



HAL
open science

Impact des structures géologiques sur les échanges entre fractures et matrice dans les milieux poreux fracturés.

Delphine Roubinet

► To cite this version:

Delphine Roubinet. Impact des structures géologiques sur les échanges entre fractures et matrice dans les milieux poreux fracturés.. Hydrologie. Université Rennes 1, 2010. Français. NNT: . tel-00567067

HAL Id: tel-00567067

<https://theses.hal.science/tel-00567067>

Submitted on 18 Feb 2011

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

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



THÈSE / UNIVERSITÉ DE RENNES 1
sous le sceau de l'Université Européenne de Bretagne

pour le grade de
DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE RENNES 1

Mention : Sciences de la Terre

Ecole doctorale Sciences De La Matière

présentée par

Delphine Roubinet

préparée à l'unité de recherche UMR 6118 GR
Géosciences Rennes
UFR Sciences et Propriétés de la Matière

**Impact des structures
géologiques sur les
échanges entre fractures
et matrice dans les
milieux poreux
fracturés**

**Thèse soutenue à Rennes
le 3 Décembre 2010**

devant le jury composé de :

Jocelyne ERHEL

Directrice de recherche à l'INRIA (Rennes) / *présidente*

Philippe ACKERER

Directeur de recherche au CNRS, Université de
Strasbourg / *rapporteur*

Benoît NOETINGER

Ingénieur de recherche à l'IFP (Paris) / *rapporteur*

Jesus CARRERA

Professeur au CSIC (Espagne) / *examineur*

Olivier BOUR

Professeur à l'Université de Rennes 1 / *examineur*

Jean-Raynald de DREUZY

Chargé de recherche au CNRS, Université de Rennes 1 /
co-directeur de thèse

Remerciements

Je tiens avant tout à remercier ma famille qui m'a toujours soutenue dans mes études et a eu confiance en mes choix. Et plus particulièrement, je les remercie d'avoir accepté (et d'accepter encore!) que mes choix professionnels obligent à un éloignement géographique et donc à moins de temps passé ensemble.

D'un point de vue professionnel, je remercie tous les membres de l'équipe EAU qui m'ont accueillie il y a quatre ans de cela, initialement pour un stage de Master2. J'ai trouvé au sein de cette équipe toutes les ressources nécessaires, aussi bien humaines, techniques que scientifiques, pour mener à bien mon travail de thèse avec des conseils avisés tout en étant dans des conditions de travail agréables. Durant ma thèse, j'ai aussi eu l'occasion de découvrir les joies de l'enseignement, particulièrement grâce à Yves Méheust et Olivier Bour qui m'ont intégrée de bon cœur à l'équipe enseignante.

Ma thèse portant principalement sur la modélisation avec une grande partie de création de méthodes numériques, je n'aurai pu être aussi efficace dans mes développements sans la collaboration avec l'équipe SAGE de l'INRIA. Les fameux repas H2OLAB, les coups de fil à Nadir pour tous les problèmes pratiques de plateforme, les discussions d'organisation de plateforme avec Géraldine et Baptiste et les points de vue mathématiciens de Jocelyne ne sont qu'un résumé de la relation avec cette équipe. Je ne dis pas que j'ai adoré chacun de ces moments mais ils ont été essentiels à l'avancé de ma thèse aussi bien d'un point de vue pratique que d'un point scientifique en me donnant les outils indispensables pour mener mes travaux et en permettant d'élargir mon champ de vision scientifique.

De manière plus large, je voudrais remercier toutes les personnes qui m'ont soutenue durant ma thèse. En pensant à ceux qui sont là depuis le début et avec qui j'ai eu énormément de plaisir à partager ces quatre années à Rennes. Je pense en premier lieu à Etienne avec qui j'ai partagé les grands doutes de la thèse et qui a toujours su m'écouter dans ces moments là. Je pense aussi à Alex, Kevin et Stéphane qui ont été là dans les bons comme dans les mauvais moments de cette période de ma vie et qui seront toujours présents dans mes souvenirs de soirées les plus mémorables! Et puis il y a tous ceux que j'ai rencontrés au fur et à mesure au laboratoire, ces fameux géologues sans qui l'ambiance serait bien triste. Parmi les moments joyeux entre doctorants qui rendent la thèse plus agréable, je me souviendrai plus particulièrement des pauses clopes, des verres en ville après le travail, des dimanches passés

au labo, des apéros le soir au labo avec les anciens (Fabien, Elise, Nolwenn, Erwan, Nuno, Nico, Seb, Laure, Cécile...), les plus récents (Céline, Guilhem, Christoff, Eline, Claudine, Gloria, Romain, Pipo, Yannick, les Morganes, Gwen, Fabou...) et bien sûr les meilleurs des ECOBIO, les Stéphanes! Je n'oublie pas non plus Jérémy et Maëlle qui m'ont permis de passer des soirées plus reposantes et nourrissantes...

Pour la période de stress de fin de thèse, je remercie chacun des attentions particulières que l'on donne à un thésard à ce moment là, comme on le ferait pour une femme prête à accoucher! Je pense plus particulièrement à Stéphane qui m'a supporté pendant la période de rédaction et à Jérémy qui est venu régulièrement vérifier mon état mental. Il y a aussi toutes les personnes sans qui ma soutenance n'aurait pas été aussi appréciée. De ceux qui ont dû supporter ma soutenance un nombre de fois inacceptable (Jérémy, Seb et Alex) à ceux qui ont eu droit aux versions qui n'auraient pas dû exister (Jean-Raynald et Laurent). Je remercie aussi Tanguy pour ces conseils avisés et Romain pour sa présence aux répétitions.

Finalement, je terminerai cette partie de remerciements en évoquant la personne sans qui rien de tout cela n'aurait été possible, mon directeur de thèse Jean-Raynald de Dreuzy. Rien de tout cela n'aurait été possible financièrement car c'est lui qui s'est démené pour me trouver un financement de thèse à la fin de mon stage de Master2. Mais surtout rien de tout cela n'aurait été possible scientifiquement. Jean-Raynald m'a tout appris de la recherche, aussi bien du point de vue du fonctionnement que des problématiques. Il a su m'orienter sur des travaux pertinents en me donnant les connaissances clés qui me manquaient. Il a eu la pédagogie (et la patience!) de me suivre dans mes travaux tout en me laissant développer mes idées et me former aux problématiques de la recherche. Il m'a soutenu dans mes initiatives et m'a poussé à les mener et à les valoriser jusqu'au bout. Alors bien sûr, tous ces bons côtés ont été au prix d'un trajet Poitiers - Rennes en passant par Bordeaux, des cris de ses enfants au téléphone pendant mes soirées au labo et de blagues et anecdotes que j'ai entendu un nombre inacceptable de fois... Mais tous ces côtés humains sont tellement essentiels quand on s'investit sur un travail aussi prenant qu'une thèse! Je pense que je ne pourrai pas écrire tout ce que m'a apporté ces trois années de travail avec Jean-Raynald, alors pour résumer je dirai simplement que c'est une personne que j'apprécie énormément aussi bien scientifiquement qu'humainement et qui m'a donné toutes les clés pour me lancer dans une carrière scientifique.

Table des matières

1. Introduction	1
2. La problématique de l'échange fracture matrice	3
2.1. Evidences des transferts entre fractures et "matrice" et enjeux sociétaux	3
2.1.1. Sites contaminés	6
2.1.2. Stockage d'éléments	7
2.1.3. Exploitation de ressources	10
2.1.4. Géothermie	11
2.2. Moteurs physiques contribuant aux échanges entre fractures et matrice	15
2.3. Modèles d'échange entre fracture et matrice	19
2.3.1. Formalisme des modèles double-porosités	19
2.3.2. Modélisation simplifiée de l'échange fracture-matrice	21
2.3.3. Autres formulations de l'échange fracture-matrice	23
2.3.4. Application aux études de sites	26
2.3.5. Alternatives aux modèles double-porosités	29
2.4. Définition des structures et impact de leur organisation sur les échanges fracture-matrice	31
2.5. Discussion	35
3. Observations et évaluation de l'impact des structures géologiques sur l'échange fracture matrice	37
3.1. Observations des effets des structures géologiques sur l'échange fracture matrice	37
3.2. Evaluation de l'effet des structures sur les échanges entre fractures et matrice	41
3.2.1. Evaluation de l'effet des propriétés physiques de la matrice	41
3.2.2. Evaluation de l'effet des propriétés géométriques et hydrauliques de la fracture ..	67
3.2.3. Evaluation de l'effet de l'organisation du réseau de fractures	69

4. Prise en compte des effets des structures dans la modélisation des milieux poreux fracturés	85
4.1. Le modèle double-porosit� discret	85
4.2. Homog�n�isation des structures	87
4.3. Repr�sentation de l'�change.....	

1. Introduction

Les milieux poreux fracturés sont des milieux composés d'une roche présentant des zones de fracturation. Géologiquement, ces milieux sont caractérisés par la présence de fractures sur plusieurs échelles avec des propriétés hétérogènes créant des zones fortement perméables à comparer de la roche environnante. Hydrauliquement, ces milieux sont caractérisés par des temps de réponses courts correspondant aux sollicitations des structures fortement perméables et des temps de réponses longs correspondant aux sollicitations des structures faiblement perméables. Ce type de milieux est impliqué dans de nombreux enjeux sociétaux tels que l'étude de sites contaminés, le stockage d'éléments et l'exploitation de ressources. La préservation et/ou l'exploitation des milieux poreux fracturés nécessitent une compréhension approfondie de leur comportement basée sur l'étude de la dynamique et de l'ampleur de leur réaction face à diverses sollicitations.

Diverses études de sites ont montré le rôle joué par les fractures dans le comportement du milieu, mais aussi le rôle joué par la roche, appelée généralement matrice. Les fractures impliquent la présence de zones de circulation rapide des fluides et/ou des solutés alors que la matrice, jouant un rôle de stockage, peut augmenter les quantités de ressources potentiellement exploitées ou les temps de restitution des éléments. La prise en compte de ces deux structures, fractures et matrice, et de leurs interactions est alors indispensable pour avoir une vision pertinente de ces milieux.

La compréhension des milieux poreux fracturés se fait à plusieurs niveaux et par différentes méthodes de l'échelle du site à l'échelle du laboratoire en passant par la modélisation. Les études à l'échelle du site visent à caractériser la géologie du milieu et à identifier les processus contribuant à son comportement par des observations directes ou indirectes. Les études à l'échelle du laboratoire permettent d'identifier plus précisément les processus physiques ou chimiques et de mettre en évidence les paramètres clés qui leur sont associés. La modélisation, analytique ou numérique, offre la possibilité de simuler le comportement du site avec un contrôle total des paramètres de simulations. Les hypothèses formulées à partir des données collectées peuvent être vérifiées par la modélisation aidant ainsi à la caractérisation du site et à l'identification des processus clés. La capacité à reproduire le comportement du site aide à la compréhension, à l'exploitation et à la préservation des sites.

Le principal défi de la modélisation des milieux poreux fracturés réside en la représentation des hétérogénéités géométriques et physiques caractérisant ces milieux. Plusieurs ordres de

grandeur peuvent séparer les longueurs des fractures ainsi que les épaisseurs des fractures et des blocs de roche. Du point de vue des processus physiques, les phénomènes à considérer sont différents suivant le choix de représentation des structures et leur dynamique couvre une large de gamme de temps. La complexité du milieu et la considération des capacités numériques impliquent l'utilisation de modèles conceptuels dont les hypothèses découlent des observations du comportement du milieu naturel. Une représentation exacte du milieu naturel étant impossible, il s'agit de déterminer quelles sont les propriétés caractéristiques de ces milieux, c'est-à-dire les propriétés principales "responsables" de leur comportement. L'objectif de cette thèse est alors de mettre en évidence l'impact de l'hétérogénéité des structures géologiques sur les réactions du milieu et plus particulièrement sur les interactions entre les fractures et la matrice du milieu. Notre étude s'appliquera à étudier l'impact des propriétés géométriques et physiques des fractures et de la matrice de l'échelle locale de la fracture et du bloc matriciel à l'échelle globale du réseau de fractures. Une première partie du travail a consisté en la mise au point de méthodes d'évaluation des effets des structures et de leurs propriétés sur les échanges et une seconde partie en l'exploitation de ces méthodes. Au final, nous proposons un modèle double-porosité discret prenant en compte les propriétés du milieu identifiés comme caractéristiques de son comportement.

