, the transport equation governing tracer concentration $c(x,t)$ is given by the following depth-averaged equation:

$$\frac{\partial(hc)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x}(huc) = -Ic, \quad (\text{A2})$$

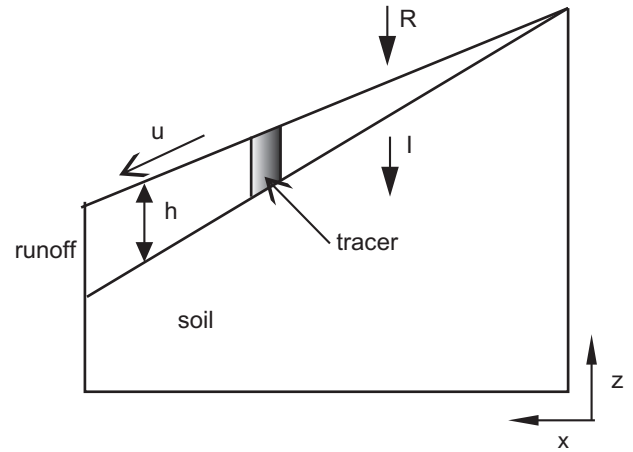


Fig. A1. Sketch of the studied configuration.

where advection is the only transport mechanism taken into account. We assume that vertical mixing of the tracer is instantaneous: concentration is at any time constant along runoff water depth. When runoff steady state is reached, the infiltration rate I becomes constant with time and Eq. (A1) reduces to:

$$hu = (R - I)x. \quad (\text{A3})$$

The transport equation reads:

$$h \frac{\partial c}{\partial t} + hu \frac{\partial c}{\partial x} + Rc = 0. \quad (\text{A4})$$

If a mass M_0 of tracer is injected at the initial time $t = t_0$ at the point $x = x_0$, we can write:

$$c(x, t = 0) = \frac{M_0}{h_0} \delta(x - x_0), \quad (\text{A5})$$

where $h_0 = h(x_0)$. Then the concentration $c(x,t)$ at time t and at the position x is:

$$c(x, t) = \frac{M(t)}{h(X(t, x_0))} \delta(x - X(t, x_0)), \quad (\text{A6})$$

where $X(t, x_0)$ is the tracer position at time t and $M(t)$ is the mass of tracer at that time. As the tracer penetrates into the soil with infiltration water the total mass $M(t)$ decreases with time. This mass is obtained by spatial integration of the transport equation (A1):

$$\int_0^L \frac{\partial(hc)}{\partial t} dx + \int_0^L \frac{\partial}{\partial x}(huc) dx = -I \int_0^L c dx, \quad (\text{A7})$$

where L is the length of the soil surface. Eqs. (A6) and (A7) give:

$$\frac{dM(t)}{dt} = -I \frac{M(t)}{h(X(t, x_0))}, \quad (\text{A8})$$

which can be written as:

$$\frac{dM}{M} = -\frac{I}{h(X)} dt = -\frac{I}{h(X)} \frac{dt}{dX} dX = -\frac{I}{h(X)u(X)} dX. \quad (\text{A9})$$

As a consequence, we have:

$$\frac{M(t)}{M_0} = \exp \left(- \int_{x_0}^X \frac{I}{h(x)u(x)} dx \right). \quad (\text{A10})$$

According to Eq. (A3) which gives the velocity u , we may rewrite Eq. (A9) as follows:

$$\frac{dM}{M} = -\frac{I}{(R - I)X} dX. \quad (\text{A11})$$

After integration, we obtain the final result:

$$M(t)/M_0 = (X(t, x_0)/x_0)^{-1/(R-I)}, \quad (\text{A12})$$

which is independent of the law relating the runoff velocity u to the runoff water depth h .

References

- Abrahams, A.D., Parsons, A.J., Luk, S.-H., 1986. Resistance to overland flow on desert hillslopes. *J. Hydrol.* 88, 343–363.
- Andersson, P., Byegard, J., Tullborg, E.-L., Doe, T., Hermanson, J., Winberg, A., 2004. In situ tracer tests to determine retention properties of a block scale fracture network in granitic rock at the Äspö Hard Rock Laboratory, Sweden. *J. Contam. Hydrol.* 70, 271–297.
- Bear, J., Tsang, C.F., de Marsily, G., 1993. Flow and Contaminant Transport in Fractured Rock. Academic Press, San Diego, CA (United States).
- Bernard-Michel, G., Le Potier, C., Beccantini, A., Gounand, S., Chraïbi, M., 2004. The Andra Couplex 1 test case: comparisons between finite-element, mixed hybrid finite element and finite volume element discretizations. *Comput. Geosci.* 8, 187–201.
- Chow, V.T., Maidment, D.R., Mays, L.W., 1988. Applied Hydrology. McGraw-Hill, New-York (NY, USA), 572p.
- Dabbene, F., 1998. Mixed hybrid finite elements for transport of pollutants by underground water. In: Proceedings of the 10th Int. Conf. on Finite Elements in Fluids, Tucson, USA.
- Darboux F., 2011. Personal communication.
- De Roo, A.P.J., Hazelhoff, L., Burrough, P.A., 1989. Soil erosion modelling using «ANSWERS» and geographical information systems. *Earth Surf. Process. Land.* 14, 517–532.
- Esteves, M., Planchon, O., Lapetite, J.M., Silvera, N., Cadet, P., 2000a. The 'EMIRE' large rainfall simulator: design and field testing. *Earth Surf. Process. Land.* 25, 681–690.
- Esteves, M., Faucher, X., Galle, S., Vauclin, M., 2000b. Overland flow and infiltration modelling for small plots during unsteady rain: numerical results versus observed values. *J. Hydrol.* 228, 265–282.
- Grisak, G.E., Pickens, J.F., 1981. An analytical solution for solute transport through fractured media with matrix diffusion. *J. Hydrol.* 52, 47–57.
- Jain, M.K., Kothiyari, U.C., Ranga Raju, K.G., 2004. A GIS distributed rainfall–runoff model. *J. Hydrol.* 299, 107–135.
- Jain, M.K., Singh, V.P., 2005. DEM-based modelling of surface runoff using diffusion wave equation. *J. Hydrol.* 302, 107–126.
- Kadlec, R.H., 1990. Overland flows in wetlands: vegetation resistance. *J. Hydraul. Eng.* 116 (5), 691–706.
- Katul, G., Wiberg, P., Albertson, J., Hornberger, G., 2002. A mixing layer theory for flow resistance in shallow streams. *Water Resour. Res.* 38 (11), 1250. doi:10.1029/2001WR000817.
- Kirby, M.J., 1978. Hillslope Hydrology. Wiley, New York.
- Lawrence, D.S.L., 1997. Macroscale surface roughness and frictional resistance in overland flow. *Earth Surf. Process. Land.* 22, 365–382.
- Lawrence, D.S.L., 2000. Hydraulic resistance in overland flow during partial and marginal surface inundation: experimental observations and modeling. *Water Resour. Res.* 36 (8), 2381–2393.
- McGuire, K.J., Weiler, M., McDonnell, J.J., 2007. Integrating tracer experiments with modeling to assess runoff processes and water transit times. *Adv. Water Resour.* 30, 824–837.
- Morris, E.M., Woolhiser, D.A., 1980. Unsteady one-dimensional flow over a plane: partial equilibrium and recession hydrographs. *Water Resour. Res.* 16 (2), 355–360.
- Mouret, G., 1921. Antoine chézy: history of a hydraulic formula (in French). *Ann. Ponts Chaussées* 61, 165–269.
- Moussa, R., Bocquillon, C., 1996. Criteria for the choice of flood-routing methods in natural channels. *J. Hydrol.* 186, 1–30.
- Moussa, R., Bocquillon, C., 2000. Approximation zones of the Saint-Venant equations for flood routing with overbank flow. *Hydrol. Earth Syst. Sci.* 4, 251–261.
- Pearson, C.P., 1989. One-dimensional flow over a plane: criteria for kinematic wave modelling. *J. Hydrol.* 111, 39–48.
- Planchon, O., Esteves, M., Silvera, N., Lapetite, J.-M., 2000. Raindrop erosion of tillage induced microrelief: possible use of the diffusion equation. *Soil Tillage Res.* 56, 131–144.
- Planchon, O., Esteves, M., Silvera, N., Lapetite, J.-M., 2001. Microrelief induced by tillage: measurement and modelling of surface storage capacity. *Catena* 46, 141–157.
- Planchon, O., Silvera, N., Gimenez, R., Favis-Mortlock, D., Wainwright, J., Le Bissonnais, Y., Govers, G., 2005. An automated salt-tracing gauge for flow-velocity measurement. *Earth Surf. Process. Land.* 30, 833–844.
- Rai, R.K., Upadhyay, Alka., Singh, V.P., 2010. Effect of variable roughness on runoff. *J. Hydrol.* 382, 115–127.
- Sepaskhah, A.R., Bondar, H., 2002. Estimation of Manning roughness coefficient for bare and vegetated furrow irrigation. *Biosyst. Eng.* 82 (3), 351–357.
- Singh, V.P., Aravamuthan, V., 1996. Errors of kinematic-wave and diffusion-wave approximations for steady-state overland flows. *Catena* 27, 209–227.
- Smith, M.W., Cox, N.J., Bracken, L.J., 2007. Applying flow resistance equations to overland flows. *Prog. Phys. Geogr.* 31, 363–387.
- Tatard, L., Planchon, O., Wainwright, J., Nord, G., Favis-Mortlock, D., Silvera, N., Ribolzi, O., Esteves, M., Huang, Chi.Hua., 2008. Measurement and modelling of high-resolution flow-velocity data under simulated rainfall on a low-slope sandy soil. *J. Hydrol.* 348, 1–12.
- Takken, I., Govers, G., 2000. Hydraulics of interrill overland flow on rough, bare soil surfaces. *Earth Surf. Process. Land.* 25, 1387–1402.
- Thompson, S.E., Katul, G.G., Porporato, A., 2010. Role of microtopography in rainfall–runoff partitioning: an analysis using idealized geometry. *Water Resour. Res.* 46, W07520. doi:10.1029/2009WR008835.
- Tsihrintzis, V.A., 2001. Discussion on Variation of roughness coefficients for unsubmerged and submerged vegetation. *Hydraul. Eng.* 2001, 241–245.
- Wasantha Lal, A.M., 1998. Weighted implicit finite-volume model for overland flow. *ASCE J. Hydraul. Eng.* 124, 941–950.
- Weill, S., 2007. Modélisation des échanges surface/subsurface à l'échelle de la parcelle par une approche darcéenne multidomaine. PhD thesis of École des Mines de Paris (France).
- Weill, S., Mouche, E., Patin, J., 2009. A generalized Richards equation for surface/subsurface flow modelling. *J. Hydrol.* 366, 9–20.
- Woolhiser, D.A., Liggett, J.A., 1967. Unsteady, one-dimensional flow over a plane – the rising hydrograph. *Water Resour. Res.* 3 (3), 753–771.
- Zhang, W., Cundy, T.W., 1989. Modeling of two-dimensional overland flow. *Water Resour. Res.* 25 (9), 2019–2035.
- Wu, F.-C., Shen, H.W., Chou, Y.-J., 1999. Variation of roughness coefficients for unsubmerged and submerged vegetation. *J. Hydraul. Eng.* 125 (9), 934–942.

Annexe D : Validation and use of a reactive transport code in porous media

Cette annexe présente l'article :

P. Montarnal, C. Mügler, J. Colin, M. Descostes. Validation and use of a reactive transport code in porous media. *Physics and Chemistry of the Earth* 32, 507-517, 2007.

Cet article illustre quelques applications du code ALLIANCES et vient en complément du §3.2.1 de la Partie 2 de ce mémoire.

Presentation and use of a reactive transport code in porous media

Ph. Montarnal ^{a,*}, C. Mügler ^a, J. Colin ^a, M. Descostes ^a, A. Dimier ^b, E. Jacquot ^b

^a Commissariat à l'Energie Atomique, Centre de Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France

^b Agence Nationale pour la gestion des Déchets Radioactifs, 1-7 rue Jean Monnet, 92298 Châtenay-Malabry Cedex, France

Received 19 April 2005; received in revised form 20 January 2006; accepted 28 January 2006

Available online 27 October 2006

Abstract

The safety assessment of nuclear waste disposals requires an accurate prediction of the radionuclides and chemical species migration through engineered barriers and geological media. It is therefore necessary to develop and assess qualified and validated tools which integrate both the transport mechanisms through the geological media and the chemical mechanisms governing the mobility of radionuclides. Such a reactive transport simulation tool has been developed in the context of the numerical software platform ALLIANCES. Different component codes are available: PHREEQC and CHESS for the chemical part, CAST3M, MT3D and TRACES for the transport part. A coupling scheme has already been implemented, qualified and validated on numerous configurations involving aqueous speciation, dissolution–precipitation, sorption and surface complexation.

Presently, the reactive transport numerical tool is used to simulate realistic configurations. This paper presents two of such applications: the migration of uranium in a soil with various redox conditions and the modelling of clay–cement interactions.

© 2006 Elsevier Ltd. All rights reserved.

Keywords: Reactive transport; Modelling; Uranium migration; Clay–cement interaction

1. Introduction

According to a law adopted by the French parliament in 1991, the French Nuclear Agency (CEA) and the French Agency in charge of the Management of Radioactive Waste (ANDRA) are responsible for the disposal and storage of nuclear waste and spent nuclear fuel in France. Various configurations of nuclear waste storage in deep geological formations have been studied since the law was adopted. In the near-field of a high-level radioactive waste (HLW) repository, coupled thermo-hydro-mechanical and chemical (T-H-M-C) processes will occur, involving processes such as heat generation and transport (due to radioactive decay of nuclear waste), infiltration of groundwater (hydrogeological processes), swelling pressure of buffer material due to saturation (mechanical processes) and chemical evolution of buffer material and porewater (chem-

ical processes). Laboratory and *in situ* experiments give access to short term evolutions. Natural analogue investigations give valuable informations for geochemical scenarios. Numerical simulation is required to quantify potential radioactive releases in a real situation. Therefore CEA, ANDRA and EDF are jointly developing the software platform ALLIANCES whose aim is to produce a tool for the simulation of nuclear waste storage and disposal repository. The goal of ALLIANCES (Montarnal et al., 2006) is to provide a working environment for the simulation and analysis of phenomena that must be taken into account for waste storage and disposal studies. ALLIANCES aim is not to develop a new scientific calculation code but a way to gather within the same simulation environment the already acquired knowledge and to gradually integrate the new one.

This paper presents the development and demonstration of the hydrogeochemical transport tool included in ALLIANCES. It is based on operator splitting and solves iteratively a geochemical model and a transport model. After a brief description of the physical and numerical

* Corresponding author. Tel.: +33 1 69 08 25 75; fax: +33 1 69 08 52 42.
E-mail address: philippe.montarnal@cea.fr (Ph. Montarnal).

models and of their validation, we focus here on two applications of the code. The first one deals with the migration of uranium in a soil with various redox conditions. The second one deals with the modelling of clay–cement interactions in the context of a waste repository.