Le manuscrit se décompose en quatre parties principales. La première partie est dédiée à l'état de l'art sur les échanges de flux et de solutés entre les fractures et la matrice, la deuxième partie expose des observations et des méthodes analytiques et numériques d'évaluation des impacts des structures géologiques sur les échanges et la troisième consiste en la prise en compte des effets précédemment mis en évidence dans la modélisation des milieux poreux fracturés. Dans la quatrième partie, certains des concepts révélés pour les milieux poreux fracturés sont appliqués à la modélisation du phénomène de dénitrification.

2. La problématique de l'échange fracture matrice

2.1. Evidences des transferts entre fractures et “matrice” et enjeux sociétaux

Les milieux poreux fracturés sont composés de fractures, de taille et de perméabilité variables, et d'une roche poreuse. En termes de dynamique d'écoulement et de transport, deux structures sont classiquement identifiées : une structure à forte perméabilité correspondant aux fractures dominantes et une structure à faible perméabilité, appelée matrice et correspondant aux fractures peu contributives (fissures ou microfissures) et à la roche. Les écoulements étant rapides dans la première structure et lents dans la seconde, l'effet de la matrice sur la circulation des flux et des solutés pourrait alors être considéré comme négligeable. Cependant, suivant l'amplitude et la dynamique de l'échange entre ces deux structures (échange fracture-matrice), la prise en compte de l'effet de la matrice sur les écoulements principaux peut être primordiale pour la compréhension du milieu. En effet, la matrice peut jouer le rôle d'une zone de stockage qui stocke les fluides et piège les solutés lors des échanges des fractures vers la matrice et qui les restitue lors des échanges de la matrice vers les fractures.

Les essais de pompage effectués sur le site Pocheon (Corée du Sud) mettent en évidence la présence de deux milieux aux temps caractéristiques de réponse différents (forme en baïonnette de la courbe de rabattement) [*Hamm and Bidaux, 1996*]. Ce type d'observations est à l'origine de la création du concept de modèles double-porosités [*Barenblatt et al., 1960; Warren, 1963*] considérant l'existence d'une porosité primaire (faiblement perméable) et d'une porosité secondaire (fortement perméable) dans les milieux poreux fracturés. La Figure 1a et la Figure 1b montrent que les modèles classiques simple porosité (nommés Barker model et représentés par les courbes en trait plein et pointillé), ne représentant que le temps caractéristique de réponse des fractures, ne rendent pas compte du comportement du milieu. Au contraire, les modèles double-porosités (Boulton-Streltsova model et Dual Porosity Fractal model représentés par les courbes en trait plein et pointillé dans la Figure 1c et la Figure 1d), en tenant compte des deux types de milieux et de leurs échanges, reproduisent bien la dynamique du milieu. Dans ces derniers modèles, la composition de chacune des deux porosités est subjective et dépend du type de milieu et de la représentation conceptuelle choisie. En se basant uniquement sur les propriétés structurales, la distinction peut être simplement faite entre l'ensemble des fractures et la roche alors qu'en se basant sur les

propriétés hydrauliques la distinction sera faite entre les fractures dominantes et les fractures peu contributives plus la roche. Dans la suite du manuscrit, les termes « matrice » et « fractures » seront utilisés pour évoquer les porosités primaire et secondaire du milieu et une discussion sera menée sur les choix de distinction des structures.

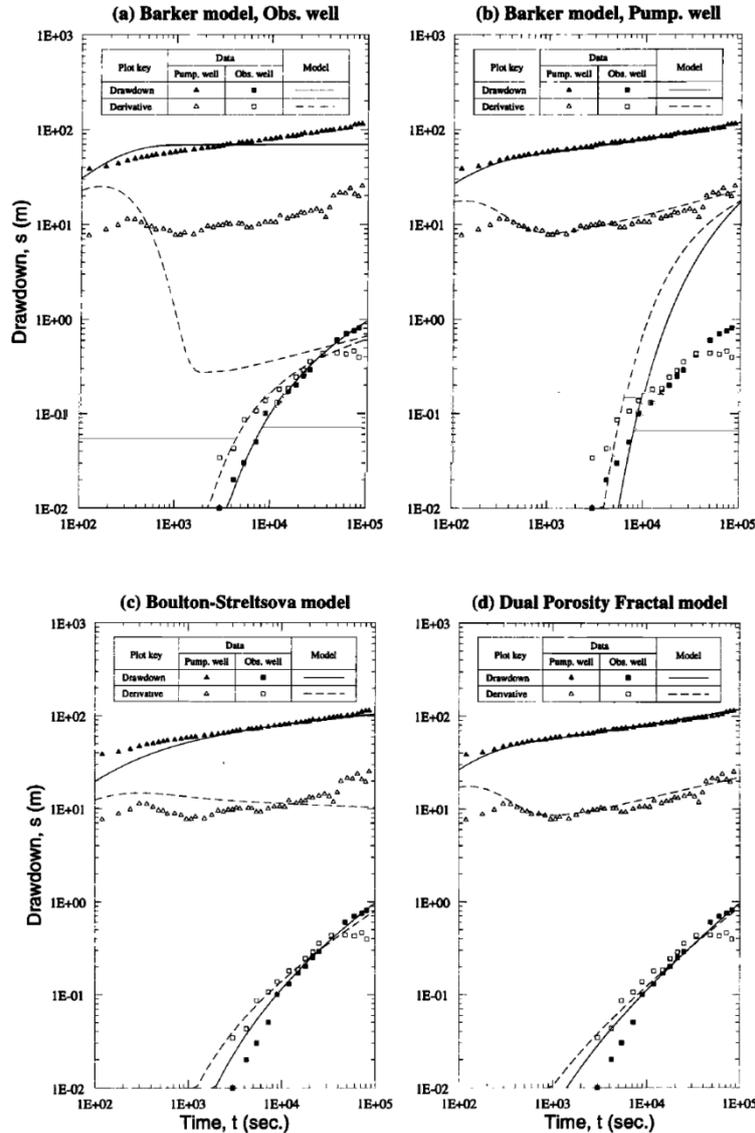


Figure 1 - Essai de pompage sur le site Pocheon (Corée du Sud) caractérisé par une roche granitique du Précambrien [Hamm and Bidaux, 1996].

Les données observées sont représentées par des symboles avec des symboles pleins pour les observations de rabattement et des symboles vides pour leur dérivée. Les triangles et les carrés correspondent respectivement aux données observées au niveau du puits de pompage et d'un puits d'observation. Les données simulées par les modèles sont représentées par des traits pleins pour le rabattement et par des pointillés pour leur dérivée. Les simulations sont effectuées avec (a) et (b) un modèle simple-porosité ne représentant que les temps de réponse de la porosité secondaire (fractures) et (c) et (d) un modèle double-porosité représentant les temps de réponse des porosités primaire et secondaire (matrice et fractures). Les données observées ne peuvent pas être reproduites en utilisant un modèle simple-porosité.

Différents tests de traçage montrent l'importance de la prise en compte des interactions entre fractures et matrice pour la compréhension de la dynamique des temps de résidence des

solutés. La courbe de restitution obtenue lors de l'essai de traçage effectué sur le site Kamaishi (Japon) montre à la fois des temps de restitution rapides ($t < 50h$) et des temps de restitution plus lents ($t > 50h$) significatifs de deux milieux aux propriétés de transport très différenciées [Dershowitz and Miller, 1995; Neretnieks, 1980] (Figure 2). En négligeant la matrice et ses interactions avec le réseau de fractures principal (courbe noire), la concentration de solutés restituée à des temps inférieurs à 50 heures est largement surestimée impliquant une sous-estimation des temps de résidence du soluté dans le milieu. Au contraire, en tenant compte de l'effet de la matrice, c'est-à-dire de sa capacité à stocker et à retarder les solutés, les simulations prédisent correctement la quantité de solutés restituée durant les premiers temps de l'expérience et la dynamique du milieu est bien représentée (courbe rouge).

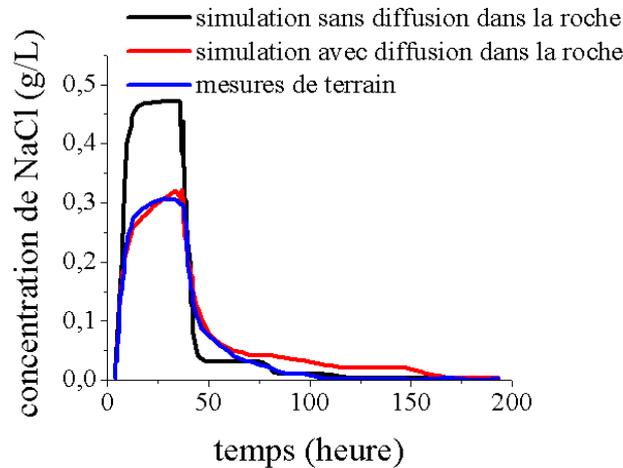


Figure 2 - Essai de traçage sur le site de Kamaishi (Japon) caractérisé par une roche calcaire du Permien avec des intrusions de granite du Crétacé (modifié à partir de [Dershowitz and Miller, 1995]). La courbe bleue représente les données observées, la courbe noire les données simulées par un modèle ne tenant compte que des zones d'écoulements rapides et la courbe rouge les données simulées par un modèle tenant compte des zones d'écoulements rapides (fractures) et des zones de stockage potentiel (roche). L'utilisation d'un modèle ne représentant que les écoulements principaux implique une sous-estimation des temps d'arrivée du soluté.

Novakowski and Lapcevic [1994] effectue un essai de traçage sur une fracture horizontale dans du marne de l'Ordovicien et simule cette expérience avec un modèle semi-analytique prenant en compte la matrice par la représentation de sa porosité avec le paramètre θ_m (Figure 3). Lorsque la matrice est supposée imperméable ($\theta_m=0$), et donc sans effet sur les temps de résidence du soluté, la courbe de restitution simulée sous-estime la concentration de traceur restituée aux temps longs de l'expérience (Figure 3a). Au contraire, en prenant en compte la possibilité de migration des solutés dans la matrice ($\theta_m>0$), la quantité de solutés restituée aux temps longs de l'expérience est en accord avec les observations (Figure 3b). La superposition

des données observées et simulées pour $\theta_m > 0$ montre le comportement double-porosités du milieu étudié et l'importance de la prise en compte des interactions entre ces deux porosités.

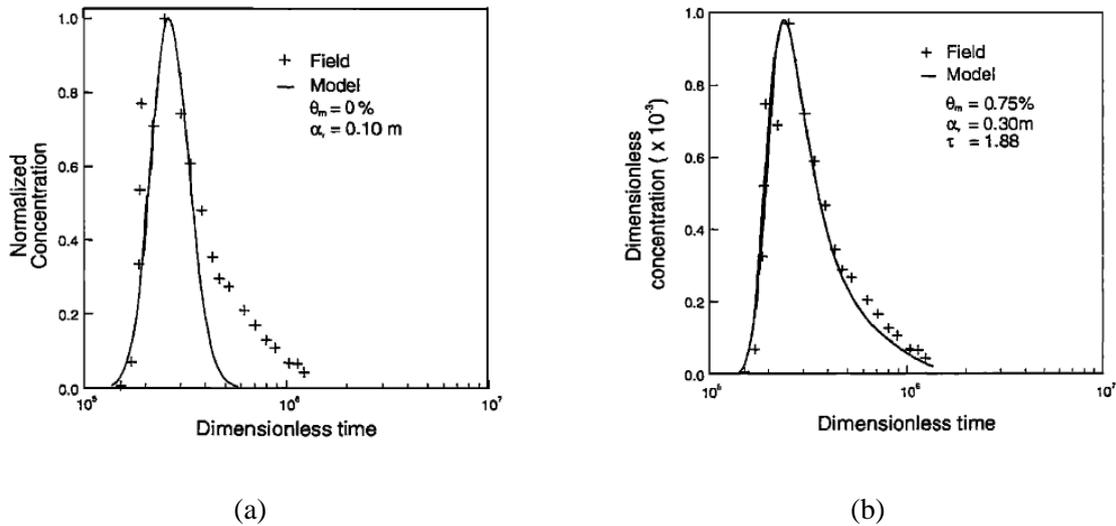


Figure 3 – Essai de traçage pour une fracture horizontale dans du marne de l'Ordovicien [Novakowski and Lapcevic, 1994].