2. The coupled reactive transport code

2.1. General model

The reactive transport model describes the spatial and temporal evolution of a set of chemical species that are, on the one hand, submitted to transport phenomena and, on the other hand, submitted to chemical reactions. Involved transport phenomena can be convection, diffusion and dispersion in porous media. Chemical reactions may be at equilibrium state or controlled by kinetics, in liquid, solid or sorbed phases. More precisely, heterogeneous reactions that exchange matter between the liquid and the solid phases are taken into account in addition to the usual homogeneous reactions occurring in the liquid phase such as aqueous complex formation, acid–base and redox reactions. The main heterogeneous reactions considered here are precipitation–dissolution of minerals and sorption such as cation exchange. In our applications, the chemical processes are usually faster than the characteristic times of the transport, so we may assume as a general rule that the chemical system has reached its thermodynamic equilibrium state. Only some precipitation–dissolution processes are assumed to be kinetically controlled.

The corresponding physical model is made of a set of partial differential equations describing species transport in liquid phase, and a set of non linear algebro-differential equations corresponding to the chemical reactions that model species interactions.

2.2. Geochemistry

Chemical equations are presented in Mügler et al. (2004). We only describe here the main features of these equations. Transport equation is only solved for so called component species, representing a linearly independent basis of chemical entities so that every species can be uniquely represented as a combination of those components, and no component can be represented by another component than itself (Yeh and Tripathi, 1989). Non-component aqueous species are called aqueous secondary species. Their concentrations are obtained from aqueous equilibrium reactions involving the components as reactants. All equilibrium equations are based on the mass action law. Precipitation–dissolution reactions can be at equilibrium or kinetically controlled. Equations for adsorption equilibrium are obtained using the law of action mass in the same way as the aqueous equilibrium reactions on sorbed secondary species.

The code relies on the libraries of two geochemical codes solving the complex set of reacting chemical species:

CHESS, developed by CIG (France) (van der Lee and de Windt, 2002) and PHREEQC, developed by USGS (US) (Parkhurst and Appelo, 1999).

2.3. Hydrogeological transport

Hydrogeological processes involved are the transport by convection, dispersion and/or diffusion in 1D/2D/3D on structured and unstructured meshes. The transport of solutes is described by a set of partial derivative equations based on the principle of mass conservation. The transport equation of the j th component species in aqueous phase is written as follows:

$$\omega \frac{\partial c_j}{\partial t} - \nabla \cdot (D \nabla c_j - c_j u) = Q_j + R_j,$$

where ω is the porous media porosity, supposed constant, c_j , the concentration of the j th aqueous component species, D , the diffusion–dispersion tensor, u , the Darcy velocity, R_j , a source term corresponding to chemical reactions and Q_j another source term. Transport coefficients are assumed the same for all species.

The Darcy velocity u is modelled by the Darcy equation in the stationary state:

$$\begin{cases} \nabla \cdot u = 0 \\ u = -K \nabla h, \end{cases}$$

where h is the hydraulic head and K the permeability tensor.

Several codes are available to simulate hydraulic flow and transport:

- CAST3M, developed by CEA (France): EFMH or VF schemes, GMRES or Bi-CGStab linear solvers, 2D/3D unstructured meshes (Dabbene, 1998; Bernard-Michel et al., 2003).
- Modflow/MT3D, developed by U. Alabama (US): VF scheme, GCG linear solver, 2D/3D structured meshes (Zheng and Wang, 1998).

2.4. The coupling algorithm

The coupling algorithm is sequential iterative (Yeh and Tripathi, 1989): at each time step the transport equation and the chemical equation are solved successively and iteratively until convergence (Mügler et al., 2004).

3. Validation of the coupled reactive transport code

In a first step, several analytical test-cases have been defined and used to validate the reactive transport code. Numerical results have been compared to analytical solutions. In order to validate the coupling model, all studied configurations necessarily involve exchanges between species in aqueous phases and in immobile phases (dissolution–precipitation or sorption phenomena). For example, we have simulated the diffusion of alkaline water in quartz

sand, leading to acid/base reactions simultaneous with mineral dissolution: quartz reacts with hydroxyl ions and dissolves. Numerical results for the spatial and temporal evolution of pH and Na^+ concentration have been successfully compared to analytical solutions, in 1D and 2D geometry (Mügler et al., 2004). Another test-case involves the dissolution of concrete by a carbonated groundwater, in a 1D geometry. It is a typical coupling problem that can be found near a waste disposal. In this configuration taken from Read and Falck (1996), some water at equilibrium with calcite CaCO_3 (pH 7.5) is transported by convection and dispersion in concrete (pH 12.5), leading to the dissolution of the portlandite Ca(OH)_2 . Once again, numerical results are in good agreement with previous results obtained from other reactive transport code (Read and Falck, 1996). In a second step, more complicated configurations have been simulated (Mügler et al., 2004). The code is now used to model and simulate real configurations of reactive transport. Among those, we focus here on two applications: the migration of uranium in a soil with various redox conditions and clay–cement interactions.

4. Migration of uranium in a soil with various redox conditions

Measurements performed in a polluted site with uraninite ($\text{UO}_{2(\text{s})}$) have shown that the dissolved uranium concentration measured in a piezometer varies as a function of time: it increases in winter and decreases in summer according to variations of redox conditions and porewater composition (Descostes et al., 2005); soon available in (Phrommavanh et al., in preparation). Such variations are also observed with sulphur and nitrogen speciation: sulphide and ammonium ions are observed in summer, whereas thiosulphate, sulphate and nitrate ions are detected in winter, *i.e.*, under oxidizing conditions. Nitrate is known as a weak uranium complexing agent, whereas sulphur under thiosulfate and sulphate ions respectively can form uranium complexes, such as USO_4^{2+} , $\text{UO}_2\text{S}_2\text{O}_3$, UO_2SO_4 , $\text{U}(\text{SO}_4)_2$, $\text{UO}_2(\text{SO}_4)_2^{2+}$, $\text{UO}_2(\text{SO}_4)_3^{3-}$. These sulphonyanions are therefore liable to increase the solubility of uraninite. However sulphur and nitrogen can be also considered as redox tracers. A preliminary analysis suggests that dissolved oxygen ($\text{O}_{2(\text{aq})}$) is highly suspected to diffuse in water saturated soils according to the maximum of precipitation observed in winter. A first attempt to understand the observed variations of redox conditions was achieved, considering an infiltration into the soil of a porewater equilibrated with atmospheric oxygen. This study is focusing on different redox systems, *i.e.*, uranium, nitrogen and sulphur speciation, which to our knowledge, is rarely taken into account or validated in geochemical modelling.

4.1. Methods

The numerical platform ALLIANCES has been used to model and simulate the site. In the simulation, water at

equilibrium with the oxygen atmosphere infiltrates a sub-surface aquifer with a 2.5 m/year constant vertical flow velocity, and leaches a zone enriched in three different uraninite subsystems. The studied system is presented in Fig. 1. Two different layers are considered: the soil, beginning from the surface down to a depth of 7.5 m, and underneath, the aquifer from 7.5 to 20 m. The simulated porous medium is a 600-element mesh bi-dimensional system (see Fig. 2). Additional modellings were performed with a refined mesh made of 2400 cells to improve the results. All subsystems have the same porosity (equal to 0.5) but have different initial chemical compositions. Kinematic dispersion is equal to 1.5 m everywhere. Initial chemical compositions of the soil and of the aquifer are different, with high contents of sulphide and ammonium in underground porewater, according to field data. Several simulations have been performed with an increasing complexity for the soil geochemistry with or without uranium (see Table 1). An inert tracer was first used to validate the transport modelling. All calculations were performed in NaCl 10^{-3} M media, in order to keep a constant ionic strength. We observe the evolution in time and space in the aquifer of aqueous speciation, elementary concentrations, but also Eh and pH. Modelling was achieved using a consistent thermodynamic data basis (Guillaumont et al., 2003), without considering any kinetic law.

4.2. Results

In order to see and calculate the penetration depth of dissolved oxygen, an inert tracer taken as tritiated water (HTO) is also injected from the surface (see Fig. 3 for example). All the treated cases are not presented, but the most relevant are discussed. When ammonium and/or

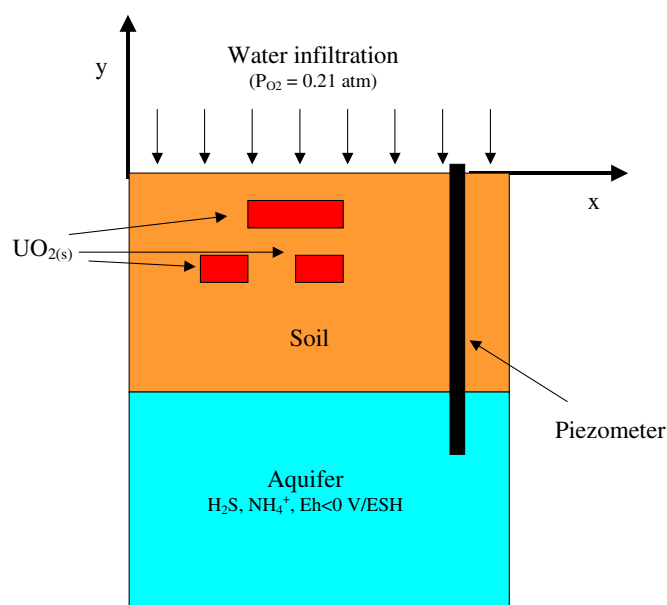


Fig. 1. Schematic representation of the studied polluted site.

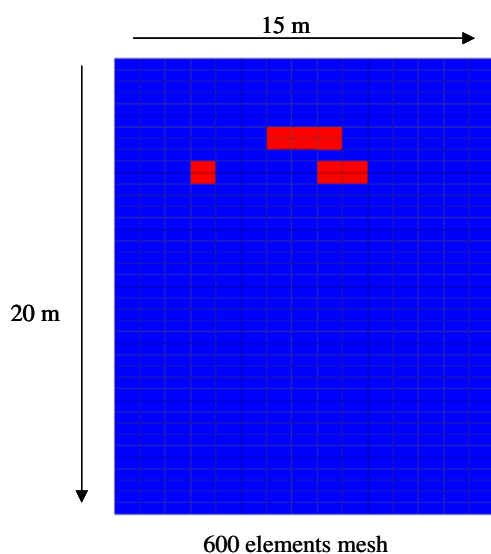
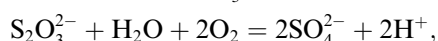
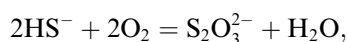
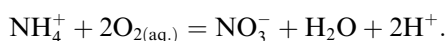


Fig. 2. Simulated porous media geometry.

sulphide ions are initially present, the oxygen is instantaneously consumed by the nitrate producing reaction, thiosulfate and sulfate ions. These oxidation reactions are accompanied by an acidification according to



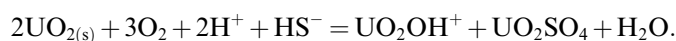
and



When ammonium and sulphide ions are both initially present, sulphur first reacts with oxygen to form thiosulfate and

sulfate, but also leads to the presence of two distinct Eh zones. Thiosulfate ions are metastable and their concentration remains very low (10^{-9} mol/L). This first modelling allows us to consider therefore more complex calculations with the simultaneous presence of different redox couples and uranium.

When only uranium is considered in the modelling (case 1 in Table 1), maximum uranium concentration is close to 10^{-7} mol/L, that is to say the solubility of schoepite (see Fig. 4). The main aqueous species are UO_2OH^+ and $\text{UO}_2(\text{OH})_2$ (see Fig. 5a). Schoepite is observed in the uraninite zones. In a more complex case (case 6 in Table 1), when nitrogen and sulphur are taken into account, the maximum uranium content increases to 10^{-5} mol/L. The speciation is modified since one of the predominant species is UO_2SO_4 (see Fig. 5b), according to the following overall reaction:



The other electroactive species oxidation is still taking place. Sulphide and nitrogen are respectively oxidized into thiosulfate, sulphate and nitrate.

The dissymmetry of the uranium concentration which appears in Fig. 4c and d is due to the dissymmetry of the initial conditions (see Fig. 2). Simulations presented in this paper have been performed with a 600-cell mesh. Simulations of the same configurations were performed with a refined mesh made of 2400 cells (2 times as many cells in each direction). Fig. 6a and b give the total concentration of uranium after 1 and 2 years, calculated with the refined mesh in the configuration number 6 described in Table 1. These figures have to be compared with Fig. 4c and d and check the spatial convergence of the numerical scheme.