Les données observées sont représentées par des symboles et les données simulées par la courbe en trait plein.

Les simulations sont faites avec (a) un modèle négligeant les interactions fracture-matrice et (b) un modèle prenant en compte ces interactions. Le modèle négligeant l'effet de la matrice n'est pas capable de reproduire les temps longs de la courbe de restitution observée. Les différences entre les deux modèles sont très significatives étant donné que les schémas sont en échelle logarithmique en temps.

Les exemples précédents montrent que la compréhension du comportement des milieux poreux fracturés, du point de vue de l'écoulement des fluides et/ou du transport de solutés, nécessite la prise en compte de l'ensemble des structures du milieu (réseau de fractures et matrice environnante) et de leurs interactions. Ces exemples particuliers sont représentatifs d'une problématique présente dans de nombreux domaines aux impacts sociétaux forts. Entre autres, la compréhension des milieux poreux fracturés est essentielle pour la préservation de ces milieux face aux pollutions, leur utilisation potentiel comme zone de stockage ou l'exploitation des ressources contenues dans ces milieux.

2.1.1. Sites contaminés

Les milieux poreux fracturés peuvent être sujet à des contaminations d'origines diverses. De par la complexité des structures géologiques et des phénomènes physiques caractéristiques de ces milieux, la prédiction du temps d'impact d'une pollution sur un site doit faire intervenir les différents compartiments et structures caractéristiques des milieux. De même, les tentatives de dépollution de tels sites doivent tenir compte de l'accessibilité des différents types de porosité. Bien que la majorité des solutés circule rapidement par les fractures

dominantes, une partie non négligeable peut être retenue par la roche et restituée à des temps de plusieurs ordres de grandeur supérieur aux premiers temps d'arrivée. La prise en compte de l'effet de la matrice sur les temps de résidence est alors indispensable pour déterminer l'ampleur de la gamme des temps de restitution des solutés. Dans le cas d'une dépollution de site contaminé à l'uranium, *Rotter et al.* [2008] montrent les différentes prédictions obtenues entre le modèle SP (Simple Porosité), ne prenant pas en compte la matrice, et le modèle DP (Double-porosité), prenant en compte la matrice (Figure 4). La prise en compte de la matrice, et donc la représentation des échanges fracture-matrice, modifie les prédictions en multipliant par trois le temps nécessaire pour mobiliser l'uranium. L'importance du retard pouvant être induit par la matrice est aussi démontrée par l'application du modèle de *Polak et al.* [2003b] sur le site du désert Negev (Israël). D'après leurs prédictions, l'injection d'un contaminant dans le milieu pendant 20 ans impliquera une émanation du polluant pendant 200 ans due à la porosité primaire du milieu.

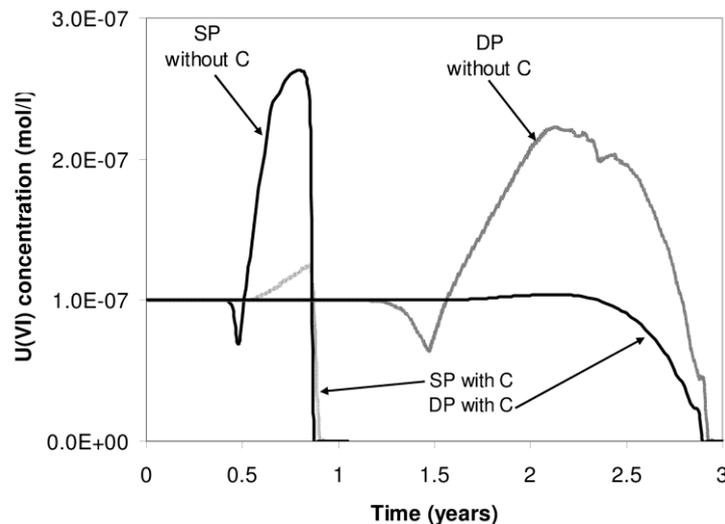


Figure 4 – Prédiction des temps de restitution de l'uranium sur le site d'expérimentation du laboratoire national d'Oak Ridge (US) [*Rotter et al.*, 2008].

Les courbes notées "SP" (Simple Porosité) représentent les prédictions sans prendre en compte la matrice et les courbes notées "DP" (Double-porosité) représentent les prédictions avec prise en compte de la matrice. Ces prédictions mettent en évidence le retard induit sur les temps de réponse en prenant en compte la porosité primaire.

2.1.2. Stockage d'éléments

Les milieux poreux fracturés composés d'une roche de faible perméabilité ont souvent été envisagés comme zones de stockage de déchets énergétiques. La quasi-imperméabilité de la roche en fait des milieux attractifs pour le confinement d'éléments potentiellement nocifs (stockage de CO₂, stockage de déchets nucléaires...).

Dans le cas des déchets radioactifs, la présence de fractures peut accélérer dramatiquement les temps de transfert des radionucléides. Cependant, cet effet peut être contrecarré par le piégeage des éléments par diffusion dans la roche. Les échanges fracture-matrice sont alors un élément essentiel pour évaluer la sûreté du stockage dans ce type de milieux [Andersson *et al.*, 2004]. Le retard dans le transport des radionucléides induit par la diffusion dans la roche a été mis en évidence par Neretnieks [1980] (Figure 5). Birgersson and Neretnieks [1990] confirme cet avantage des milieux poreux fracturés (avec une matrice de faible perméabilité) à partir d'expériences menées sur le site de Stripa (Suisse) en montrant que les radionucléides diffusent dans cette roche cristalline sous les conditions naturelles du milieu. Cependant, la matrice peut avoir un rôle plus important qu'un simple rôle de stockage par diffusion suivant les sites étudiés. Pour exemple, on peut citer l'étude du site du Yucca Mountain (US) qui montre que la circulation des flux est contrôlée par les fractures en condition saturée et par la matrice en condition non-saturée [Wang and Narasimhan, 1985] (Figure 6). Le rôle que la matrice joue dans la dynamique du milieu est fortement dépendant des propriétés structurales du milieu mais aussi de ses conditions hydrauliques. Dans le cas de sites de stockage, la matrice doit être une structure quasi-imperméable ne permettant pas la circulation de flux mais favorisant le retard des solutés par diffusion.

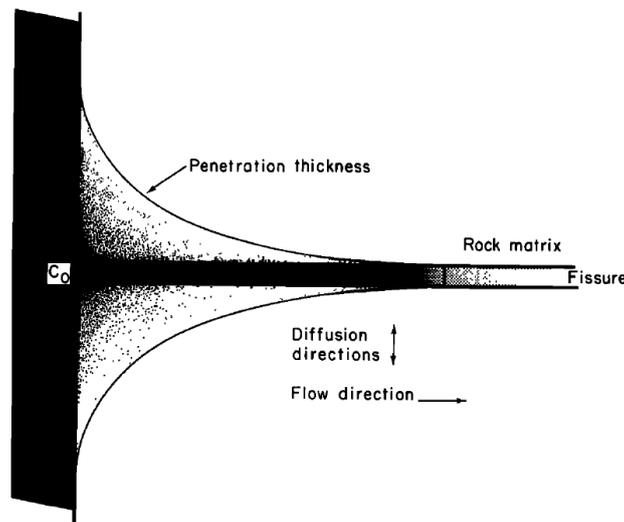


Figure 5 – Représentation schématique du transport de solutés pour une injection constante C_0 à l'extrémité gauche de la fracture [Neretnieks, 1980].

Les solutés se déplacent de gauche à droite dans la fracture ("Fissure") par advection ("Flow direction") et perpendiculairement à la fracture dans la matrice ("Rock matrix") par diffusion ("Diffusion directions"). L'intensité de noir montre l'amplitude de la concentration et permet de mettre en évidence la profondeur de pénétration du soluté dans la matrice ("Penetration thickness"). Le retard des solutés lié à leur diffusion dans la matrice est un élément clé pour la sûreté des sites de stockage de déchets nucléaires.

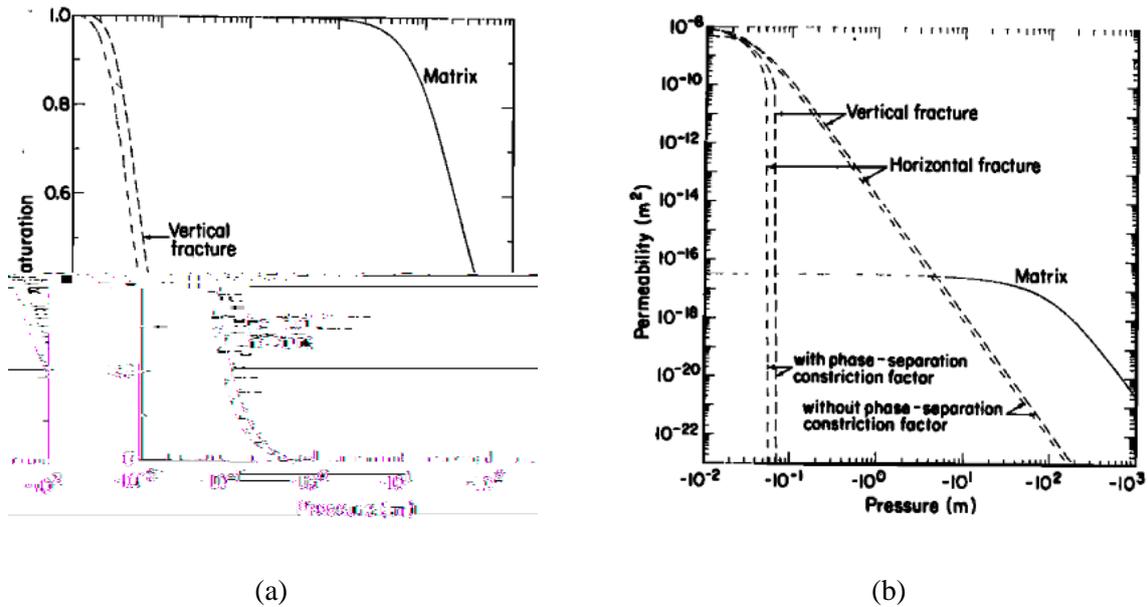


Figure 6 – Etude de la zone non saturée du site du Yucca Mountain (US) caractérisé par une roche volcanique [Wang and Narasimhan, 1985].

Evolution en fonction de la pression (a) du pourcentage de saturation et (b) de la perméabilité pour les fractures et la matrice. Pour des pressions importantes, la matrice devient la zone principale d'écoulements du milieu en ayant un taux de saturation et une perméabilité supérieurs à ceux des fractures.

A comparer des milieux poreux, les roches fracturées sont caractérisées par une zone de pure diffusion moléculaire (la matrice) et des surfaces et des temps de contact fluide-roche plus longs. Ces propriétés sont particulièrement intéressantes pour le stockage de CO₂ puisqu'elles favorisent son piégeage hydrodynamique et minéral mais aussi son piégeage par dissolution. Les milieux poreux fracturés sont alors plus efficaces pour le stockage de CO₂ que les milieux poreux bien que le risque de fuite lié à la présence de fractures soit à considérer [Carneiro, 2009] (Figure 7).

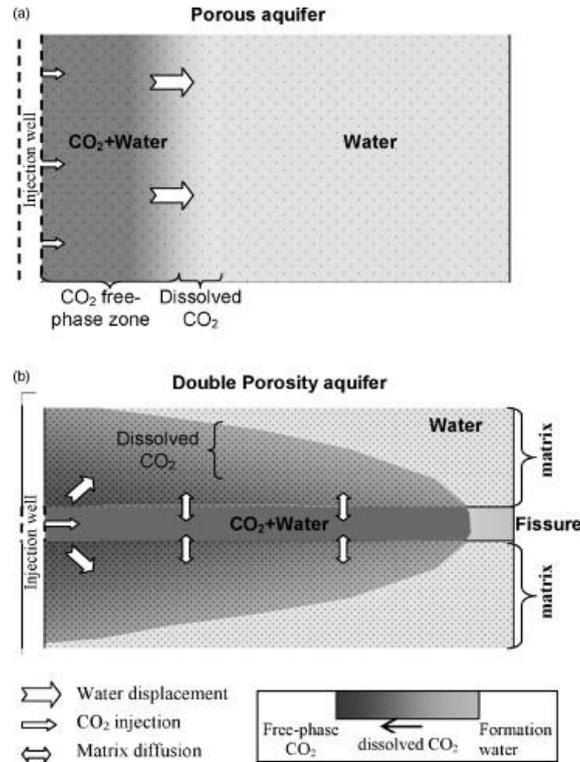


Figure 7 – Comparaison des processus mis en jeu lors de l'injection de CO₂ dans les milieux poreux et les milieux poreux fracturés [Carneiro, 2009].