Table 1
Different cases studied with or without the formation of $\text{S}_2\text{O}_3^{2-}$ and uraninite ('–' stands for not fixed, while $\text{UO}_{2(\text{s})}$ is defined by a concentration of $[\text{UO}_{2(\text{s})}] = 1 \text{ mol L}^{-1}$)

Case		pH	Eh (V/SHE)	P(O ₂) (atm)	[NH ₄ ⁺] (mol L ⁻¹)	[HS ⁻] (mol L ⁻¹)	[SO ₄ ²⁻] (mol L ⁻¹)
1	Soil	6.7	−0.1435	0	0	0	0
	Aquifer	7	−0.180	0	0	0	0
	Infiltration	–	–	0.2	0	0	0
2	Soil	6.7	−0.1435	0	10^{-4}	0	0
	Aquifer	7	−0.180	0	10^{-5}	0	0
	Infiltration	–	–	0.2	0	0	0
3	Soil	7	–	0	0	3×10^{-5}	6.93×10^{-3}
	Aquifer	7	−0.180	0	0	–	1.77×10^{-4}
	Infiltration	–	–	0.2	0	0	0
4	Soil	7	–	0	0	3×10^5	6.93×10^{-3}
	Aquifer	7	−0.230	0	0	–	1.62×10^{-4}
	Infiltration	–	–	0.2	0	0	0
5	Soil	7	–	0	10^{-4}	3×10^{-5}	6.93×10^{-3}
	Aquifer	7	−0.230	0	0	0	1.77×10^{-4}
	Infiltration	–	–	0.2	0	0	0
6	Soil	7	–	0	10^{-4}	3×10^{-5}	6.93×10^{-3}
	Aquifer	7	−0.180	0	0	–	1.77×10^{-4}
	Infiltration	–	–	0.2	0	0	0

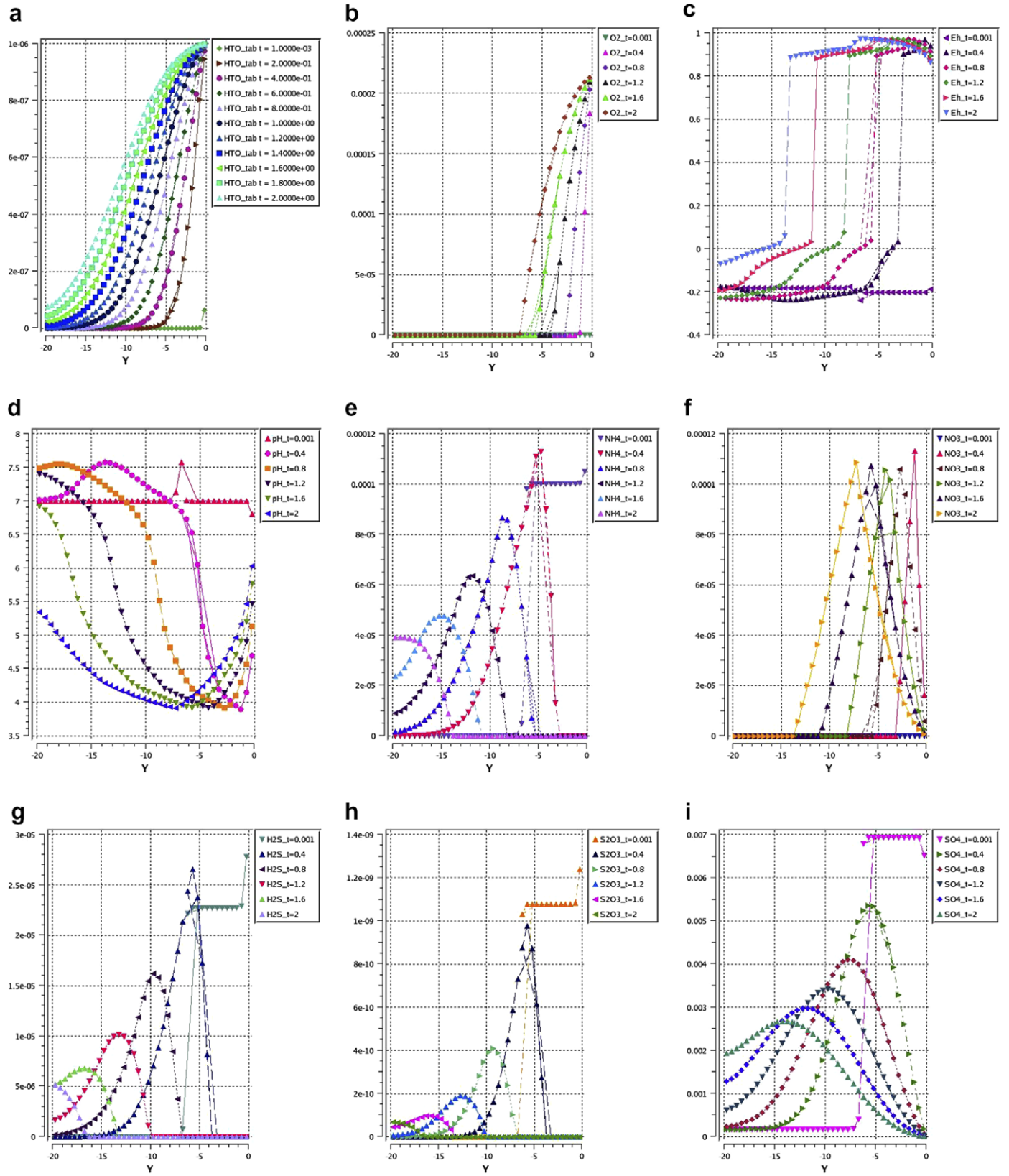


Fig. 3. Illustration of results obtained from the case 6 in Table 1, without uranium. Figures give vertical profiles at $x = 7.5$ m of the different species concentration (in mol/L), pH and Eh (in V/SHE), at different times: $t = 0.001, 0.4, 0.8, 1.2, 1.6$ and 2 years. ((a) HTO chosen as an inert tracer, (b) $[O_{2(aq)}]$, (c) Eh, (d) pH, (e) $[NH_4^+]$, (f) $[NO_3^-]$, (g) $[H_2S]$, (h) $[S_2O_3^{2-}]$, (i) $[SO_4^{2-}]$).

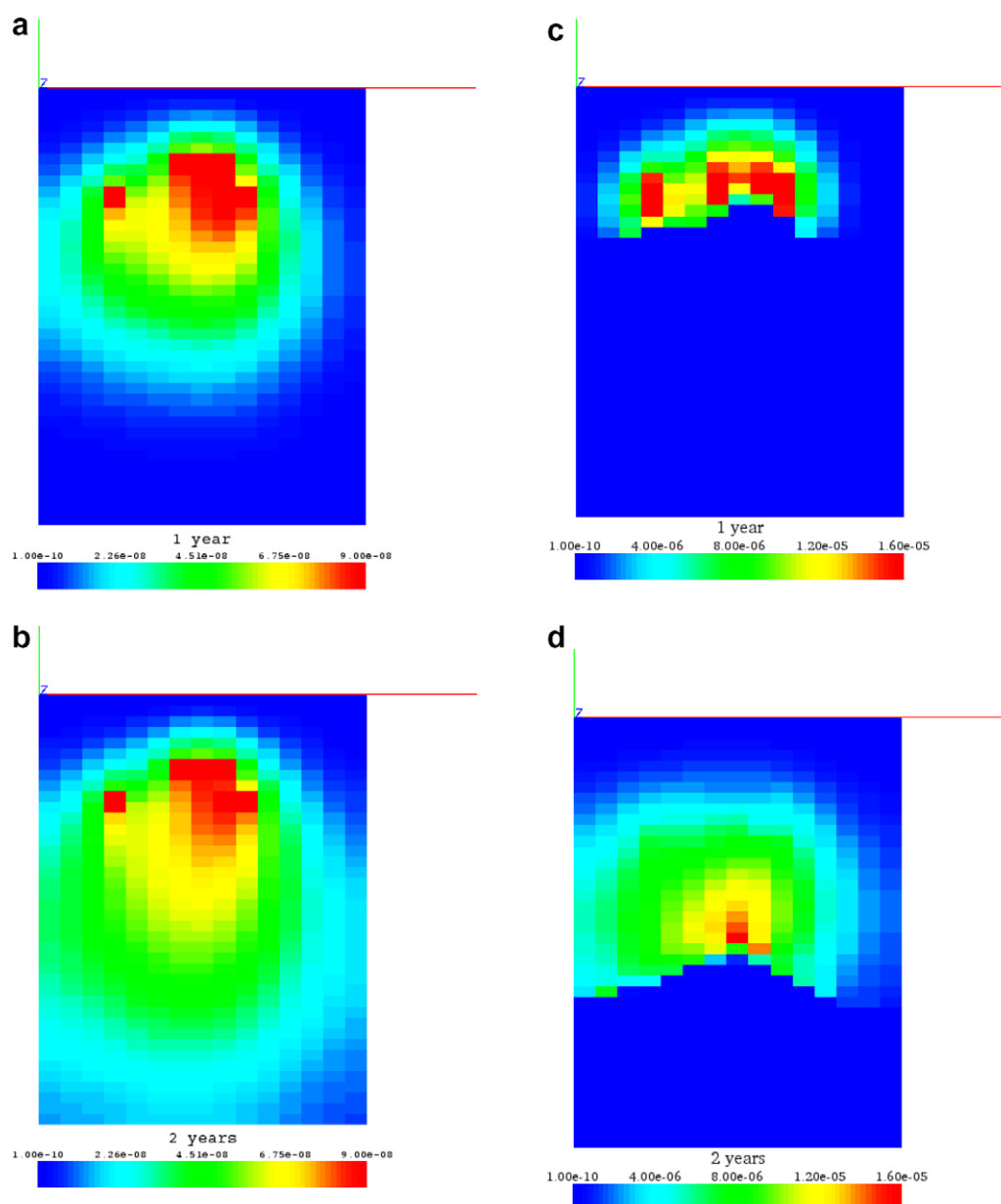


Fig. 4. Total concentration of uranium (mol/L) calculated at 1 year and 2 years, without (a) and (b) and with nitrogen and sulphur (c) and (d). Modellings without and with nitrogen and sulphur correspond to case 1 and case 6 in Table 1, respectively.

4.3. Discussion and perspectives

Several simulations have been performed with an increasing complexity for the soil geochemistry, including nitrogen and sulphur aqueous redox chemistry. Modelling shows the dissolution of $\text{UO}_{2(s)}$ and the subsequent uranium migration. When SO_4^{2-} but also $\text{S}_2\text{O}_3^{2-}$ are taken into account, the $\text{UO}_{2(s)}$ solubility increases due to the formation of $\text{S}_x\text{O}_y\text{-U}$ aqueous complex. Numerical results are in qualitative agreement with experimental measurements and show the interest of the use of a coupled reactive transport code. Moreover, one specific problem encountered in geochemical modelling, *i.e.*, redox behaviour, was resolved considering up to four different elements, with more than nine oxidation numbers.

This study prefigures a more complex and realistic configuration where a whole set of geochemical data will be considered. Thiosulfate ions are known to be metastable in natural environment (Descostes et al., 2002). Other inorganic complexing agents of both $\text{U}^{(\text{VI})}$ and $\text{U}^{(\text{IV})}$ such as sulfite (SO_3^{2-}) (Vitorge et al., submitted for publication) but also carbonate will be considered. We will focus on the equilibrium with carbonate minerals and the regulation of the CO_2 partial pressure in natural environment. Sorption properties of the soil delimited by clayey materials and pyrite (Eglizaud et al., accepted for publication) will be also considered. Physical properties of each layer, *i.e.*, porosity, permeability and kinematic dispersion, will be studied as coupled phenomena. Finally, boundary conditions will be

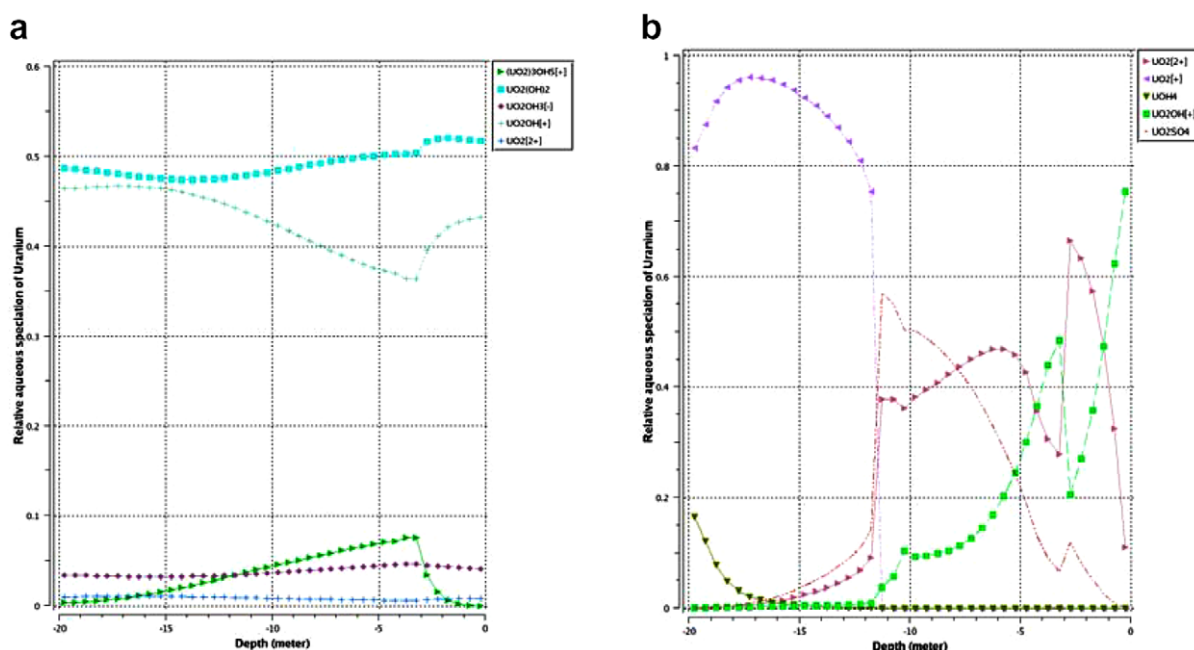


Fig. 5. Vertical profiles of relative aqueous speciation of uranium, at $x = 7.5$ m and $t = 2$ years, (a) without and (b) with nitrogen and sulphur. Modellings without and with nitrogen and sulphur correspond to case 1 and case 6 in Table 1, respectively. To make the figure clearer, only uranium main species are shown.

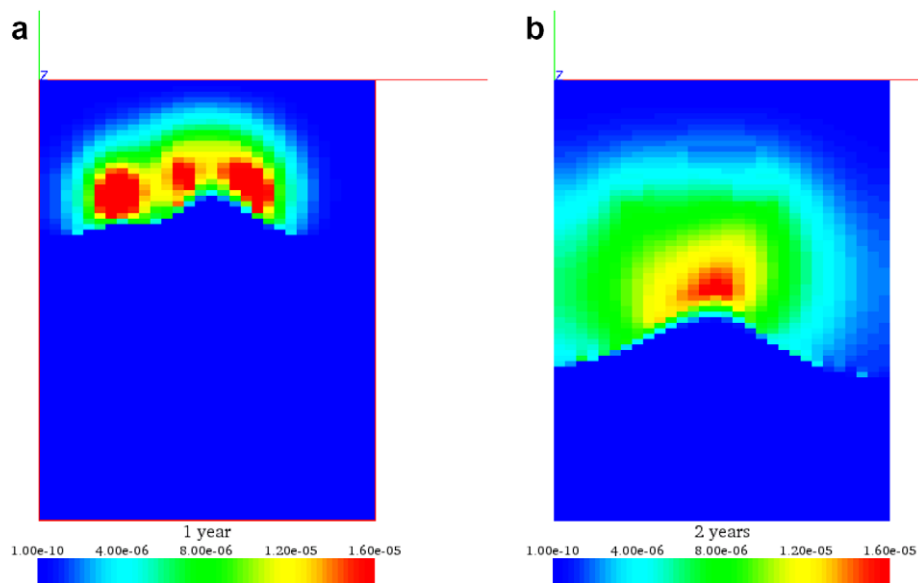


Fig. 6. The same as Fig. 4(c) and (d) but with a refined mesh made of 2400 cells.

modified in order to simulate the observed seasonal alternation of pluviometry.

5. Multidimensional modelling of clay–concrete interactions using ALLIANCES

In the context of geological disposal of nuclear waste, safety studies have to consider time scales accounting for the long period of the high-level and long living radionuclides. Moreover, safety assessments involve various phe-

nomena, which are often interdependent. However, time scales of laboratory experiments are necessarily short compared to repository ones and experiments are often focused on only one specific phenomenon (Jacquot and Michau, 2005). The first step of the modelling approach was to acquire experimental data on clay–concrete systems in order to assess mineral transformations of clayey materials under alkaline conditions. This has been done by various laboratory experiments (Roussel, 2001) as well as the study of natural analogues (Rassineux, 2001; Techer et al., 2004).

It was demonstrated that the phases observed in laboratory experiments are of the same nature as those observed on natural analogues, validating the fact that dissolved and precipitated phases observed in short term laboratory experiments are representative of longer time scales of interactions.

The second step consisted in checking that the numerical modelling of clay–concrete systems was consistent with phase transformations identified both experimentally and on the natural analogue sites. Hence, from the geochemical point of view, our modelling approach aim is to be representative of what is observed but not to be predictive by itself.

The third step consisted in coupling transport phenomena to the identified geochemical processes. Considering diffusion as the dominating transport process in clayey materials, the modelling developed in this study allowed us to estimate the propagation of an alkaline plume in time and space in the context of a geological disposal.

One dimensional coupled geochemistry–transport tools, such as PHREEQC, were beforehand used to give a rough estimation of the propagation of an alkaline plume in clayey systems. The main limitation of one dimensional transport is that the storage geometry can not be taken into account. Such difficulties can be overcome by the use of the ALLIANCES multidimensional coupling tool.

Hereafter we present numerical results associated to the simulation of a gallery sealing concept which involves bentonite, argilite and concrete areas whose interface evolution has to be evaluated over time. The driving force for the evolution of the system results from the chemical heterogeneity between each material and in particular between the concrete and the argillaceous materials. The interstitial fluid pH for the concrete is estimated at 12.4 whereas the bentonite and the argillite ones are respectively 7.8 and 7.0. The geometry of the concept is represented in Fig. 7 together with the boundary conditions taken for the numerical modelling. In this figure, one can notice a small bentonite zone embedded in concrete that we call thereafter bentonite key. The extension of the argilite is of 60 meters. Transport parameters are listed in Table 2 where the EDZ corresponds to a damaged zone of the argilite due to excavation. The mineral composition of each material is described in Tables 3–5. In the simulation, Feldspar and Pyrite are not supposed to precipitate due to the low temperature considered (25 °C).

Results presented thereafter have been obtained within ALLIANCES with the PHREEQC/MT3D coupling over a 1500-element mesh. Only diffusive transport is considered enabling to take symmetry axes into account. Alteration over time of the concrete occurs only at interfaces with clayey materials where Portlandite is dissolved (see Fig. 8) and new minerals, as low Ca/Si ratio CSH, appear (see Fig. 9). For the bentonite key, only cation exchange is stated, Na-Montmorillonite being replaced by Ca-Montmorillonite whereas at the bentonite/concrete interface, both Montmorillonite are dissolved (see Figs. 10 and 11).

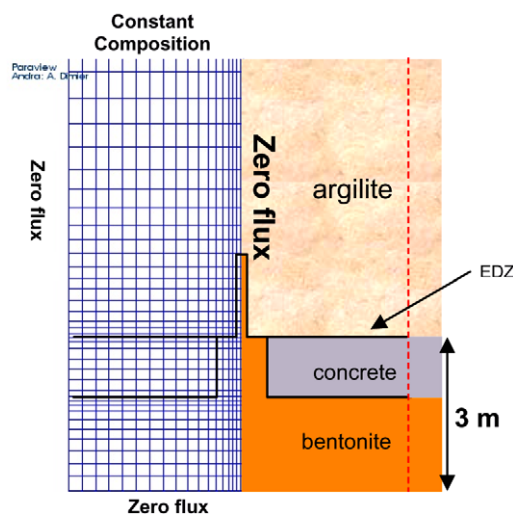


Fig. 7. Representation of the geometry near the concrete/bentonite interface and associated meshing considered.

Table 2
Clay–concrete interactions: transport parameters associated to the materials or zones

Zones	Effective diffusion
Bentonite	$10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$
Argilite	$2.6 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$
Concrete	$10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$
EDZ	$5.2 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$

Table 3
Clay–concrete interactions

Phase	Amount (mol/kg w)
Portlandite	16.05
CSH 1.65	7.50
Hydrogrenat	1.11
Hydrotalcite	0.32
Ferrihydrite	0
Monosulfoaluminate	0.96
Pyrite	1.47
Calcite	195.71

Mineral composition of Concrete.

Table 4
Clay–concrete interactions

Phase	Amount (mol/kg w)
Quartz	57.97
K-Feldspar	2.40
Calcite	25.33
Dolomite	6.60
Célestine	0.64
Pyrite	2.36
Illite	12.30
Ca-Montmorillonite	6.63
Daphnite	0.26
Chlorite-14A	0.26

Mineral composition of Argilite.

Table 5
Clay–concrete interactions

Phase	Amount (mol/kg w)
Montmorillonite-Na	4.60
Montmorillonite-Ca	4.61
Biotite-Fe	0.22
Pyrite	0.10
Calcite	0.39
Albite	0.53
K-Feldspar	0.15
Quartz	4.68

Mineral composition of Bentonite.

On the argilite side, dissolution of the initially present Ca-Montmorillonite is observed (see Fig. 10). Simulations show the permanence of a bentonite zone over time in spite of its interaction with an alkaline plume.

6. Conclusion

A coupled transport/chemistry simulation tool has been developed in the context of the software platform ALLIANCES. It has been validated against many configurations and is now successfully used to model and simulate real configurations of reactive transport.

We focus here on two applications of the code. The first one deals with the migration of uranium in a soil with various redox conditions. Numerical results are in qualitative agreement with experimental measurements and show the interest of the use of a coupled reactive transport code. Moreover, one specific problem encountered in geochemical modelling, *i.e.*, redox behaviour, was resolved considering up to four different chemical elements, with more than nine oxidation numbers. The second application of the code deals with the modelling of clay–cement interactions.

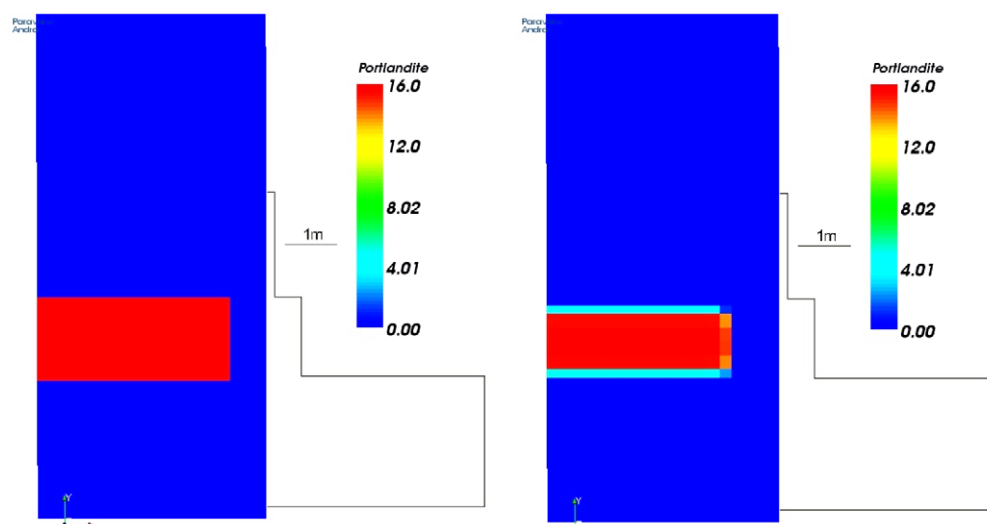


Fig. 8. Portlandite amount mol/kg w, initially and after 100 000 years.

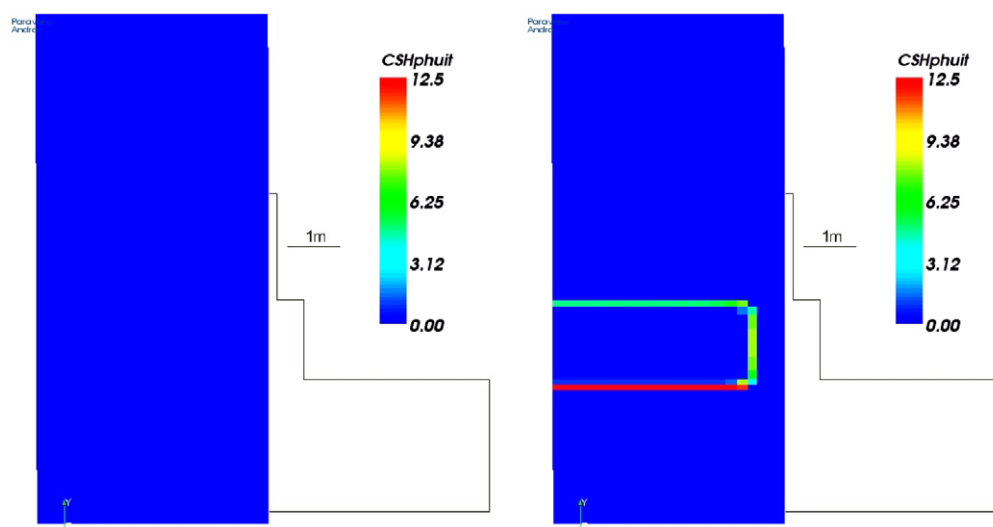


Fig. 9. CSH_0.8 amount mol/kg w, initially and after 100 000 years.

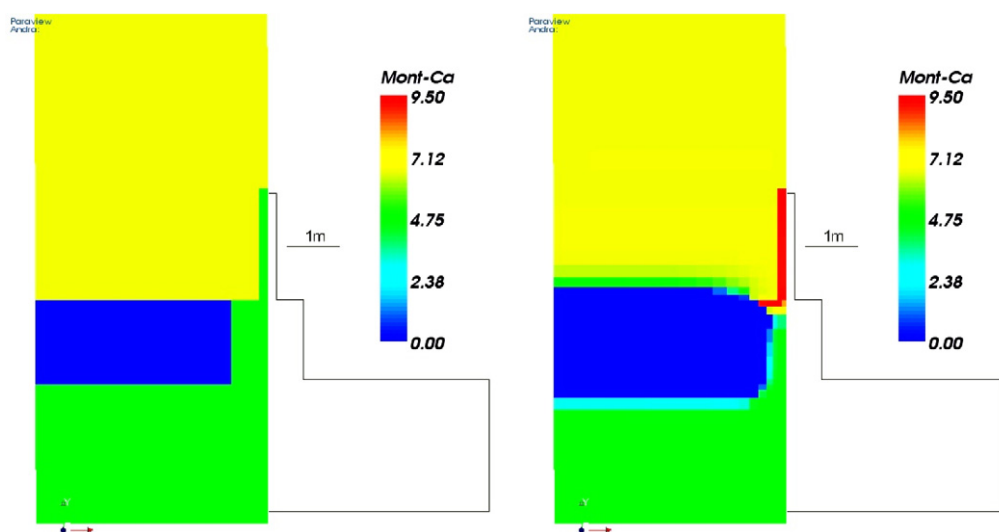


Fig. 10. Montmorillonite Ca amount mol/kg w, initially and after 100 000 years.

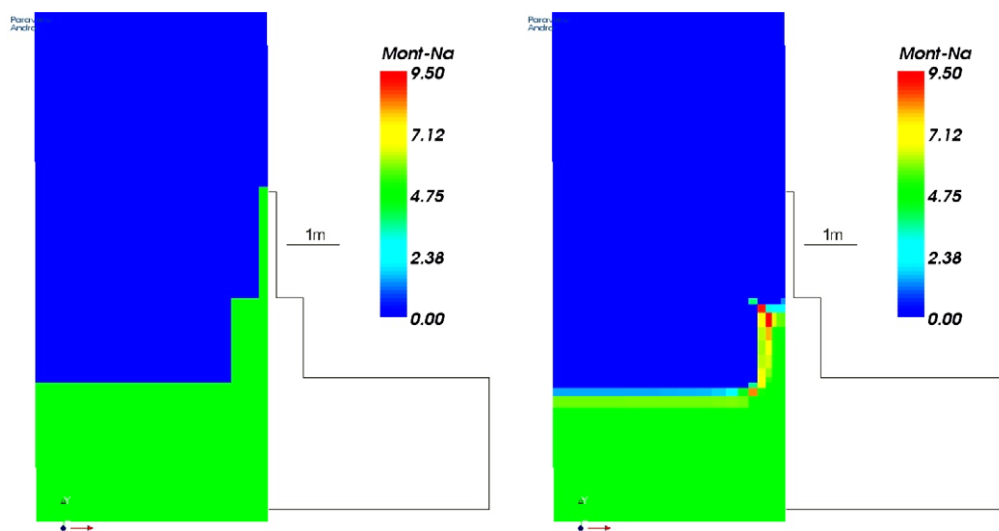


Fig. 11. Montmorillonite Na amount mol/kg w, initially and after 100 000 years.

Simulations show the permanence of a bentonite zone over time in spite of its interaction with an alkaline plume. These two studies show the interest of the use of a multidimensional coupled reactive transport code in order to interpret long term behaviour of a nuclear waste disposal or polluted site.

To go further in the simulation, we will take unsaturated media (for subsurface simulations or saturation/desaturation scenarios) into account. Therefore, next version of ALLIANCES will include chemistry-transport coupling with unsaturated flows.

References

- Bernard-Michel, G., Le Potier, C., Beccantini, A., Chrebi, M., 2003. The ANDRA Couplex 1 test-case: comparisons between finite element, mixed-hybrid-finite element and finite volume discretizations with CAST3M. *J. Comput. Geosci.* 8, 187–201.
- Dabbene, F., 1998. mixed-hybrid finite elements for transport of pollutants by underground water. In: *Proc. of the 10th Int. Conf. on Finite Elements in Fluids*, Tucson, USA.
- Descostes, M., Beaucaire, C., Mercier, F., Savoye, S., Sow, J., Zuddas, P., 2002. Effect of carbonate ions on pyrite (FeS_2) dissolution. *Bulletin de la Société Géologique de France* 173, 265.
- Descostes, M., Mügler, C., Montarnal, P., Colin, J., Phommavanh, V., 2005. Modelling uranium migration in different redox conditions (with ALLIANCES reactive-transport module), *MIGRATION'05*, Avignon, France.
- Eglizaud, N., Miserque, F., Simoni, E., Schlegel, M., Descostes, M., accepted for publication. Uranium (VI) interaction with pyrite (FeS_2): chemical and spectroscopic studies, to appear in *Radiochimica Acta*.
- Guillaumont, R., et al., 2003. Update on the Chemical Thermodynamics of Uranium, Neptunium, Plutonium, Americium and Technetium. NEA-TDB, OECD, Amsterdam.
- Jacquot, E., Michau, N. 2005. La perturbation alcaline liée à un stockage: les argilites du Callovo-Oxfordien en champ proche et les composants à base d'argile gonflante. Site de Meuse/Haute-Marne. Rapport Andra No. C.NT.ASTR.03.069.