Les milieux poreux fracturés, caractérisés par une zone de pure diffusion moléculaire (la matrice) et des surfaces et des temps de contact fluide-roche importants, sont des domaines de stockage plus efficaces que les milieux poreux.

2.1.3. Exploitation de ressources

Du point de vue de l'exploitation des ressources pétrolières dans les milieux poreux fracturés, la présence de l'huile dans la matrice et son drainage par les fractures font de l'échange fracture-matrice un phénomène crucial de l'exploitation. Plus d'un tiers des réservoirs d'hydrocarbures sont des milieux poreux fracturés [Gautam and Mohanty, 2004] pour lesquels le pétrole est majoritairement stocké dans la matrice. Par exemple, pour le site de Marchar (UK), dont la roche est de la craie fracturée, 70% du pétrole est présent dans la matrice du milieu [Casabianca et al., 2007]. Comme autre exemple, nous pouvons citer le réservoir de grès fracturé du site de Clair (UK) pour lequel la nécessité de prendre en compte la double-porosité et la double-perméabilité du milieu pour sa compréhension a été démontrée par Barr et al. [2007]. La caractéristique double-porosité double-perméabilité du milieu signifie que les porosités primaire et secondaire participent à la dynamique de réaction du milieu et que des écoulements non négligeables ont lieu dans chacune de ces deux porosités.

Sur le site de Waterton (Canada), le gaz est contenu dans une série de structures anticlinales orientées nord-ouest sud-est dans une imbrication de couches du Dévonien et de carbonate du

Mississippi. *Rawnsley et al.* [2007] ont fait une étude approfondie de la modélisation de ce site pour l'exploitation du gaz qui y est stocké. Ils ont mis au point et comparé dix modèles basés sur trois composantes: la porosité de la matrice, la perméabilité de la matrice et la zone fracturée. La matrice ici représente la roche et les fractures à petites échelles. Les simulations obtenues par deux des dix modèles se sont avérées en adéquation avec les données observées et ces deux modèles se caractérisent par une zone fracturée d'extension limitée contribuant faiblement à l'écoulement. Ils mettent alors clairement en évidence que la contribution vient majoritairement de la matrice et que la prise en compte de cette structure est essentielle à la bonne exploitation du site.

Enfin, d'un point de vue des ressources en eau, l'échange fracture-matrice est une caractéristique importante des aquifères de socle. Dans de nombreuses régions arides ou semi-arides, ce type d'aquifères représente un réservoir d'eau exploitable particulièrement nécessaire pour l'irrigation. Sur le site de Maheshwaram (Inde), *Thangarajan* [2007] a mis en évidence l'importance de la matrice et de ses interactions avec les fractures par l'application d'un modèle double-porosité pour reproduire les essais de pompage effectués sur le site (Figure 8). L'étude du site a montré que la matrice représente 90% de la capacité de stockage de l'aquifère alors que les fractures n'en représentent que 10%.

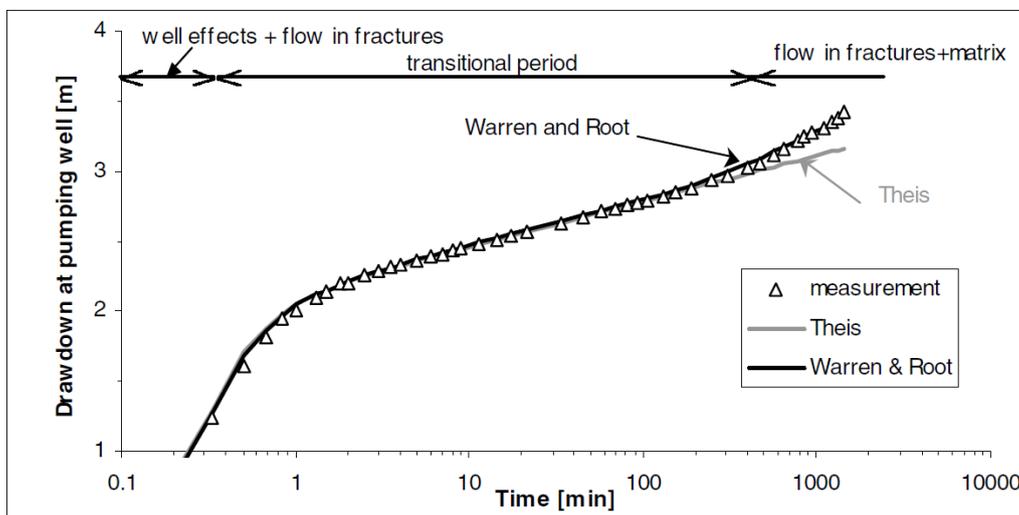


Figure 8 – Etude du site granitique fracturé de Maheshwaram (Inde) [*Thangarajan*, 2007]. La reproduction par le modèle de *Warren* [1963] des données observées met en évidence le comportement double-porosité du milieu.

2.1.4. Géothermie

Les milieux poreux fracturés peuvent être exploités pour leurs ressources, mais aussi pour leur capacité à modifier les propriétés d'une ressource donnée. La géothermie utilise cette capacité

en produisant une énergie propre et peu coûteuse par le réchauffement d'eau circulant dans les fractures au contact de la roche souterraine à température élevée [Murphy et al., 1981; Robinson and Tester, 1984]. Le comportement de la température dans la roche suit une loi de diffusion identique à celle des solutés dans la matrice

$$\frac{\partial T}{\partial t} = D \Delta T \quad (1)$$

où T est la température (ou la concentration de solutés) et D le coefficient de diffusion thermique dans la roche (ou le coefficient de diffusion du solutés dans la roche). Il est important de noter que le coefficient de diffusion thermique dans l'eau est de 2 à 4 ordres de grandeur plus élevé que le coefficient de diffusion moléculaire impliquant ainsi des quantités échangées entre fractures et matrice plus importantes pour le transfert de chaleur que pour le transfert de solutés. Cependant, l'étude de ces deux types de transfert de la roche (ou matrice) vers les fractures implique la prise en compte des mêmes processus. Des similitudes sont aussi à noter quant à la problématique de l'influence des propriétés du milieu sur la dynamique et l'ampleur des transferts. Une installation géothermique consistant en l'injection et le pompage de l'eau entre deux puits, son rendement dépend de la taille et de la profondeur de l'installation mais aussi du type de connexion et des caractéristiques du circuit de circulation d'eau entre les deux puits. Les paramètres clés liés aux structures géologiques et influençant le rendement de l'installation géothermique sont les temps de résidence dans le milieu et le rapport entre la surface d'interaction fracture-roche et le volume de la roche. L'influence de l'organisation des réseaux de fractures et de la distribution des blocs matriciels sur le comportement du milieu est alors une problématique commune au transport de soluté et au transfert de chaleur [Kolditz and Clauser, 1998].

De nombreux autres domaines nécessitent une compréhension approfondie de l'interaction entre fracture et matrice avec une prise en compte particulière de l'hydrodynamique et de son effet sur la déformation des structures (exploitations minières, études géotechniques, préventions de séismes...).

Les illustrations de domaines concernés par l'échange fracture-matrice mettent en évidence la complexité de la définition du rôle de la zone "matrice", des structures géologiques qu'elle représente et des phénomènes physiques qui la caractérisent. Dans le cas d'exploitation de ressources, la matrice est considérée comme une zone de stockage de la ressource et ses propriétés métriques, définissant sa capacité de stockage (volume du bloc) et sa capacité de restitution (rapport surface sur volume du bloc), sont alors déterminantes. Afin de ne pas

sous-estimer sa capacité de contribution, sa représentation inclura la roche mais aussi les fractures à petites échelles en en faisant ainsi une structure peu perméable. Au contraire, pour la prédiction des temps de résidence de solutés, la matrice est considérée comme une zone de retardement des éléments. Afin de ne pas sous-estimer sa capacité à retarder les éléments, elle sera caractérisée par les structures de très faible porosité (la roche) et sera considérée comme quasi-imperméable. Les phénomènes caractérisant la matrice sont entièrement dépendants des structures la définissant. Suivant qu'elle soit peu perméable ou quasi-imperméable, les phénomènes physiques à prendre en compte seront plus ou moins complexes et la représentation conceptuelle sera choisie en conséquence.

2.2. Moteurs physiques contribuant aux échanges entre fractures et matrice

Les processus physiques contribuant aux transferts entre fractures et matrice sont nombreux et dépendent des propriétés structurales et physiques du milieu. Le processus de diffusion est systématiquement considéré pour interpréter les transferts. La diffusion matricielle est fortement dépendante de la porosité de la roche. Sur diverses expériences de traçage, la dépendance entre les temps d'arrivée et la porosité de la matrice a été mise en évidence, montrant alors le caractère diffusif de l'échange. *Novakowski and Lapcevic* [1994] ont montré cette dépendance pour une expérience de traçage sur une fracture unique dans du marne de l'Ordovicien. Les courbes de restitution sont correctement reproduites par un modèle semi-analytique considérant un échange diffusif. Dans l'aquifère Culebra Dolomite, *Zuber and Motyka* [1994] ont mis en évidence la forte dépendance entre les temps d'arrivée des solutés et la porosité de la roche par des essais de traçage. A l'échelle de la fracture, les simulations numériques par la méthode de gaz sur réseaux de *Zhang and Kang* [2004] et les expériences en laboratoire de *Tidwell et al.* [2000] (Figure 9) montrent que la migration des solutés dans la matrice dépend de la valeur de la porosité de la roche et de son organisation spatiale.

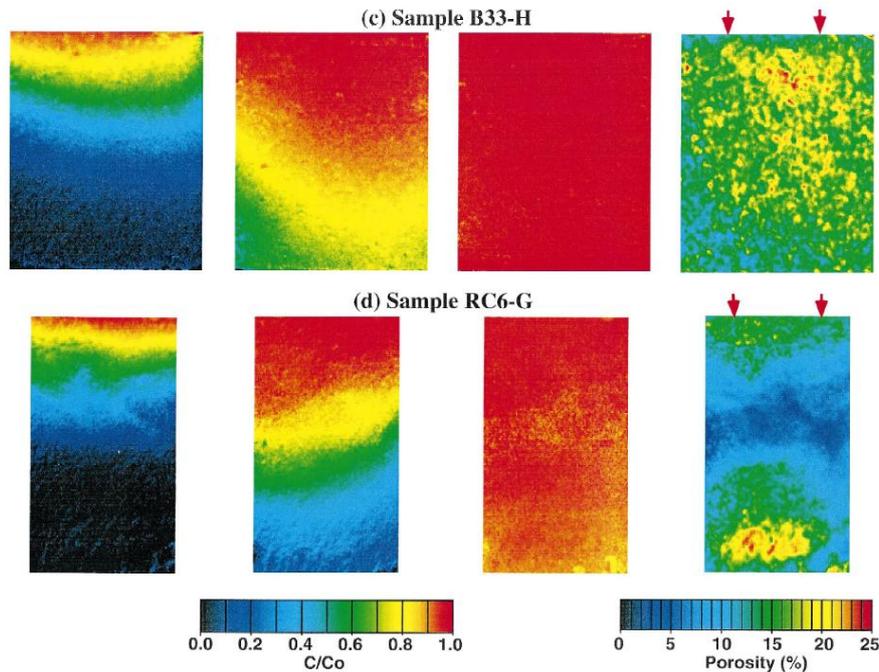


Figure 9 - Mise en évidence de la corrélation entre la diffusion dans la roche et son organisation poreuse [Tidwell *et al.*, 2000].