- Montarnal, P., Bengaouer, A., Chavant, C., Loth, L., 2006. ALLIANCES: Simulation platform for nuclear waste disposal. In: Proc. of CMWR'06, Copenhagen, Denmark.
- Mügler, C., Montarnal, P., Dimier, A., Trotignon, L., 2004. Reactive transport modelling on the ALLIANCES software platform. In: Proc. of the 15th Int. Conf. on Computational Methods in Water Resources, Chapel Hill, NC, USA.
- Parkhurst, D.L., Appelo, C.A.J., 1999. User's guide to PhreeqC, version 2, Water-Resources Investigations Report 99.
- Phrommavanh, V., Descostes, M., Beaucaire, C., Gaudet, J.P., in preparation. Uranium migration in peatland: geochemical characterization.
- Rassineux, F., 2001. Projet Maqarin phase IV. Contribution à l'identification des transformations minéralogiques de la biomicrosite au contact de solutions alcalines sur le site de Khushaym Matruk. Document ANDRA D.RP.0ERM.01.019.
- Read, D., Falck, W., 1996. CHEMVAL 2: a coordinated research initiative for evaluating and enhancing chemical models in radiological risk assessment, vol. EUR 16648-EN of Nuclear Science and Technology EC Series.
- Rousell, 2001. Etude expérimentale et modélisation de la propagation d'une onde de concentration alcaline issue d'une matrice cimentière à travers l'argilite du site du laboratoire de Meuse/Haute-Marne. Thèse de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, Nancy 1, 212 p.
- Techer, I., Fourcade, S., Elie, M., Martinez, L., Boulvais, P., Claude, C., Clauer, N., Pagel, M., Hamelin, B., Lancelot, J., 2004. Contribution des analogues naturels à la compréhension du comportement à long terme des milieux argileux vis-à-vis de la circulation de fluides hyperalcalins: Etude du site de Khushaym Matruk en Jordanie Centrale; Géochimie isotopique du Sr, du C et de l'O; Datations U-Th, K-Ar; Caractérisation de la matière organique. Rapport final du GdR FORPRO. Action de recherche 2001-VII.
- van der Lee, J., de Windt, L., 2002. Chess Tutorial and CookBook, updated for version 3.0, ENSMP-CIG LHM/RD/02/13.
- Vitorge, P., Phrommavanh, V., Siboulet, B., You, D., Vercouter, T., Descostes, M., Marsden, C.J., Beaucaire, C., Gaudet J.P., submitted for publication. Estimating the stabilities of actinide aqueous species. Influence of sulfoxy-anions on uranium (IV) geochemistry. C.R. Acad. Sci.
- Yeh, G.T., Tripathi, V.S., 1989. A critical evaluation of recent developments in hydrogeochemical transport models of reactive multichemical components. *Water Resour. Res.* 25, 93.
- Zheng and Wang, 1998. MT3DMS Documentation and User's Guide.

Annexe E : Impact of spatial heterogeneities on oxygen consumption in sediments : experimental observations and 2D numerical modeling

Cette annexe présente l'article :

C. Mügler, C. Rabouille, B. Bombled, P. Montarnal. Impact of spatial heterogeneities on oxygen consumption in sediments : experimental observations and 2D numerical modeling. *Journal of Geochemical Exploration* 112, 76-83, 2012.

Cet article vient en complément du §3.2.2 de la Partie 2 de ce mémoire.



Contents lists available at [SciVerse ScienceDirect](http://www.sciencedirect.com)

Journal of Geochemical Exploration

journal homepage: www.elsevier.com/locate/jgeoexp



Impact of spatial heterogeneities on oxygen consumption in sediments: Experimental observations and 2D numerical modeling

Claude Mügler ^{a,*}, Christophe Rabouille ^a, Bruno Bombled ^a, Philippe Montarnal ^b

^a Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE/IPSL), CEA-CNRS-UVSQ, Orme des Merisiers, 91191 Gif-sur-Yvette, France

^b CEA/DEN Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette, France

ARTICLE INFO

Article history:

Received 15 November 2010

Accepted 30 July 2011

Available online 10 August 2011

Keywords:

Heterogeneity

Reactive transport modeling

Organic-carbon mineralization

Microelectrode

ABSTRACT

In situ measurements of the sediment geochemical composition performed with high-resolution techniques often exhibit the heterogeneous character of this shallow water environment. Many processes can be responsible for this small-scale variability. Here, we investigate two of these processes: (i) a local deposition of organic matter related to organic aggregates; (ii) a horizontal diffusion of oxygen due to the presence of biological structures, such as burrows or galleries, which result from the activity of macrofauna. In this paper, laboratory experiments and associated 2D numerical simulations are performed together to confirm and to quantify the impact of such small-scale heterogeneities on the dynamics and spatio-temporal variability of biogeochemical cycles in sediments. Both experiments and calculations confirm that a local deposit of organic matter involves an increase in oxygen demand of the sediment as a result of labile organic matter deposit and of its degradation by microorganisms. On the contrary, the presence of biological structures involves lateral diffusion and deeper penetration of oxygen. Burrows act as preferential pathways for fluids and lead to spatially heterogeneous distributions of chemical species. The combination of the results from oxygen microelectrode profiles measured at high lateral resolution in sediments with those from modeling allows to quantify the characteristic distance on which the presence of aggregate or burrow influences the oxygen spatial distribution in the sediment.

© 2011 Elsevier B.V. All rights reserved.

1. Introduction

Continental or marine shallow aquatic environments are largely disturbed by human activities (Kennish, 2001). This is mainly due to the large amount of fertilizers used in intensive agriculture and to waste water that is rich in organic matter. Natural biogeochemical cycles undergo important modifications that deteriorate water quality, modify trophic chains to toxic algae and weaken ecosystems. In these environments, biogeochemical cycles are usually characterized by a close coupling between production in the water column and recycling in the sediments. Therefore, sedimentary processes are very important for the evolution of the biogenic and anthropic compounds in the medium. It is consequently essential to understand and quantify their dynamics and their spatio-temporal variability by a combination of experimental measurements and associated modeling efforts.

Until the end of the Nineties, usually a one-dimensional approach was privileged to study sediments, both in their natural environment (Froelich et al., 1979; Gehlen et al., 1997; Jahnke et al., 1982; Reimers,

1987) and in modeling (Berner, 1980; Boudreau, 1997; Rabouille and Gaillard, 1991; Soetaert et al., 1996; Van Cappellen and Wang, 1996). Innovating techniques allowing high-resolution measurements (Cai and Reimers, 1995; Lansard et al., 2003; Reimers, 1987; Revsbech et al., 1986; Wenzhöfer and Glud, 2004) made it possible to establish a link between vertical oxygen profiles and mineralization of organic matter. Such in situ measurements based on the use of electrochemical microsensors on automated profilers gave access to geochemical distributions on the centimeter scale and revealed a strong variability of the oxygen microprofiles (Dedieu et al., 2007; Glud et al., 2009; Rabouille et al., 2003). The O₂ penetration depth is a good proxy for the benthic microbial activity at a given site. Its value, as measured in situ with high-resolution one-dimensional O₂ microprofiles ranged from 3 to 15 mm (with an average of 4 mm) in the Gulf of Fos in the Mediterranean Sea (Rabouille et al., 2003), and from 2.6 mm to 17.8 mm in the Sagami Bay in Japan (Glud et al., 2009), respectively. Some microprofiles with high values for the penetration-depth of the O₂ into the sediment probably indicated the presence of benthic fauna structures. Both microelectrodes and microoptodes measure the O₂ concentration at a single point, and depth profiles are obtained by a stepwise up or down movement of the sensor through the medium. Glud et al. (1996) proposed a new tool called planar optodes for measuring fine-scale two-dimensional O₂ distributions and dynamics in benthic communities. This new technique yielded results that were

* Corresponding author. Tel.: +33 1 69089363; fax: +33 1 69087716.
E-mail address: claudio.mugler@cea.fr (C. Mügler).

in agreement with microelectrode measurements (Glud et al., 1996, 2005) and also revealed heterogeneous oxygen distributions (Glud et al., 2001; Glud et al., 2005; Wenzhofer and Glud, 2004).

Many processes can be responsible for this small-scale variability such as (i) local deposition of organic matter related to organic aggregates; (ii) enhanced availability of reduced chemical species generated by anoxic oxidation of organic matter in deeper sediments; (iii) horizontal diffusion of oxygen due to the presence of biological structures, such as burrows or galleries which result from macrofauna activity (Rabouille et al., 2003).

The first two processes involve an increase in oxygen demand of the sediment: A labile organic matter deposit increases the oxygen uptake within the sediment (this is a direct consequence of its degradation by microorganisms) and the oxidation of reduced compounds diffusing from the anoxic zone also involves a O_2 consumption. For example, both microelectrode and planar optode measurements showed that the oxygen penetration depths could be locally reduced. This reflected the presence of local hot spots in the oxygen consumption rate associated with fecal mounds (Glud et al., 1996). In (Glud et al., 2005), the small-scale variability in the O_2 penetration depth occurred on the same spatial scales as for aggregates that settled during the investigation period. Other in situ measurements of benthic O_2 concentration performed in the Sagami Bay (Japan) showed that millimeter- to centimeter-sized hot spots with high consumption rates were separated by parcels of low or insignificant O_2 consumption (Glud et al., 2009).

The third process due to the presence of biological structures involves on the contrary lateral diffusion and deeper O_2 penetration. Tubes or burrows left by infauna are often surprisingly stable and can persist for months to years after being vacated (Aller and Aller, 1986). Wenzhofer and Glud (2004) have shown very impressive examples of spatial and temporal O_2 distributions within sediments influenced by burrowing fauna and photosynthesis. It appeared that with time, burrow structures transported oxygenated water deeper into the sediment, whereas in the absence of any obvious burrow structure, the O_2 penetration depth within the surrounding sediment was only a few millimeters. Even simple visual inspection of the marine sediment surfaces clearly revealed an extensive small-scale heterogeneity (Glud, 2008): Tracks of moving fauna, fecal mounds and burrows, patches of microalgae that might contribute to the benthic O_2 consumption and represent diagenetic hot spots. Numerous experimental investigations documented the importance of macrofauna (Aller and Aller, 1998; Aller and Yingst, 1985; Wenzhofer and Glud, 2004) or meiofauna (Aller et al., 1998; Aller and Aller, 1992) for benthic diagenesis and solute exchange. While significant, the meiofauna effects were less important than those caused by macrofauna.

One of the shortcomings of the experimental evidence for sediment heterogeneity was that the data represented the sediments as 1D systems with only vertical concentration gradients. The feeding, burrowing, construction and irrigation activities of animals transformed what would otherwise be laterally symmetrical, one-dimensional bodies into complex, time-dependent, three dimensional structures. Therefore, a variety of more sophisticated models were developed to quantify multi-dimensional transport-reaction processes within the bioturbated zone. Aller (1980) was one of the first authors to use a 2D-cylinder geometry to model bioirrigation in muddy sediments with the assumption that bioirrigation was caused by diffusive exchange between the burrow water and the interstitial pore water. In this model, the only physical transport mechanism was molecular diffusion. With this diffusion model, Aller and Yingst (1985) demonstrated that, in the presence of macrofauna, the effective diffusion coefficients were 2–5 times higher than the molecular diffusion value within the upper 8–12 cm of sediment. The magnitude of apparent temporal variation of the diffusion coefficient depended on burrow abundance, size, and depth of burrowing. The same 2D-cylinder geometry and diffusion assumption was also used by Furukawa (2001) in a more

sophisticated reactive model to simulate the geochemical effects of macrofaunal burrow ventilation in the immediate vicinity of burrow walls and at the water–sediment interface. In contrast, other authors proposed to model bioirrigation under the fundamental assumption that advection is the dominant transport mode of interstitial solutes. Indeed, measurements of the O_2 microdistribution around relict tubes revealed an intense passive flushing of the tube structure when it was exposed to ambient flow (Munksby et al., 2002). The extent to which this mechanism was possible depended on the hydraulic conductivity of the sediment, the flow velocity of the overlying water, the geometry of the tube and its relative position in the sediment. For example, in sandy sediments – which are more permeable than muds – Meysman et al. (2006) assumed that the advective pore water flow generated by flushing of worm burrows was the dominant physical transport mechanism. Using a two-dimensional simulation analysis, Cook et al. (2006) also investigated the effects of advective transport due to sediment flushing on rates and measurements of denitrification.

Most of these approaches (Aller, 1980; Aller and Yingst, 1985; Furukawa, 2001; Meysman et al., 2006) implemented a highly simplified model of the natural sediment, that was idealized as a collection of identical average territories inhabited by a single organism. In the 2D tube irrigation model first proposed by Aller (Aller, 1980; Aller and Yingst, 1985; Furukawa, 2001), the average burrow was a straight cylindrical structure. Results from experimental incubations of sediment plugs of varying thickness indicated that simple alterations in the spacing of individual burrow structures in sediments or in the specific geometry of burrow sections entailed significant localized effects on microbial populations, net diagenetic reactions, and elemental cycling. These were solely due to changes in diffusive transport (Aller and Aller, 1998). In the work of Meysman et al. (2006), the actual geometry of the burrow was neglected. They retained only a feeding pocket as the actual location where burrow water was injected into the sediment.

Some of the model simulations were successfully confronted with data obtained from controlled laboratory incubations (Aller, 1980; Meysman et al., 2006) but only conservative tracers were used in the experiments.

In a more recent work, the O_2 consumption rates were derived from in situ concentration measurements with a 2D steady-state mass balance equation for oxygen in the sediment that included transport by molecular diffusion and bioturbation (Glud et al., 2009). This approach yielded very heterogeneous O_2 consumption rates within the surface sediment, characterized by hot spots or zones of intensified activities that were separated by patches of low or insignificant activity. In this approach, experimental O_2 concentrations and resistivity were directly used as input parameters for the net rate of oxygen production or consumption and for the effective diffusive transport coefficient in the model.

We are not aware of any study in the existing literature that would combine oxygen microelectrode data with a modeling of highly reactive tracers such as oxygen. Only conservative tracers were tested in the work of Aller (1980) and Meysman et al. (2006). Simulations performed with a reactive model in the work of Furukawa (2001) were not confronted to experimental data. There was no explicit modeling of the O_2 reactions in the work of Glud et al. (2009). Therefore, in the present paper, we propose to couple controlled experimental and 2D numerical modeling in order to better understand and quantify the impact of small-scale heterogeneities on the dynamics and spatial and temporal variability of biogeochemical cycles in sediments. The originality of this work is to conciliate the data from high-resolution O_2 microelectrode experimental profiles with those of multi-dimensional transport of reactive tracer where both the exact geometry of fauna structures such as burrows and the biogeochemical reactions are explicitly simulated. To achieve this goal we first force separately and specifically certain key processes via laboratory experiments. In a second stage we perform numerical simulations of these experiments. Laboratory experiments

are performed on a natural sediment which has undergone several modifications such as homogenization, creation of artificial structures and additions of organic compounds. 2D numerical simulations of these experiments are performed using a reactive code.

2. Laboratory experiments

Laboratory experiments were realized on sediments collected in the Gulf of Fos (Mediterranean Sea), where previous microelectrode profiles measured in situ had revealed the presence of small-scale spatial heterogeneities (Fig. 1 after Rabouille et al. (2003)). First, the sediment was sieved and homogenized. Then, it was put in a 15-cm diameter and 20-cm deep coreliner which was held by a bucket (Fig. 2a). In the coreliner, the sediment was covered by a stagnant 5-centimeter thick water layer. There is no flow within the overlying water and we do not investigate the effects of sediment flushing as done in the work of Munksby et al. (2002) and Cook et al. (2006). Finally, an artificial burrow was created with a diameter of 4 mm and a depth of 2 cm (Fig. 2). A circulation of aerated seawater was imposed inside the burrow in order to maintain the oxygen concentration in the burrow water. On another spot of the core, an organic-matter aggregate in the form of a fish food pill was deposited onto the sediment surface. Measurements were performed using an oxygen microelectrode mounted on a x - z microprofiler. Both instruments were manufactured by Unisense. Microelectrodes were 50 μ m in diameter and were calibrated using Winkler titration in the water overlying the core and zero current in the anoxic zone. Transect were performed at various distances from the organic-matter center (7.5 mm, 10 mm, 12.5 mm, 15 mm, 30 mm) and from the burrow (1–2 mm, 3–4 mm, 8 mm, 16 mm). This allowed to reconstruct 2D-fields of oxygen concentration around the aggregate and around the burrow. These results were then used as data set to which 2D model outputs were compared (see experimental profiles in Figs. 5 and 7).

3. The reactive transport model

3.1. Numerical code

Mineralization of organic matter in coastal sediments involves many chemical species in pore water. These species are subjected to biogeochemical reactions and are also transported by diffusion or advection in sediments. These two phenomena (chemistry and

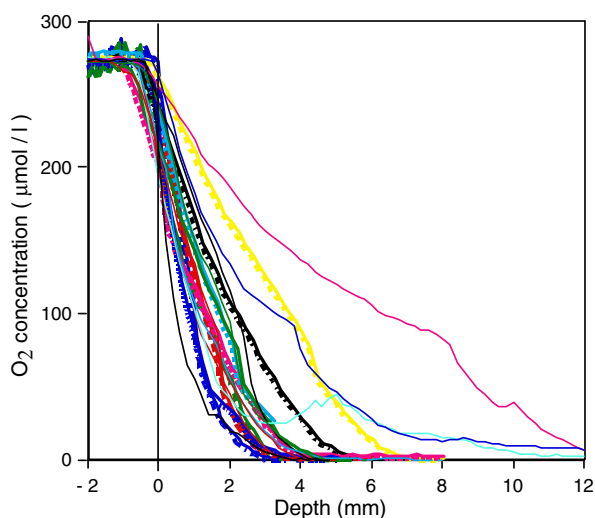


Fig. 1. Oxygen profiles measured in the Gulf of Fos (Mediterranean Sea) showing small-scale spatial heterogeneities (after Rabouille et al. (2003)).

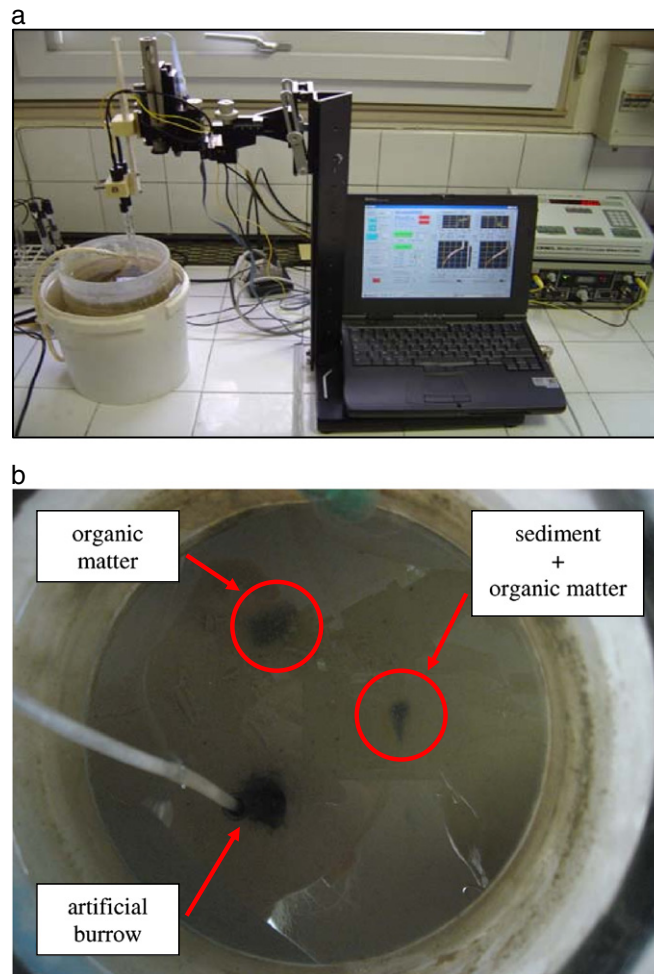


Fig. 2. Experimental set-up (a) global view, (b) zoom on the sediment.

transport) are strongly coupled. To model and simulate such processes in sediments, we used a numerical tool allowing to simulate coupling between geochemistry and transport in porous media (Montarnal et al., 2007). 1D coupled codes have already been used to model the processes that take place in the column of sediments (Giambalvo et al., 2002) but modeling the effects of the presence of 2D heterogeneities in sediments requires to use multidimensional codes (Meile et al., 2003). One of the advantages of the ALLIANCES code we used is precisely its multi-dimensional character (1D, 2D or 3D). The numerical platform ALLIANCES is jointly developed by the French Atomic Commission (CEA), the French Agency for Radioactive Waste Management (ANDRA) and the French Electric Company (EdF) (Montarnal et al., 2006). Its main aim is to allow the simulation of all phenomena governing radioactive waste storage and disposal safety. Therefore, ALLIANCES is not a numerical tool dedicated to simulate phenomena like the early diagenesis but after implementing some additional features it can be used to model reactive transport of various species present in sediments and thus to better understand various processes that take place there.

Modeling reactive transport consists in describing the spatial and temporal evolution of one or several chemical species that are mutually interacting via chemical reactions in liquid or solid phases and are able to be transported. The physical model consists of a set of partial differential equations that describes the transport of species in an aqueous phase that is coupled to a system which gives rise to mutual interactions between the species via chemical reactions. The transport model makes it possible to describe the propagation of elements dissolved in water while subjected to three mechanisms of

migration: Advection, diffusion and kinematic dispersion. For a chemical species i , the transport equation is given by:

$$\frac{\partial \phi C_i}{\partial t} - \vec{\nabla} \cdot (\vec{D}_i \vec{\nabla} C_i - \vec{U} C_i) = \phi R_i(C_{1...n}) + S_i, \quad (1)$$

where C_i is the total concentration of chemical species i in aqueous phase, ϕ , the porosity, $\vec{U}$, the Darcy velocity, $\vec{D}_i$, the diffusion–dispersion tensor, $R_i(C_{1...n})$, the chemical-reaction term and S_i , the source term. In the following, we assume that the porosity does not change with time and that the diffusion coefficient $\vec{D}_i$ is the same for all species. The Darcy velocity is defined as

$$\vec{U} = -\vec{K} \vec{\nabla} h, \quad (2)$$

and is obtained by the resolution of the stationary Darcy equation

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{U} = 0, \quad (3)$$

where h and $\vec{K}$ are the hydraulic head and the hydraulic-conductivity tensor, respectively.

Transport-Chemistry coupling is solved here by a classical sequential iterative approach (SIA) with iterations between transport and chemistry at each time step. Several methods have been reported that use a simultaneous approach (de Dieuleveult et al., 2009; Hammond et al., 2005; Zhao et al., 2002, 2009) but this requires the development of a global code. The alternative choice adopted in ALLIANCES is to couple existing codes that treat each part: Chemistry (Chess, Phreeqc) and transport (Castem, MT3D). The SIA approach is less memory consuming and it has been proved to be efficient provided the time step is well adapted (Barry et al., 1997; Kanney et al., 2003; Yeh and Tripathi, 1991). Moreover, the SIA method can be improved by acceleration methods (Bouillard et al., 2005).

In the present paper, we use the Cast3M code to solve the transport part (Bernard-Michel et al., 2003) and the Chess code to solve the geochemical part (van der Lee and de Windt, 2002). The chemical-reaction term $R_i(C_{1...n})$ in the transport equation Eq. (1) comes from a geochemical-balance calculation. The geochemical models allow to account for aqueous speciation, dissolution–precipitation when it's in equilibrium or subjected to a kinetic law, and for sorption.

3.2. Geochemical modeling

Organic matter is a chemical structure made up of large molecules, with various compounds (proteins, lipids, sugars, amino-acids). Many models were developed in order to simulate the mineralization properties of the organic matter with respect to the oxidants (for example oxygen). As the organic matter is not taken into account in the basic ALLIANCES geochemical database, it was first necessary to define this new species together with the following reactions in which it participates: Degradation of organic matter by aerobic respiration, denitrification, sulfate reduction and metal reduction (see Table 1). In these reactions, the organic matter is noted OM_{red} but in the ALLIANCES geochemical database, each new reaction must correspond to the definition of a new species. Hence, we used artificial new minerals (noted $OM_{ppt,i}$, with $i=1...5$ in Table 1) and artificial aqueous species (noted Mn_{ox} and Fe_{ox} in Table 1) to define the various reactions which involve the organic matter. Each of these reactions is a kinetically controlled reaction modeled by using multiplicative Monod kinetics (Giambalvo et al., 2002) as follows:

$$Rate = R \times I \frac{[Ox]}{K_{ox} + [Ox]} [OM_{red}], \quad (4)$$

where R is the rate constant, I takes into account the inhibition of a reaction pathway by an energetically more favored pathway, $[Ox]$ is the total concentration of the electron receptor and K_{ox} is the half-saturation

Table 1

Reactions and associated rate laws added to the basic ALLIANCES geochemical database. The species ($OM_{ppt,i} + OM_{red}$) model the organic matter, of the form $(CH_2O)_2$. R_{ox} and R_{anox} are the aerobic and anaerobic organic-carbon degradation rates, respectively. Half-saturation constants are taken from Van Cappellen and Wang (1996).

Reaction	Rate law
Aerobic respiration ($OM_{ppt,1} + OM_{red}$) + $2O_2$ $\rightarrow 2CO_3^{2-} + 4H^+$	$R_1 = R_{ox} \times \frac{[O_2]}{K_{O_2} + [O_2]} \times [OM_{red}]$
Denitrification ($OM_{ppt,2} + OM_{red}$) + $1.6NO_3^-$ $\rightarrow 0.4CO_2 + 1.6HCO_3^- +$ $0.8N_2 + 1.2H_2O$	$R_2 = \frac{4}{5} \times R_{anox} \times \frac{[NO_3^-]}{K_{NO_3} + [NO_3^-]} \times \frac{K_{O_2}}{K_{O_2} + [O_2]} \times [OM_{red}]$
Metal reduction ($OM_{ppt,3} + OM_{red}$) + $4Mn_{ox} + 4H^+$ $\rightarrow 2CO_3^{2-} + 4Mn^{2+} + 4H_2O$	$R_3 = 2 \times R_{anox} \times \frac{[Mn_{ox}]}{K_{Mn_{ox}} + [Mn_{ox}]} \times \frac{K_{NO_3}}{K_{NO_3} + [NO_3^-]} \times \frac{K_{O_2}}{K_{O_2} + [O_2]} \times [OM_{red}]$
($OM_{ppt,4} + OM_{red}$) + $8Fe_{ox} +$ $14CO_2 + 6H_2O$ $\rightarrow 16HCO_3^- + 8Fe^{2+}$	$R_4 = 4 \times R_{anox} \times \frac{[Fe_{ox}]}{K_{Fe_{ox}} + [Fe_{ox}]} \times \frac{K_{Mn_{ox}}}{K_{Mn_{ox}} + [Mn_{ox}]} \times \frac{K_{O_2}}{K_{O_2} + [O_2]} \times [OM_{red}]$
Sulfate reduction ($OM_{ppt,5} + OM_{red}$) + SO_4^{2-} $\rightarrow 2HCO_3^- + H_2S$	$R_5 = \frac{1}{2} \times R_{anox} \times \frac{[SO_4^{2-}]}{K_{SO_4} + [SO_4^{2-}]} \times \frac{K_{Fe_{ox}}}{K_{Fe_{ox}} + [Fe_{ox}]} \times \frac{K_{Mn_{ox}}}{K_{Mn_{ox}} + [Mn_{ox}]} \times \frac{K_{NO_3}}{K_{NO_3} + [NO_3^-]} \times \frac{K_{O_2}}{K_{O_2} + [O_2]} \times [OM_{red}]$
Mn^{2+} and Fe^{2+} oxidation $Fe^{2+} + 0.25O_2 + 1.5H_2O$ $\rightarrow (FeOOH + Fe_{ox}) + 2H^+$ $Mn^{2+} + 0.5O_2 + H_2O$ $\rightarrow (MnO_2 + Mn_{ox}) + 2H^+$	Rate constants (s^{-1}) $R_{ox} = 8.625 \times 10^{-6}$, $R_{anox} = 3.125 \times 10^{-7}$ Half-saturation constants ($mol.l^{-1}$) $K_{O_2} = 2 \times 10^{-5}$, $K_{NO_3} = 5 \times 10^{-6}$, $K_{Mn_{ox}} = 1.6 \times 10^{-2}$, $K_{Fe_{ox}} = 10^{-1}$, $K_{SO_4} = 1.6 \times 10^{-3}$

constant. Furthermore, the formulation of the rate of organic-matter degradation contains an explicit dependence on the organic-carbon concentration $[OM_{red}]$. The values of the half-saturation constants are taken from Van Cappellen and Wang (1996) (see Table 1). The aerobic and anaerobic organic-carbon degradation rates are supposed to be constant in space because the sediment has been homogenized before the experiments. Other reactions which do not directly involve the organic matter (such as nitrification, sulfide oxidation, mineral formations, ...) are automatically taken into account by the use of the basic ALLIANCES geochemical database.