La migration d'un soluté par diffusion est observée du haut vers le bas de deux échantillons. Pour chaque ligne, les trois premières images représentent l'évolution de la concentration à différents temps et la dernière image représente la distribution de la porosité de l'échantillon testé. Les deux échantillons sont caractérisés par une roche inter cristalline contenant de nombreuses cavités ouvertes pour le premier échantillon et des cavités et des fractures ouvertes et remplies de gypse pour le second échantillon.

Les temps longs de restitution observés pourraient dans certains types de milieux provenir d'un autre phénomène que d'un échange diffusif entre fractures et matrice. Dans les milieux poreux fracturés, la majorité des flux et des solutés circule rapidement dans les fractures les plus ouvertes par advection tandis que, dans les fractures moins ouvertes, le soluté pourrait être piégé dans des fractures de vitesse faible sans même devoir rentrer par diffusion dans la matrice. Dans l'expérience de *Becker and Shapiro* [2000], effectuée sur un site de roche cristalline fracturée, l'obtention de courbes de restitution identiques pour des solutés de caractéristiques différentes montre que les échanges sont dominés par le processus d'advection (Figure 10). La dépendance entre les échanges et la perméabilité de la matrice découlant de cette hypothèse a été étudiée numériquement soit par des simulations en éléments finis [*Matthai and Belayneh*, 2004], soit par des simulations de gaz sur réseaux [*Zhang and Kang*, 2004]. Dans les deux cas, cette dépendance a été observée et il a été établi que la représentation de la perméabilité de la matrice influe sur les échanges en apportant une contribution par le phénomène d'advection même pour des faibles valeurs de perméabilité.

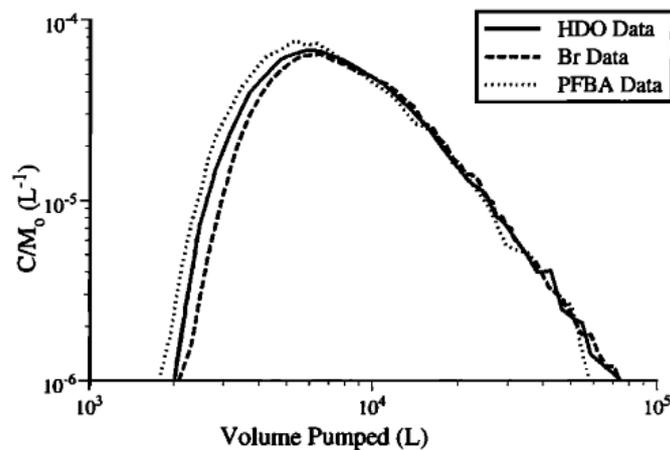


Figure 10 –Evolution de la concentration restituée par volume pompé pour des solutés de caractéristiques différentes [*Becker and Shapiro*, 2000].

Mise en évidence des transferts fracture-matrice par advection avec l'obtention de la même courbe de restitution pour des valeurs différentes de la diffusion moléculaire.

La gravité peut aussi contribuer directement aux échanges dans des proportions plus ou moins importantes suivant les caractéristiques pétrophysiques du milieu naturel étudié [*Polak et al.*, 2003a] (Figure 11). Le processus d'adsorption, lié à la cinétique de réactions du milieu et caractérisé par la surface de contact entre le fluide et la roche [*Carrera et al.*, 1998], est aussi à prendre en compte dans les phénomènes influençant les échanges entre fractures et matrice. Enfin l'absorption est à considérer comme un processus clé pour les transferts dans les milieux non saturés [*Zimmerman et al.*, 1990].

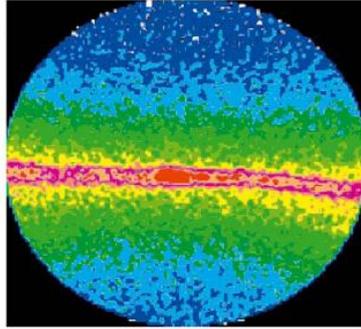


Figure 11 – Mise en évidence des effets gravitaires sur les transferts à l'échelle de la fracture [Polak *et al.*, 2003a].

La visualisation de la distribution d'un traceur initialement injecté dans la fracture pour un échantillon de craie fracturée permet de mettre en évidence les effets gravitaires. La concentration du traceur est forte dans la fracture (de rouge à rose) et faible dans la matrice (de vert à bleu foncé). La dominance de bleu foncé dans la partie supérieure et de bleu clair dans la partie inférieure de la roche montrent que la concentration est plus importante dans cette dernière partie. Cette différence de concentration est attribuée aux effets gravitaires.

L'exploitation pétrolière de milieux poreux fracturés oblige à caractériser l'échange entre fractures et matrice pour des écoulements multiphasiques. Il faut alors considérer la possibilité de transfert par capillarité pour des fluides non miscibles avec une interface entre les fluides [Rangel-German and Kovsky, 2006]. En s'attachant plus particulièrement à l'étude des phénomènes inter-blocs (entre les blocs matriciels) pour ce type d'écoulements, Fung *et al.* [1991] rappellent l'importance de la capillarité et de la ré-infiltration pour l'échange fracture-matrice.

2.3. Modèles d'échange entre fracture et matrice

2.3.1. Formalisme des modèles double-porosités

Les pétroliers ont été les premiers à être confrontés à la complexité des milieux fracturés et à chercher à comprendre et à modéliser la multiplicité des temps de réaction soulignée dans les sections précédentes. Le premier modèle rendant compte de la coexistence de deux structures aux temps de réponse différents est le modèle double-porosités double-perméabilité de *Barenblatt et al.* [1960]. Le concept est de considérer le milieu poreux fracturé comme une superposition de deux domaines, le premier étant représentatif de la porosité primaire du milieu et le second de la porosité secondaire. Le premier domaine, dénommé "matrice", correspond à la roche et aux fractures peu contributives du milieu, et le second, dénommé "fractures", correspond aux structures fortement perméables telles que les fractures dominantes. Le modèle double-porosités est d'abord cohérent avec des observations hydrauliques. La représentativité en termes de structures géologiques et d'agencement des hétérogénéités n'est pas la justification première des modèles double-porosités et n'a été étudiée que beaucoup plus tard [*Kazemi et al.*, 1969]. La répartition des hétérogénéités du milieu entre les deux porosités est l'un des points clefs étudiés dans cette thèse. Elle sera discutée en détails dans la suite du manuscrit.

Le comportement de chacun des deux domaines est décrit par l'équation de diffusivité et l'interaction entre les deux domaines est représentée par un terme d'échange traité comme un terme puits/source pour chaque domaine. Les équations gouvernant l'évolution de la pression sont alors

$$\begin{cases} \phi_m C_m \partial_t P_m = \nabla \cdot \left(\frac{\bar{K}_m}{\mu} \nabla P_m \right) + S_0^m + Q_{fm} \\ \phi_f C_f \partial_t P_f = \nabla \cdot \left(\frac{\bar{K}_f}{\mu} \nabla P_f \right) + S_0^f + Q_{mf} \end{cases} \quad (2)$$

où les indices m et f se réfèrent respectivement au domaine "fractures" et au domaine "matrice". P_i et \bar{K}_i sont respectivement la moyenne des pressions locales et le tenseur de perméabilité équivalent pour le milieu i , ϕ_i et C_i sont respectivement la porosité et la compressibilité du milieu i , S_0^i est le terme source pour le milieu i et Q_{ij} est le débit échangé entre les milieux i et j à l'échelle du bloc avec $Q_{ij} = -Q_{ji}$.

Le modèle initial double-porosités double-perméabilité de *Barenblatt et al.* [1960] a été simplifié par *Warren* [1963] en considérant que la perméabilité du domaine "matrice" est si

faible que les flux y circulant sont négligeables à comparer des flux du domaine "fractures" ($\overline{K_m} = 0$). Ces modèles sont définis comme des modèles double-porosités simple-perméabilité et ont une expression simple du terme d'échange fracture-matrice. En supprimant le terme $\nabla \cdot \left(\frac{\overline{K_m}}{\mu} \nabla P_m \right)$ dans le système d'équations (2) et en formulant l'hypothèse que les blocs matriciels ne peuvent être alimentés que par les fractures ($S_0^m = 0$), le débit échangé entre les fractures et la matrice ne dépend que de la dérivée en temps de la pression dans la matrice

$$Q_{fm} = \phi_m C_m \partial_t P_m. \quad (3)$$

Ces deux hypothèses ($\overline{K_m} = 0$ et $S_0^m = 0$) impliquent que la matrice est modélisée comme une zone de stockage où le fluide peut soit s'accumuler soit être libéré. Leur validité dépend entièrement des propriétés de la matrice et donc des structures qui y sont incluses.

Le concept des modèles double-porosités simple-perméabilité a été par la suite appliqué au transport de solutés dans les milieux poreux fracturés en se basant généralement sur une représentation de type mobile-immobile. Le domaine "fractures", caractérisé par des flux advectifs, est dit de type "mobile" et le domaine matrice, caractérisé par des déplacements diffusifs, est dit de type "immobile". Dans la zone mobile, le transport est advectif et dispersif [Carrera et al., 1998]

$$\phi_f R_f \frac{\partial c_f}{\partial t} = \nabla \cdot (D_f \nabla c_f) - q \cdot \nabla c_f - F_m \quad (4)$$

avec ϕ_f , R_f et D_f la porosité, le facteur de retardement et le coefficient de dispersion du milieu "fractures", q la vitesse de Darcy du flux dans les fractures et F_m le terme source représentant la quantité de solutés échangée par diffusion avec la matrice.

Que ce soit pour l'écoulement ou le transport de solutés, le concept de modèles double-porosités a été largement utilisé grâce à sa simplicité et à sa capacité à rendre compte de la coexistence d'une porosité primaire et d'une porosité secondaire. Fondamentalement, le modèle double-porosités provient de l'homogénéisation des processus d'écoulement ou de transport d'une échelle où fracture et matrice sont spatialement identifiables en tant que tels à une échelle où fracture et matrice ne sont plus discernables individuellement [Arbogast et al., 1990]. Dans le modèle double-porosités, le "grain" du modèle est un bloc contenant un échantillon représentatif des fractures et de la matrice. L'agencement des porosités l'une par rapport à l'autre ainsi que les différences hydrauliques entre les deux porosités sont homogénéisées dans le coefficient d'échange. Le coefficient d'échange est alors le paramètre clef des modèles double-porosités.

2.3.2. Modélisation simplifiée de l'échange fracture-matrice

La modélisation des milieux poreux fracturés par le concept de double-porosité est basée sur l'idée que chaque point du milieu est caractérisé par les propriétés du domaine "fractures", les propriétés du domaine "matrice" et une interaction entre les deux milieux. Le milieu initial est ensuite idéalisé par un milieu aux structures régulières dont les propriétés sont homogénéisées à l'échelle du bloc. A l'échelle du bloc, l'équation gouvernant le comportement de la pression dans la matrice est assimilable à l'équation de diffusion exprimée comme suit

$$\partial_t P = \nabla \cdot (D \nabla P) \quad (5)$$

avec $D = \frac{\overline{K_m}}{\mu \phi_m c_m}$.

Les solutions analytiques connues de cette équation pour des conditions particulières sont utilisées pour exprimer l'échange fracture-matrice et conditionnent la forme des blocs pouvant être prise en compte. Prenons l'exemple d'un modèle de strates parallèles, où chaque bloc correspond à une strate homogène délimitée par deux fractures. En considérant que la pression dans les fractures s'homogénéise rapidement, cela est équivalent à déterminer l'évolution de la pression P dans un milieu initialement à la pression P_0 et délimité par deux plaques à des pressions fixes P_1 . L'évolution de la pression en fonction de la position dans l'espace x et du temps t pour cette configuration peut être obtenue par une méthode de séparation de variables [Crank, 1979] (p.47) pour deux plaques positionnées en $x=-l$ et $x=l$

$$\frac{P-P_0}{P_1-P_0} = 1 - \frac{4}{\pi} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-1)^n}{2n+1} e^{-\frac{D(2n+1)^2 \pi^2 t}{4l^2}} \cos \frac{(2n+1)\pi x}{2l}. \quad (6)$$

En ne conservant que le premier terme de la somme et en considérant les conditions $P_0 = 0$ et $P_1 = P_f$, l'évolution de la pression moyenne dans le bloc, notée \bar{P}_m , est

$$\bar{P}_m = P_f \left(1 - \frac{8}{\pi^2} e^{-\frac{D\pi^2 t}{4l^2}} \right) \quad (7)$$

et l'évolution de sa dérivée en fonction du temps est

$$\partial_t \bar{P}_m = \frac{D\pi^2}{4l^2} (P_f - \bar{P}_m). \quad (8)$$

Cette expression est applicable au problème formulé par les équations (2) et (3) et permet de définir l'échange fracture-matrice comme

$$Q_{fm} = \alpha (P_f - \bar{P}_m) \quad (9)$$

avec $\alpha = \frac{\pi^2 \bar{K}_m}{4l^2 \mu}$ classiquement appelé le coefficient d'échange ou le "shape factor".