3.3. Numerical simulations

The multidimensional code ALLIANCES has been used to model and simulate laboratory experiments. In the experiments presented in Section 2, the sediment is put into a small coreliner covered by a thin water layer at rest. In our experiments performed in the laboratory at ambient temperature and pressure, we assume that the pore water is incompressible, isothermal and of uniform salinity and that the porosity and permeability remain constant over the sediment domain. Hence, contrary to what happens with the flow in deeper sediments, in this small-scale experiment, we can neglect advective flow caused by the pore fluid pressure gradient (Zhao et al., 2008a) or by sediment flushing (Cook et al., 2006; Munksby et al., 2002). We can also neglect convective flow caused either by the temperature gradient (Nield and Bejan, 1992; Zhao et al., 1997, 2004), by the salinity gradient or by a combination of both (Zhao et al., 2006, 2007). Hence, in the configuration studied here, there is no flow, neither in the water layer, nor in the sediment. The transport of the species is only diffusive. Furthermore, in this experiment without flow, the reactive mass transport system cannot become unstable like a chemical-dissolution front during its propagation within fluid-saturated porous media as reported by Zhao et al. (2008b, 2010a,b).

Two types of simulations have been performed. In a first stage, 2D numerical simulations have been carried out to model the influence of organic-matter aggregates. The sediment is modeled as a 2D-vertical

rectangle under a 1 mm thick seawater layer. For symmetry reasons, it suffices to simulate only half of the domain. The 1200-element mesh is refined near the seawater–sediment interface and near the left hand side where the organic-matter aggregate is located (in red in Fig. 3a): The vertical grid spacing increases from 0.4 mm at the sediment surface to 16 mm at the lower boundary of the model domain. The horizontal grid spacing increases from 0.5 mm to 4 mm (Fig. 3a). The initial chemical compositions of the seawater and of the sediment are different, with initially no oxygen in the sediment pore water (see Table 2). The presence of OM aggregate is modeled by imposing a larger concentration of the OM_{red} species at the top boundary: The value of $[OM_{red}]$ is equal to $4 \times 10^{-3} \text{ mol.l}^{-1}$ within and to $8 \times 10^{-4} \text{ mol.l}^{-1}$ outside the aggregate, respectively.

In a second stage, 2D numerical simulations are performed to model the influence of geometric heterogeneities such as burrow. The system simulated is presented in Fig. 3b. Only half of the domain is simulated. The sea–sediment interface is exactly located at the position determined in the laboratory: It takes into account the 10 mm wide depression in the sediment due to the burrow. The burrow itself is only a few millimeters deep (in red in Fig. 3b). A seawater layer of 1 mm thickness on top of the sediment is incorporated into the model. The $80 \times 80 \text{ mm}^2$ porous medium simulated is a 1316-element mesh bi-dimensional system (see Fig. 3b). The mesh is refined near the seawater–sediment and burrow–sediment interfaces: The vertical grid spacing increases from 0.4 mm at the sediment surface to 3.5 cm at the lower boundary of the model domain. The initial chemical compositions of the seawater and the sediment are different, with no oxygen in the sediment pore water (see Table 2). Oxygen-rich seawater is imposed at the top of the sediment. The same Dirichlet-type boundary condition is imposed at the left-lateral boundary to model the burrow.

4. Results and discussion

Fig. 4 displays a $50 \times 15 \text{ mm}^2$ zoom of the simulated 2D vertical map of O_2 concentration when an organic-matter aggregate is present. The maps are stationary, i.e. steady-state conditions have been reached.

Table 2

Initial and boundary conditions for the simulation. Concentrations are expressed in mol.l^{-1} and '–' stands for concentrations which are not fixed.

	Injected seawater	Seawater zone	Sediment zone
<i>Geochemical data</i>			
pH	7.9	7.38	7.38
$[O_2(aq)]$	2.28×10^{-4}	–	–
$[CO_2(aq)]$	1.82×10^{-3}	1.82×10^{-3}	–
$[NO_3^-]$	1.0×10^{-6}	1.0×10^{-6}	–
$[SO_4^{2-}]$	2.8×10^{-2}	2.8×10^{-2}	1.0×10^{-2}
$[NH_4^+]$	1.0×10^{-6}	1.0×10^{-6}	7.5×10^{-4}
$[Ca^{2+}]$	1.009×10^{-2}	1.009×10^{-2}	–
$[Mn^{2+}]$	0.	0.	–
$[Fe^{2+}]$	0.	0.	–
$[OM_{red}]$	8.0×10^{-4}	8.0×10^{-4}	8.0×10^{-4}
$[FeOOH]$	–	–	2.5×10^{-3}
$[MnO_2]$	–	–	$4. \times 10^{-5}$
$[Fe_{ox}]$	–	–	2.5×10^{-3}
$[Mn_{ox}]$	–	–	$4. \times 10^{-5}$
$[OM_{ppt,i}]$	0.	0.	1.
$[Calcite]$	–	–	5.0×10^{-2}
<i>Other parameters</i>			
ϕ	1.0	1.0	0.9
D	10^{-9}	10^{-9}	3.0×10^{-10}
U	0.	0.	0.

The sediment is completely anoxic except within a thin zone at the sediment–water interface which becomes thinner and thinner near the aggregate. Fig. 5 confirms this behavior. It provides vertical profiles of the oxygen concentration obtained from experiments (symbols) and 2D simulations (lines) at various distances from the aggregate center. The experimental and numerical results are in a quite good agreement. They clearly show the influence of organic-matter aggregates on the oxygen profiles: In the absence of aggregate, the oxygen diffuses about 5 mm downwards, while in the presence of aggregate, the oxygen penetrates less than 1 mm and the oxygen gradient is larger. Laterally, the aggregate influences the O_2 distribution within a radius of a few centimeters, i.e. on a distance equal to 1 or 2 times the aggregate

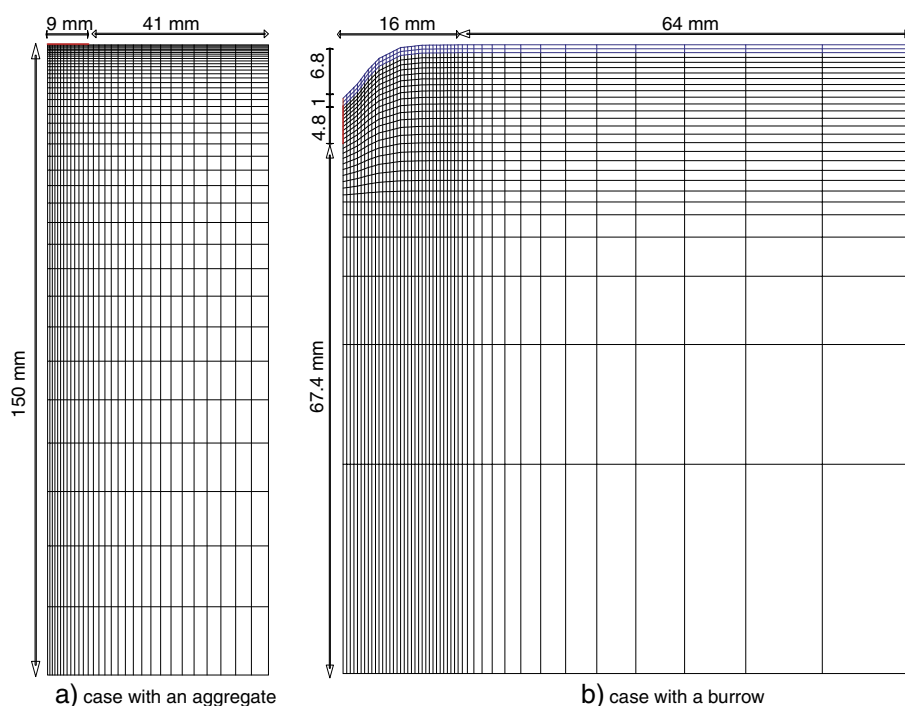


Fig. 3. Simulated porous media geometries and associated meshes: (a) Case of an organic-matter aggregate. (b) Case of a burrow. Blue and black zones correspond to the 1 mm deep seawater zone and the 80 mm deep sediment, respectively. The red segment corresponds to the burrow–sediment interface where Dirichlet-boundary conditions are imposed.

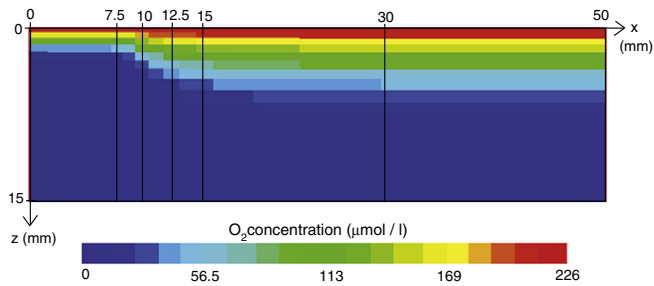


Fig. 4. Case of an organic-matter aggregate. Zoom of the simulated oxygen 2D map: only a 50 × 15 mm² zone close to the aggregate is shown here. Vertical black lines show the location of the vertical profiles given in Fig. 5.

dimension. This enhanced consumption of oxygen is linked to a larger mineralization within the organic aggregate which increases oxygen demand and stops oxygen penetration. The slight discrepancy between the model calculations and the experimental data for the profiles through the aggregate can be attributed to numerical diffusion due to grid spacing.

Fig. 6 displays a 16 × 16 mm² zoom of the simulated 2D vertical map of the O₂ concentration in the presence of a burrow structure. The sediment is completely anoxic except on a few millimeters thick zone around the burrow and at the sediment–water interface. Except for a region very close to the burrow (see the red tail), the oxygen penetration looks very homogeneous over the whole 2D plot, suggesting a limited spatial influence of the burrow on oxygen penetration and flux. Fig. 7 confirms this suggestion. It provides vertical profiles of the oxygen concentration obtained from experiments (symbols) and 2D simulations (lines) at various distances from the burrow. At 16 mm from the burrow, O₂ profiles (red curve and red circles in Fig. 7) are the same as those obtained at 30 mm from the aggregate center (red curve and red circles in Fig. 5). Close to the burrow, the measured oxygen profile follows a “S-shaped” curve and oxygen penetrates deeper by 4 mm in sediment. The penetration length is very sensitive to the burrow depth because it depends on oxygen lateral diffusion. Simulation at a distance of 1 and 2 mm from the burrow shows a similar trend with a “S-shape” profile and deeper penetration.

Experimental and simulated profiles given in Figs. 5 and 7 clearly show that the presence of organic-matter aggregate or burrow modifies the oxygen dynamics: It confers a two-dimensional character to the oxygen distribution in the sediment.

These results can be compared to the in situ studies of Rabouille et al. (2003) performed in the Gulf of Fos in 2000–2001. The authors showed that the sediment was a mosaic of hot spots where the oxygen consumption is higher. The profiles are steep and they penetrate deeper

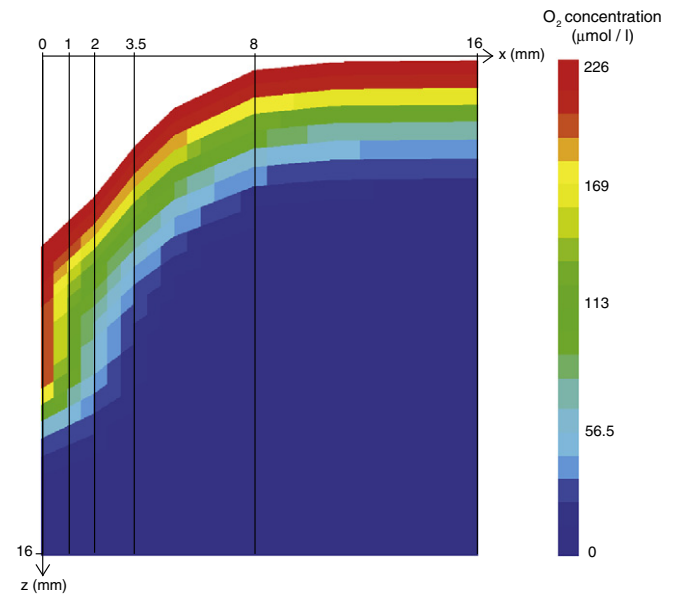


Fig. 6. Case of a burrow. Zoom of the simulated oxygen 2D map: only a 16 × 16 mm² zone close to the burrow is shown here. Vertical black lines show the location of the vertical profiles given in Fig. 7.

into the sediment. According to the 2D model for the processes presented in this study, we can attribute steeper oxygen profiles to organic hot spots and deeper penetrating profiles to lateral diffusion of oxygen from burrows. Whereas the penetration depth is 4 mm on average, a few profiles exhibited a penetration depth that ranged between 8 and 10 mm (Rabouille et al., 2003). This could be attributed to a rapid smoothing out of the deeper penetration (over a lateral distance of 2–3 mm) and to the limited number of burrows at the sediment surface. The investigation of the local variation in the vertical distributions of the solutes within the bioturbated zone of hemipelagic sediments from the Panama Basin also showed that the concentrations of the solutes could vary laterally by a factor of 2–3 within the same depth interval (Aller et al., 1998). X-radiographs of sediment core confirmed that the sediment was a meshwork of biogenic structures: Small burrows of millimetric diameter alternated with larger 1–2 cm diameter burrows. Other simulations (not shown here) illustrated the influence of the burrow geometry (width, depth) on the oxygen spatial distribution. In the simulations presented in Figs. 6 and 7, we took the exact geometry of the artificial burrow. The significant impact that small changes of burrow geometry can have on the reaction balance, has already been noted by Aller and Aller (1998). Their

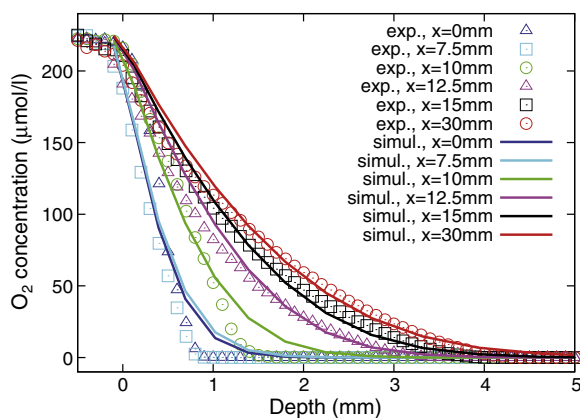


Fig. 5. Case of an organic-matter aggregate. Oxygen profiles at various distances from the aggregate, obtained from measurements (symbols) and from modeling (lines).