Dans le cas de transport de solutés, il suffit de remplacer la pression P par la concentration C et le coefficient de diffusion D de l'équation (8) par le coefficient de diffusion dans la matrice D_m . L'échange de solutés entre les fractures et la matrice est alors défini par

$$Q_{fm} = \alpha(C_f - \bar{C}_m). \quad (10)$$

avec $\alpha = \frac{\pi^2 D_m}{4l^2}$. Le coefficient d'échange α peut être ainsi défini pour trois formes de blocs (couche, cylindre ou sphère) correspondant à des dimensionnalités différentes de la diffusion (1D, 2D ou 3D) et dont les valeurs sont résumées dans le Tableau 1.

Dimensionnalité de la diffusion	1D	2D	3D
Forme du bloc	Strate	Cylindre	Sphère
Coefficient d'échange (α)	$\frac{\pi^2 D_m}{4l^2}$	$\frac{5.78 D_m}{l^2}$	$\frac{\pi^2 D_m}{l^2}$

Tableau 1 – Valeurs des coefficients d'échange suivant la dimensionnalité de la diffusion [Haggerty and Gorelick, 1995].

Les coefficients d'échange sont ici approximatés au premier ordre à partir du modèle de diffusion appliqué à l'échelle du bloc pour l'échange de solutés avec D_m le coefficient de diffusion de la matrice et l la distance entre le centre du bloc et les fractures le délimitant

Les formulations (9) et (10) des quantités de fluides et de solutés transférées entre les fractures et la matrice ont l'avantage de représenter l'échange par une expression simple et permettent d'éviter la discrétisation des blocs matriciels. Cependant, il est important de noter que le précédent développement est fondé sur trois hypothèses fortes pour la représentation de l'échange. Premièrement, la solution analytique précédente est développée pour une pression (ou une concentration) constante dans les fractures, supposant une homogénéisation rapide de la pression (ou de la concentration) dans ces structures. Deuxièmement, la prise en compte de la pression (ou concentration) moyenne du bloc matriciel suppose que l'échelle du bloc correspond à une échelle d'homogénéisation acceptable du milieu matriciel. Et troisièmement, l'approximation de la somme infinie de l'équation (6) par son premier terme suppose la mise en place d'un régime quasi-stationnaire de l'échange, cette approximation n'étant correcte que pour les temps longs. Par conséquent, cette formulation constante du coefficient d'échange, obtenue en simplifiant fortement la dynamique et les structures du milieu, est acceptable pour

représenter les échanges aux temps longs en considérant des fractures au comportement homogène et des blocs matriciels aux propriétés et au comportement homogénéisables.

2.3.3. Autres formulations de l'échange fracture-matrice

Le modèle double-porosité est intéressant de par sa simplicité et sa généralité. Cependant de nombreuses expériences et observations montrent qu'il ne peut en tant que tel rendre compte de la totalité de la dynamique des échanges. Deux possibilités ont été proposées pour étendre le modèle double-porosité. La première possibilité a consisté à modifier l'expression de l'échange entre fracture et matrice pour rendre compte de la dynamique des structures. La deuxième possibilité conserve un échange dépendant linéairement de la différence de pression (ou concentration) mais intègre l'hétérogénéité des structures dans sa représentation du milieu fracture-matrice.

Classiquement l'échange est une fonction linéaire de la différence de pression entre fracture et matrice. Pour rendre compte de l'effet de la dynamique des structures, les alternatives proposées ont été soit de modifier cette dépendance linéaire soit d'intégrer un effet mémoire. En ce qui concerne la première alternative, l'hypothèse de l'établissement d'un régime quasi-stationnaire pour l'échange n'est valable strictement que pour les temps longs, lorsque tout le bloc réagit aux sollicitations des fractures. Pour les temps courts, seules les zones du bloc proches des fractures réagissent. A partir d'un modèle de strates, *Dykhuizen* [1990] propose une approche où la somme infinie de l'équation (6) (section 2.3.2) est approximée de manière différente pour les temps courts et les temps longs. Il raccorde une solution aux temps courts, correspondant à la sollicitation de la matrice essentiellement voisine des fractures, et une solution aux temps longs, correspondant aux échanges en régime quasi-permanent (Figure 12). Cependant, la fonction de raccordement entre solutions aux temps courts et longs est non linéaire, entraînant donc la modélisation d'un phénomène fondamentalement linéaire (la diffusion) par une expression non linéaire. Dans la même gamme d'alternatives, *Zimmerman et al.* [1993] utilisent aussi une représentation de la dynamique transitoire du coefficient d'échange pour y ajouter l'effet de l'évolution transitoire de la pression dans les fractures. Ils expriment l'évolution de la pression moyenne dans le bloc matriciel en prenant en compte l'évolution temporelle de la pression dans les fractures.

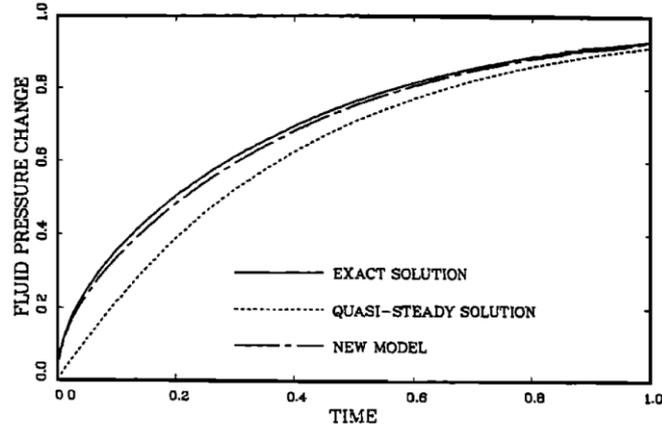


Figure 12 – Comparaison de la qualité de représentation de l'évolution de la pression dans la matrice pour un milieu stratifié [Dykhuizen, 1990].

La courbe intitulée "quasi-steady solution" est obtenue avec l'hypothèse d'un échange en régime quasi-permanent à tous les temps (solicitation totale du bloc) et la courbe intitulée "new model" est obtenue en prenant en compte une sollicitation partielle du bloc pour les temps courts et totale pour les temps longs. La solution avec un échange indépendant du temps sous-estime la pression réelle aux temps courts en considérant que tout le bloc réagit.

La deuxième alternative pour prendre en compte la dynamique des structures consiste à faire dépendre l'échange de l'historique antérieur des différences de concentration entre fracture et matrice. La pondération temporelle des différences de pression est donnée par le noyau G^* du produit de convolution suivant *Noetinger and Estebenet* [2000]

$$Q_{fm}(t) = G^*(t) * \partial_t [P_f(t) - \bar{P}_m(t)]. \quad (11)$$

En utilisant aussi un produit de convolution, l'effet de la variation de la concentration dans la fracture au cours du temps peut être pris en compte dans la représentation des échanges de solutés [Carrera et al., 1998; Haggerty et al., 2000]. En posant c_m la concentration dans la matrice et c_f la concentration constante dans la fracture et en sachant que ces concentrations sont liées par une relation du type

$$c_m(x, t) = w(x, t)c_f, \quad (12)$$

la concentration c_m pour une concentration c_f qui varie au cours du temps s'exprime par superposition des solutions à chaque temps en utilisant un produit de convolution

$$c_m(x, t) = \int_0^t w(x, \tau) \partial_t c_f(x, t - \tau) d\tau = w * \partial_t c_f \quad (13)$$

où w est la fonction mémoire du modèle.

La deuxième généralisation, visant à prendre en compte l'hétérogénéité des structures, conserve un échange dépendant linéairement de la différence de pression (ou concentration). Il s'agit d'intégrer implicitement les zones d'altération entre fracture et matrice [Hamm and

[Bidaux, 1996; Moench, 1984] ou l'hétérogénéité hydraulique de la matrice à l'intérieur du bloc (échelle intra-bloc). Dans le cas d'écoulement de fluide, le coefficient d'échange a été déterminé essentiellement à partir d'essais de puits. Il existe également des méthodes pour le déterminer à partir de simulations numériques de modèles de réseaux de fractures. Il s'agit de procéder à une homogénéisation numérique des équations locales à l'échelle du bloc. La taille des blocs du modèle double-porosité étant à priori contrainte par la taille du REV du milieu fracturé, l'échelle de discrétisation du modèle est souvent inadaptée pour une homogénéisation directe de la matrice. La contrainte de la définition d'un REV pour la modélisation des réseaux de fractures sera discutée plus en détails dans la suite du manuscrit. En ce qui concerne la représentation de la matrice, la solution majoritairement adoptée est de déterminer une première échelle d'homogénéisation du bloc matriciel (appelée échelle unité ou échelle locale) correspondant à une échelle de discrétisation intermédiaire entre la représentation continue et la discrétisation en blocs [Alboin *et al.*, 2002; Kfoury *et al.*, 2004; Zvoloski *et al.*, 2008] (Figure 13).

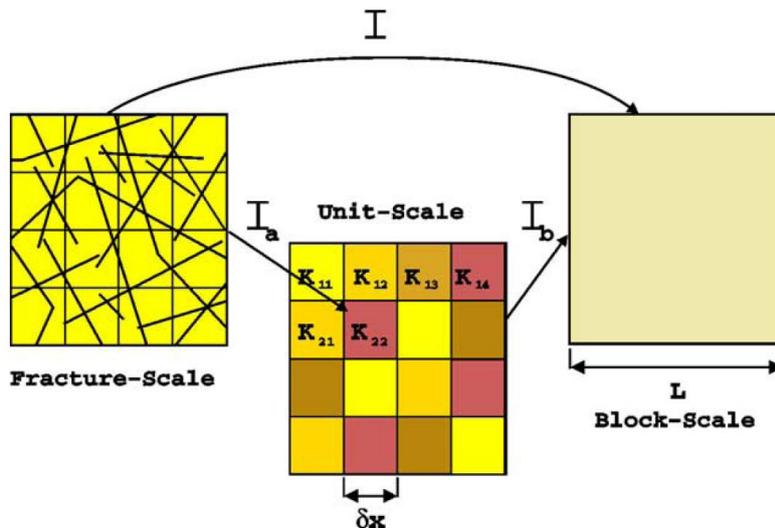


Figure 13 – Prise en compte de l'hétérogénéité du bloc matriciel [Kfoury *et al.*, 2004].

L'homogénéisation des propriétés hydrauliques de la matrice à l'échelle du bloc est faite par deux étapes d'homogénéisation consistant en une première homogénéisation à une échelle intermédiaire (Unit-Scale) et une seconde à l'échelle du bloc (Block-Scale).

Pratiquement, il peut être aussi attractif de résoudre les équations dans le domaine de Laplace où l'effet de la matrice est de modifier le terme d'emmagasinement en y adjoignant une fonction d'échange comme montré par l'équation (10) de Noetinger and Estebenet [2000]:

$$\langle \widehat{P}_f \rangle(s) = \frac{V_f}{s \widehat{f}(s)}$$

avec $\langle \widehat{P}_f \rangle(s)$ la pression moyenne dans les fractures exprimée dans le domaine de Laplace, V_f le rapport de volumes entre le domaine fracturé et le domaine total et $\widehat{f}(s)$ la fonction d'échange exprimée dans le domaine de Laplace. La fonction d'échange peut être déterminée en utilisant une méthode de marcheurs aléatoires à temps continu puisqu'elle est égale à l'inverse des temps moyens d'arrivée dans la fracture de particules lancées uniformément dans les blocs matriciels [Noetinger *et al.*, 2001]. Avec cette méthode, le coefficient d'échange peut être déterminé pour des blocs hétérogènes de taille et de forme diverses [Noetinger and Estebenet, 2000; Noetinger *et al.*, 2001] (Figure 14).

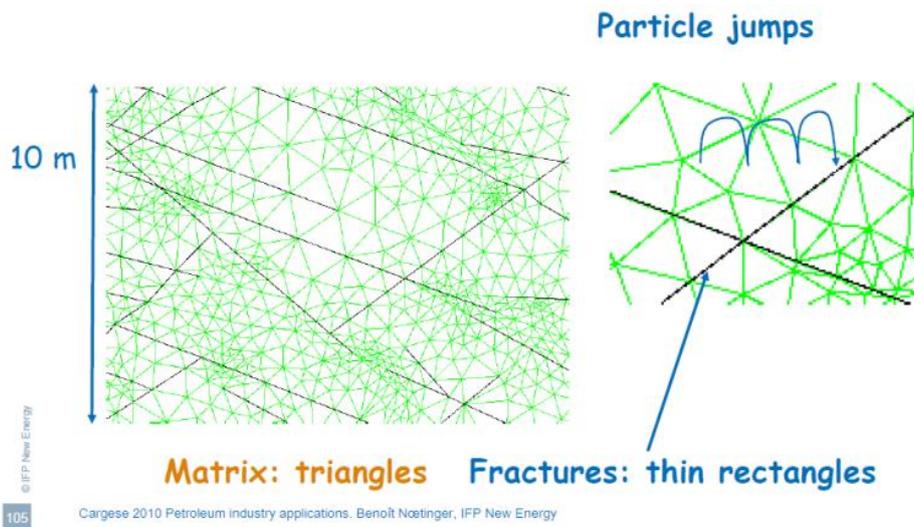


Figure 14 – Détermination numérique du coefficient d'échange [Noetinger, 2010].

Le coefficient d'échange est calculé comme l'inverse du temps de diffusion moyen dans le bloc matriciel, ce temps étant évalué numériquement par une méthode de marcheurs aléatoires.

Le concept fondamental des modèles double-porosités est également utilisé pour d'autres processus tels que les écoulements multiphasiques. Kazemi *et al.* [1976] ont été les premiers à développer un modèle double-porosités capable de représenter les écoulements multiphasiques avec prise en compte du phénomène d'imbibition. En présence de deux phases, les échanges entre porosités sont éventuellement plus complexes amenant par exemple Uleberg and Kleppe [1996] à introduire des contacts capillaires entre les blocs matriciels.

2.3.4. Application aux études de sites

Nous développons ici quelques exemples d'études de sites poreux fracturés utilisant les modèles double-porosités. Ils illustrent la pertinence des modèles double-porosités et donnent une idée des paramètres classiquement observés.

L'étude détaillée de Moench [1995] sur le site de Béthune (France) utilise une détermination des paramètres d'un modèle de transport en deux étapes à partir des observations issues de

tests de traçage. La première étape détermine les paramètres liés à la porosité secondaire du site (fractures dominantes) en utilisant les premiers temps d'arrivée des courbes de restitution (Figure 15a), et la seconde étape détermine les paramètres liés à la porosité primaire du milieu en utilisant les temps longs des courbes de restitution (Figure 15b). Les paramètres déterminés par la réaction du milieu aux temps courts en utilisant un modèle simple-porosité sont le temps d'advection (appelé "Match points") et le nombre de Péclet du domaine fracturé (noté Pe). Les paramètres représentatifs de l'interaction avec la matrice et déterminés sur les temps longs de réaction avec un modèle double-porosité sont un terme représentatif de la capacité de stockage des blocs matriciels (noté σ') et des coefficients représentatifs de la diffusion dans la matrice (noté γ') et de la diffusion dans la zone d'altération autour des fractures (noté S_k). Les paramètres sont calibrés afin d'obtenir la meilleure reproduction des données observées pour des expériences avec différents traceurs.

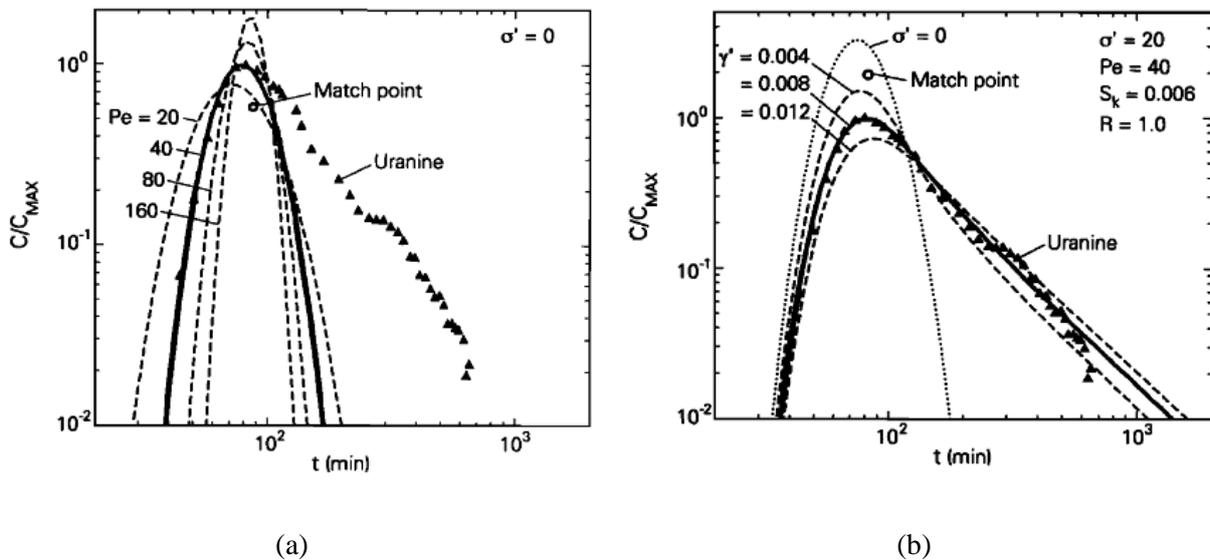


Figure 15 - Estimation des caractéristiques du site de craie fracturée de Béthune (France) [Moench, 1995].

Les observations correspondent à des essais de traçage effectués avec trois traceurs de diffusion moléculaire différente. (a) Estimation des paramètres liés aux temps courts de réaction tels que le temps d'advection (Match point) et le nombre de Péclet (Pe) en utilisant un modèle simple-porosité. (b) Estimation des paramètres liés aux temps longs de réaction tels que le stockage dans la matrice (σ'), la diffusion dans la matrice (γ') et le rapport entre les coefficients de diffusion dans la matrice et de diffusion dans la zone d'altération (S_k).

Un autre type de tests consiste à observer l'évolution du rabattement dans le puits de pompage et dans un puits d'observation durant un essai de puits. La Figure 1 montre que le modèle le plus apte à reproduire ces observations pour le site de Pocheon (Corée du Sud) est le modèle double-porosité fractal [Hamm and Bidaux, 1996]. Pour ce type de données, Moench [1984] a observé une décroissance sensible de la vitesse de rabattement (plateau) avant l'apparition de l'état d'équilibre du système plus tardive sur le site du Yucca Mountain (US). Le plateau ne

pouvant pas être expliqué par l'atteinte de l'équilibre, Moench [1984] l'a expliqué par la présence d'une zone altérée autour de la zone fracturée (Figure 16).

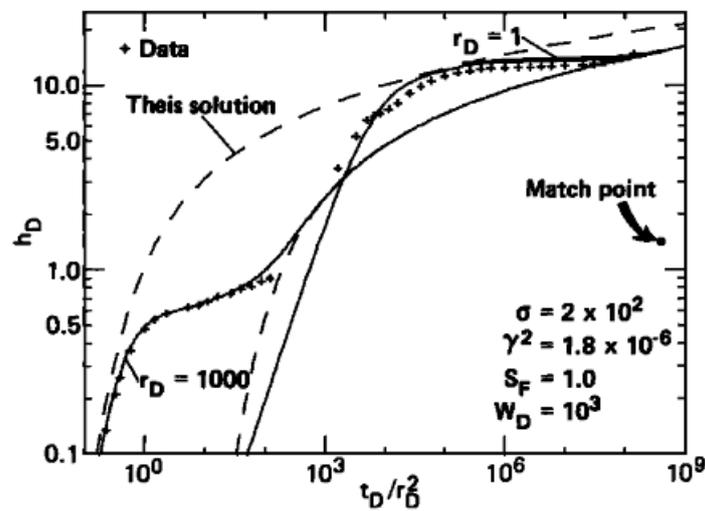


Figure 16 – Etude du site de roche volcanique fracturée du Nevada (US) [Moench, 1984]. L'observation de l'évolution du rabattement lors d'essais de pompage sur ce site met en évidence l'existence d'un plateau avant la mise en place de l'équilibre. Un modèle double-porosité considérant la zone d'altération autour des fractures (paramètre S_F) permet de reproduire les données observées.

Young [1992] a fourni une explication différente de ce comportement en se basant sur les temps caractéristiques de propagation et de mise à l'équilibre du fluide dans les différentes structures du milieu (Figure 17). Ceci montre clairement que plusieurs modèles peuvent être en adéquation avec les données observées, que les définitions données aux structures peuvent être controversées et que le choix définitif d'un modèle peut requérir des observations complémentaires [Sánchez-Vila and Carrera, 2004].

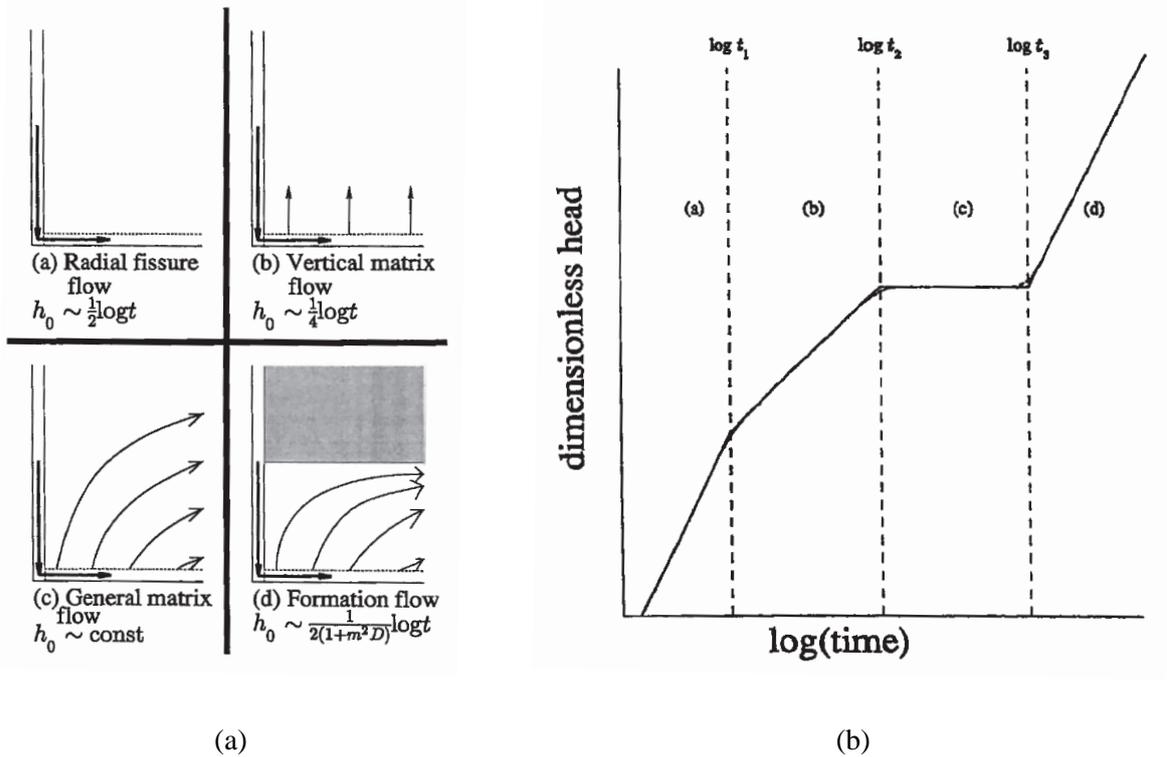


Figure 17 –Modèle expliquant la réponse du site de roches volcaniques du Yucca Mountain (US) à un essai de pompage [Young, 1992].