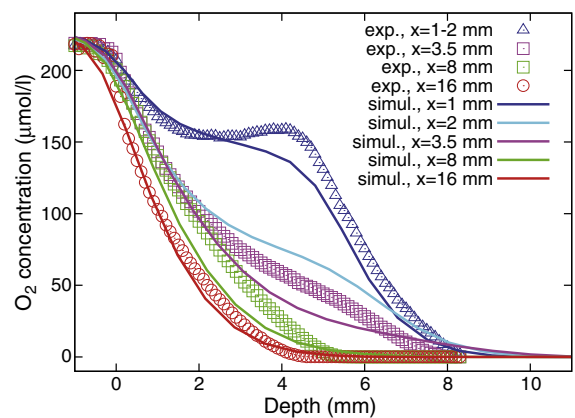


Fig. 7. Case of a burrow. Oxygen profiles at various distances from the burrow, obtained from measurements (symbols) and from modeling (lines).

experiments designed to simulate different degrees of diffusive exchange (and thereby infaunal abundances or activity) demonstrated a regular and strong dependence of anaerobic remineralization on diffusive transport. For example, the net production of NH_4^+ , HPO_4^{2-} , I^- and Mn_2^+ increased when the effective distance between burrows became <2 cm within an otherwise identical anoxic sediment. In our case, the presence of a burrow modifies the O_2 distribution on a lateral scale comprised between 8 and 16 mm, i.e. about 1 or 2 times the width of the geometric perturbation of the sediment due to the burrow. In another setting (Sagami Bay, 1450 m deep), Glud et al. (2005, 2009) concluded that the heterogeneity of the oxygen demand and oxygen penetration into the sediment was linked to “an inhomogeneous distribution of electron donors” (e.g. organic matter). Their combined data set reflected extensive small-scale variability in the O_2 penetration depth with values ranging from 2.6 mm to 17.8 mm: Within a distance of a few centimeters the O_2 penetration could vary by a factor of 6 (Glud et al., 2009). A detailed autocorrelation analysis on the combined data set revealed that the small-scale variability in O_2 penetration depth varied with patch sizes of about 2 cm in diameter. This is of the same spatial scales as for aggregates that settled during the investigation period (Glud et al., 2005). Calibrated experiments and simulations presented in the present paper confirm the influence of aggregates on spatial scales of the same order as their size. Results suggest that hot spots of organic matter can be part of the causes of heterogeneity, but that deep penetrating profiles can be linked to macrofaunal burrows and lateral diffusion of oxygen instead of lower organic-matter mineralization.

5. Conclusion

In the present paper, we have presented a combination of high-resolution oxygen microelectrode profiles measured in sediments with modeling. Laboratory experiments and associated numerical simulations confirmed the important role of biogenic structures and organic-matter aggregates on the dynamics and spatial variability of biogeochemical cycles. Burrows act as preferential pathways for fluids and lead to spatially heterogeneous distributions of the chemical species. In addition, it illustrates the use of a multidimensional reactive code that couples geochemistry and transport in porous media and explicitly takes into account spatial heterogeneities in order to model and explain processes of recycling of organic matter in the first layers of sediments. Future work will consist in using this 2D-reactive code to model in situ measurements such as O_2 2D-maps obtained from planar optodes.

Acknowledgments

This work was supported by the EC2CO-program from the Institut National des Sciences de l'Univers (INSU-France). We would like to thank two anonymous reviewers for their helpful comments and constructive criticism.

References

- Aller, R.C., 1980. Quantifying solute distributions in the bioturbated zone of marine sediments by defining an average microenvironment. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 44, 1955–1965.
- Aller, J.Y., Aller, R.C., 1986. Evidence for localized enhancement of biological associated with tube and burrow structures in deep-sea sediments at the HEEBLE site, western North Atlantic. *Deep-Sea Research* 33, 755–790.
- Aller, R.C., Aller, J.Y., 1992. Meiofauna and solute transport in marine muds. *Limnology and Oceanography* 37, 1018–1033.
- Aller, R.C., Aller, J.Y., 1998. The effect of biogenic irrigation intensity and solute exchange on diagenetic reaction rates in marine sediments. *Journal of Marine Research* 56, 905–936.
- Aller, R.C., Yingst, J.Y., 1985. Effects of the marine deposit-feeders *Heteromastus filiformis* (Polychaeta), *Macoma balthica* (Bivalvia), and *Tellina texana* (Bivalvia) on averaged sedimentary solute transport, reaction rates, and microbial distributions. *Journal of Marine Research* 43, 615–645.
- Aller, R.C., Hall, P.O.J., Rude, P.D., Aller, J.Y., 1998. Biogeochemical heterogeneity and suboxic diagenesis in hemipelagic sediments of the Panama Basin. *Deep-Sea Research* 45, 133–165.
- Barry, D.A., Miller, C.T., Culligan, P.J., Bajracharya, K., 1997. Analysis of split operator methods for nonlinear and multispecies groundwater chemical transport models. *Mathematics and Computers in Simulation* 43, 331–341.
- Bernard-Michel, G., Le Potier, C., Beccantini, A., Chrebi, M., 2003. The ANDRA Couplex 1 test-case: comparisons between finite element, mixed-hybrid-finite element and finite volume discretizations with CAST3M. *Computational Geosciences* 8, 187–201.
- Berner, R.A., 1980. *Early Diagenesis: A Theoretical Approach*. Princeton University Press, Princeton.
- Boudreau, B.P., 1997. *Diagenetic models and their implementation*. Springer, Berlin.
- Bouillard, N., Montarnal, P., Herbin, R., 2005. Development of numerical methods for the reactive transport of chemical species in a porous media: a nonlinear conjugate gradient method. *Proceedings of the International Conference on Computational Methods for Coupled Problems in Science and Engineering*, Santorini, Greece May 2005.
- Cai, W.J., Reimers, C.E., 1995. Benthic oxygen flux, bottom water oxygen concentration and core top organic carbon content in the deep northeast Pacific Ocean. *Deep-Sea Research* 42, 121–128.
- Cook, P.L.M., Wenzhöfer, F., Rysgaard, S., Galaktionov, O.S., Meysman, F.J.R., Eyre, B.D., Cornwell, J., Huettel, M., Glud, R.N., 2006. Quantification of denitrification in permeable sediments: insights from a two-dimensional simulation analysis and experimental data. *Limnology and Oceanography: Methods* 4, 294–307.
- de Dieuleveult, C., Erhel, J., Kern, M.A., 2009. Global strategy for solving reactive transport equations. *Journal of Computational Physics* 228, 6395–6410.
- Dedieu, K., Rabouille, C., Thouzeau, G., Jean, F., Chauvaud, L., Clavier, J., Mesnage, V., Ogier, S., 2007. Benthic O_2 distribution and dynamics in a Mediterranean lagoon (Thau, France): an in situ microelectrode study. *Estuarine, Coastal and Shelf Science* 72, 393–405.
- Froelich, P.N., Klinkhammer, G.P., Bender, M.L., Luedtke, N.A., Heath, G.R., Cullen, D., Dauphin, P., Hammond, D., Hartman, B., Maynard, V., 1979. Early oxidation of organic matter in pelagic sediments of the eastern equatorial Atlantic: suboxic diagenesis. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 43, 1075–1090.
- Furukawa, Y., 2001. Biogeochemical consequences of macrofauna burrow ventilation. *Geochemical Transactions* 11. doi:10.1039/b108381c.
- Gehlen, M., Rabouille, C., Guidi-Guilvard, L.D., Ezat, U., 1997. Drastic changes in deep-sea sediment porewater composition induced by episodic input of organic matter. *Limnology and Oceanography* 42, 980–986.
- Giambalvo, E.R., Steefel, C.I., Fischer, A.T., Rosenberg, N.D., Wheat, C.G., 2002. Effect of fluid-sediment reaction on hydrothermal fluxes of major elements, eastern flank of the Juan de Fuca Ridge. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 66, 1739–1757.
- Glud, R.N., 2008. Oxygen dynamics of marine sediments. *Marine Biology Research* 4, 243–289.
- Glud, R.N., Ramsing, N.B., Gundersen, J.K., Klimant, I., 1996. Planar optodes: a new tool for fine scale measurements of two-dimensional O_2 distribution in benthic communities. *Marine Ecology Progress Series* 140, 217–226.
- Glud, R.N., Tengberg, A., Kuhl, M., Hall, P., Klimant, I., Holst, G., 2001. An in situ instrument for planar optode measurements at benthic interfaces. *Limnology and Oceanography* 46, 2073–2080.
- Glud, R.N., Wenzhöfer, F., Tengberg, A., Middelboe, M., Oguri, K., Kitazato, H., 2005. Distribution of oxygen in surface sediments from central Sagami Bay, Japan: in situ measurements by microelectrodes and planar optodes. *Deep-Sea Research* 52, 1974–1987.
- Glud, R.N., Stahl, H., Berg, P., Wenzhöfer, F., Kitazato, H., 2009. In situ microscale variation in distribution and consumption of O_2 : a case study from a deep ocean margin sediment (Sagami Bay, Japan). *Limnology and Oceanography* 54, 1–12.
- Hammond, G., Valocchi, A., Lichtner, P., 2005. Application of Jacobian-free Newton–Krylov with physics-based preconditioning to biogeochemical transport. *Advances in Water Resources* 28, 359–376.
- Jahnke, R., Heggie, D., Emerson, S., Grundmanis, V., 1982. Pore waters of the central Pacific Ocean: nutrient results. *Earth and Planetary Science Letters* 61, 233–256.
- Kanney, J.F., Miller, C.T., Kelley, C.T., 2003. Convergence of iterative split operator approaches for approximating nonlinear reactive transport problems. *Advances in Water Resources* 26, 247–261.
- Kennish, M.J., 2001. *Practical handbook of marine science*, 3rd ed. CRC Press, Boca Raton, Florida.
- Lansard, B., Rabouille, C., Massias, D., 2003. Variability in benthic oxygen fluxes during the winter-spring transition in coastal sediments: an estimation by in situ microelectrodes and laboratory minielectrodes. *Oceanologica Acta* 26, 269–279.
- Meile, C., Tuncay, K., Van Capellen, P., 2003. Explicit representation of spatial heterogeneity in reactive transport models: application to bioturbated sediments. *Journal of Geochemical Exploration* 78–79, 231–234.
- Meysman, F.J.R., Galaktionov, O.S., Gribsholt, B., Middelburg, J.J., 2006. Bioirrigation in permeable sediments: advective pore-water transport induced by burrow ventilation. *Limnology and Oceanography* 51, 142–156.
- Montarnal, P., Bengaouer, A., Chavant, C., Loth, L., 2006. ALLIANCES: simulation platform for nuclear waste disposal. *Proceedings of the XVI International Conference on Computational Methods in Water Resources*, Copenhagen, Denmark, June 2006.
- Montarnal, P., Mügler, C., Colin, J., Descostes, M., Dimier, A., Jacquot, E., 2007. Presentation and use of a reactive transport code in porous media. *Physics and Chemistry of the Earth* 32, 507–517.
- Munksby, N., Benthien, M., Glud, R.N., 2002. Flow-induced flushing of relict tube structures in the central Skagerrak (Norway). *Marine Biology* 141, 939–945.
- Nield, D.A., Bejan, A., 1992. *Convection in Porous Media*. Springer-Verlag, New York.

- Rabouille, C., Gaillard, J.-F., 1991. Towards the EDGE: Early Diagenetic Global Explanation. A model depicting the early diagenesis of organic matter, O₂, NO₃, Mn, and PO₄. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 55, 2511–2525.
- Rabouille, C., Denis, L., Dedieu, K., Stora, G., Lansard, B., Grenz, C., 2003. Oxygen demand in coastal marine sediments: comparing in situ microelectrodes and laboratory core incubations. *Journal of Experimental Marine Biology and Ecology* 285/286, 49–69.
- Reimers, C.E., 1987. An in situ microprofiling instrument for measuring interfacial porewater gradients: methods and oxygen profiles from the North Pacific Ocean. *Deep-Sea Research A: Oceanographic Research Papers* 34, 2019–2035.
- Revsbech, N.P., Madsen, B., Jørgensen, B.B., 1986. Oxygen production and consumption in sediments determined at high spatial resolution by computer simulation of oxygen microelectrode data. *Limnology and Oceanography* 31, 293–304.
- Soetaert, K., Herman, P.M.J., Middelburg, J.J., 1996. A model of early diagenetic processes from the shelf to abyssal depths. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 60, 1019–1040.
- Van Cappellen, P., Wang, Y., 1996. Cycling of iron and manganese in surface sediments: a general theory for the coupled transport and reaction of carbon, oxygen, nitrogen, sulfur, iron and manganese. *American Journal of Science* 296, 197–243.
- van der Lee, J., de Windt, L., 2002. Chess Tutorial and CookBook, version 3.0, ENSMP-CIG LHM/RD/02/13.
- Wenzhöfer, F., Glud, R.N., 2004. Small-scale spatial and temporal variability in coastal benthic dynamics: effects of fauna activity. *Limnology and Oceanography* 49, 1471–1481.
- Yeh, G.-T., Tripathi, V.S., 1991. A model for simulating transport of reactive multispecies components: model development and demonstration. *Water Resources Research* 27, 3075–3094.
- Zhao, C., Mühlhaus, H.B., Hobbs, B.E., 1997. Finite element analysis of steady-state natural convection problems in fluid-saturated porous media heated from below. *International Journal for Numerical and Analytical Methods in Geomechanics* 21, 863–881.
- Zhao, C., Lin, G., Hobbs, B.E., Wang, Y., Mühlhaus, H.B., Ord, A., 2002. Finite element modeling of reactive fluids mixing and mineralization in pore-fluid saturated hydrothermal/sedimentary basins. *Engineering Computations* 19, 364–387.
- Zhao, C., Hobbs, B.E., Ord, A., Peng, S., Mühlhaus, H.B., Liu, L., 2004. Theoretical investigation of convective instability in inclined and fluid-saturated three-dimensional fault zones. *Tectonophysics* 387, 47–64.
- Zhao, C., Hobbs, B.E., Ord, A., Kühn, M., Mühlhaus, H.B., Peng, S., 2006. Numerical simulation of double-diffusion driven convective flow and rock alteration in three-dimensional fluid-saturated geological fault zones. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering* 195, 2816–2840.
- Zhao, C., Hobbs, B.E., Ord, A., Hornby, P., Peng, S., Liu, L., 2007. Mineral precipitation associated with vertical fault zones: the interaction of solute advection, diffusion and chemical kinetics. *Geofluids* 7, 3–18.
- Zhao, C., Hobbs, B.E., Ord, A., 2008a. Convective and Advective Heat Transfer in Geological Systems. Springer, Berlin.
- Zhao, C., Hobbs, B.E., Hornby, P., Ord, A., Peng, S., Liu, L., 2008b. Theoretical and numerical analyses of chemical-dissolution front instability in fluid-saturated porous rocks. *International Journal for Numerical and Analytical Methods in Geomechanics* 32, 1107–1130.
- Zhao, C., Hobbs, B.E., Ord, A., 2009. Fundamentals of Computational Geoscience: Numerical Methods and Algorithms. Springer, Berlin.
- Zhao, C., Hobbs, B.E., Ord, A., 2010a. Theoretical analyses of nonaqueous phase liquid dissolution-induced instability in two-dimensional fluid-saturated porous media. *International Journal for Numerical and Analytical Methods in Geomechanics* 34, 1767–1796.
- Zhao, C., Hobbs, B.E., Ord, A., 2010b. Theoretical and numerical investigation into roles of geofluid flow in ore forming systems: integrated mass conservation and generic model approach. *Journal of Geochemical Exploration* 106, 251–260.