Pour expliquer la présence d'un plateau dans l'évolution du rabattement durant un test de pompage, Young [1992] propose un modèle basé sur les temps caractéristiques de propagation et de mise à l'équilibre du fluide dans les différentes structures du milieu.

2.3.5. Alternatives aux modèles double-porosit 

Les mod les double-porosit  sont largement utilis s pour la simplicit  de leur formulation et leur capacit    rendre compte des observations hydrauliques. Ils reposent n anmoins sur une repr sentation conceptuelle du milieu impliquant de fortes simplifications des structures g ologiques et des processus physiques impliqu s. Une alternative est de mod liser les processus hydrauliques dans l'int gralit  du milieu jusqu'  l' chelle des fractures. Classiquement, ces mod les repr sentent explicitement les structures et les processus physiques en maillant   la fois les fractures et la matrice. La diff rence d' chelle entre l'ouverte d'une fracture et la taille d'un bloc matriciel  tant de plusieurs ordres de grandeur, les m thodes utilisant des maillages non r guliers sont plus adapt es. Des m thodes num riques ( l ments finis principalement) ont  t  utilis es aussi bien   l' chelle de la fracture [Grisak and Pickens, 1980] qu'  l' chelle du site [Kolditz and Clauser, 1998; Kolditz et al., 1998; Matthai, 2003]. Pour  viter le co t prohibitif d'un maillage   l' chelle de l' paisseur de la fracture, il existe de nouvelles m thodes num riques qui mod lisent

implicitement l'équation de la fracture par la discontinuité des pressions ou des flux aux frontières des blocs matriciels [Martin *et al.*, 2005]. Ce dernier type de modèles pourrait permettre l'utilisation de cette approche pour des études de sites 3D en raison de leur moindre coût numérique. La représentation explicite des structures et des phénomènes est en outre particulièrement utile en tant que référence pour la mise au point et l'évaluation de modèles phénoménologiques.

2.4. Définition des structures et impact de leur organisation sur les échanges fracture-matrice

L'idée clé des modèles double-porosités est la représentation des structures géologiques du milieu en deux domaines se distinguant par leurs propriétés hydrauliques très différentes. Ce concept novateur dans les années 60, et toujours utilisé aujourd'hui, en fait leur principale ambiguïté. Conceptuellement, la matrice a été définie par *Warren* [1963] comme une zone peu perméable que l'on apparte à la roche à laquelle les microfissures du milieu peuvent éventuellement être ajoutées. Dans le cas de l'expérience de laboratoire de *Polak et al.* [2003b], la zone d'altération autour de la fracture, caractérisée par un coefficient de diffusion supérieur à celui de la matrice, est exclue de la structure "matrice". Au contraire, *Andersson et al.* [2004] propose un modèle dans lequel la matrice est constituée des altérations voisines des fractures et des fissures non dominantes (Figure 18). Ceci montre que la définition fondamentale de la matrice, à savoir la structure responsable du second temps de réponse du milieu, est très ambiguë et totalement dépendante du choix de représentation des structures et des phénomènes. L'identification de la composition de la matrice en terme de structure géologique apparaît être une question clef pour l'utilisation d'informations autres que purement hydrauliques pour contraindre les modèles double-porosités.

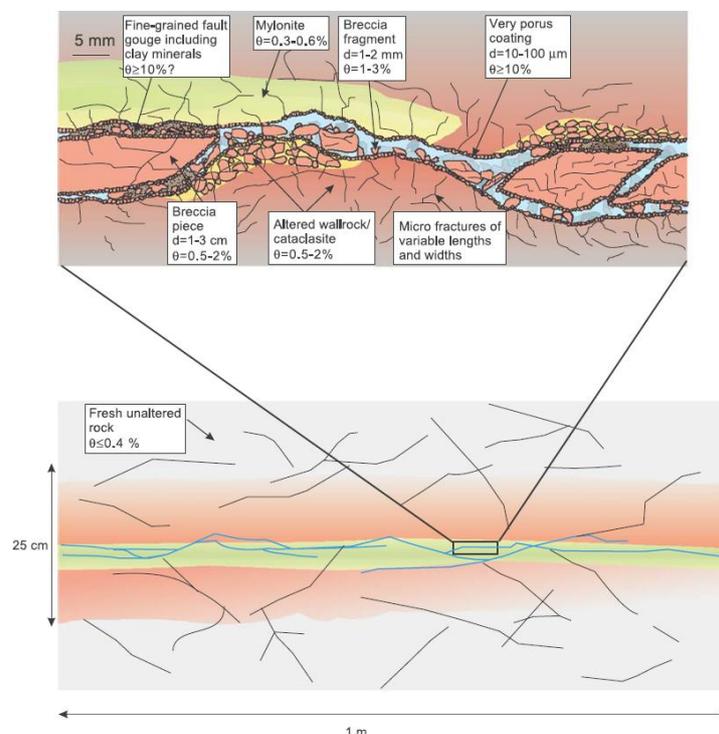


Figure 18 – Modèle conceptuel pour représenter les hétérogénéités de structures des milieux poreux fracturés [Andersson et al., 2004].

Le modèle proposé par *Andersson et al.* [2004] consiste à intégrer dans la matrice les fractures peu contributives et les zones d'altération environnant les fractures.

Le concept de décomposition des milieux en une superposition de porosités séparées a été généralisé dans les modèles multi-porosités. Les modèles multi-porosités remplacent la vision binaire des modèles double-porosités par un modèle de plus de deux porosités en interaction. La formulation multi-porosités permet une description plus détaillée des différentes échelles de porosité existantes dans le milieu et une meilleure identification de la localisation de chaque processus. Un classement hiérarchique des structures est alors effectué et les processus responsables des interactions entre ces structures sont identifiés [*Bai et al.*, 1993; *Haggerty and Gorelick*, 1995; *Lagendijk et al.*, 2000] (Figure 19).

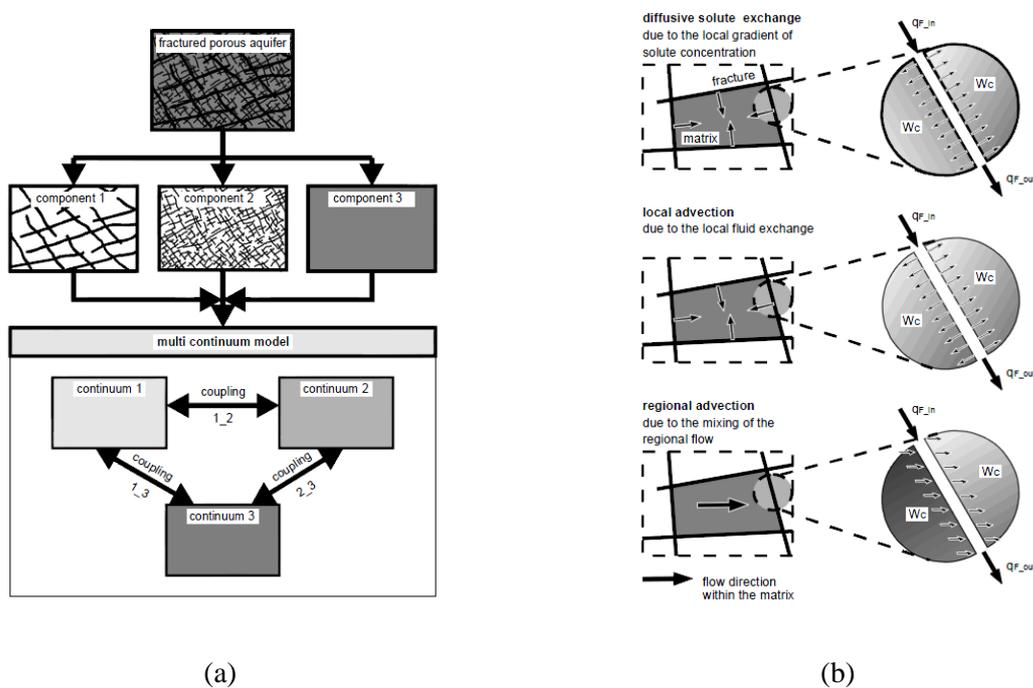


Figure 19 – Formalisme des modèles multi-porosités [*Lagendijk et al.*, 2000].

Les modèles multi-porosités sont basés (a) sur une hiérarchisation des structures et (b) sur l'identification des processus contribuant aux interactions entre les différentes porosités.

Cependant, l'utilisation de paramètres équivalents pour représenter les propriétés de chaque milieu ne permet pas de rendre compte de l'agencement des fractures par rapport aux blocs matriciels et de la distribution de la taille des blocs matriciels. Du point de vue de l'organisation des réseaux de fractures, la discrétisation par blocs avec des propriétés équivalentes au milieu naturel nécessite la détermination d'une échelle d'homogénéisation, appelée volume élémentaire représentatif (REV) [*Bear*, 1979], à laquelle les paramètres descriptifs du milieu pourront être homogénéisés. Cependant, de par leur hétérogénéité, les milieux fracturés ne présentent pas toujours un volume élémentaire représentatif ou alors

celui-ci peut être extrêmement grand [Davy *et al.*, 2006; Long *et al.*, 1982]. Dans ces deux derniers cas, les modèles double-porosités continus ne sont pas adaptés pour mettre en œuvre une représentation équivalente du milieu naturel et un autre type de modèles devra être utilisé. Les modèles double-porosités discrets, ou encore appelés modèles hybrides, ne dépendent pas de l'existence ou de la taille du REV du milieu fracturé car leur représentation des fractures est explicite. Ces modèles combinent la représentation discrète des fractures des modèles discrets (DFN pour Discrete Fracture Network) et la représentation de l'interaction entre deux milieux des modèles double-porosités. Les fractures dominantes du milieu sont représentées de manière explicite afin de conserver la localisation des écoulements tandis que les fractures non dominantes pour l'écoulement et la roche sont intégrées dans la matrice. *Dershowitz et Miller* [1995] développent ce type de modèle en attribuant à chaque fracture une partie de la matrice et modélisent les interactions fracture-matrice par l'utilisation du classique coefficient d'échange (Figure 20). Alternativement, *Wang et al.* [2004] évitent l'utilisation du coefficient d'échange pour relier les fractures dominantes (Discrete Medium Domain) à la matrice (Continuum Medium Domain) en résolvant les équations de flux par la méthode des éléments finis dans chacun des deux milieux. L'avantage de modéliser explicitement l'échange entre les deux domaines est contrebalancé par un coût numérique important en 2D et probablement prohibitif en 3D.

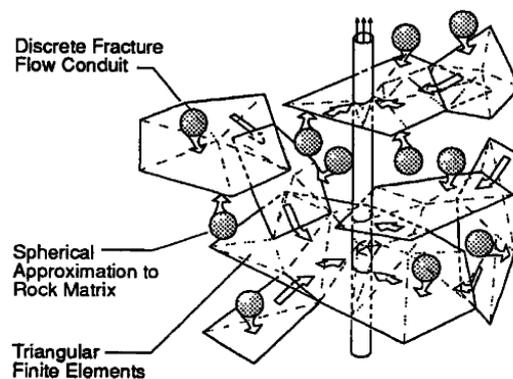


Figure 20 – Représentation schématique du modèle double-porosités discret [Dershowitz and Miller, 1995]. Le modèle double-porosités discret permet une représentation explicite des fractures dominantes tout en prenant en compte les effets de la porosité primaire du milieu.

Les milieux poreux fracturés se caractérisent par l'hétérogénéité des réseaux de fractures mais aussi par la distribution de la taille des blocs matriciels et par leur organisation. L'impact de l'hétérogénéité des blocs matriciels sur le comportement du milieu a été démontré [Belani, 1988; Jelmert, 1995] et les modèles double-porosités "élaborés" sont capables de prendre en compte les effets de la matrice pour des tailles et des formes diverses de blocs matriciels.

Cependant, la capacité à représenter la distribution hétérogène des blocs et leur organisation est généralement limitée aux modèles double-porosité continus et est donc aux dépens de la représentation des hétérogénéités du réseau de fractures. Un manque de connaissances est alors notable sur les effets combinés des hétérogénéités des propriétés et de l'agencement du réseau de fractures et de la distribution des blocs matriciels. La détermination de l'influence relative de chacune des deux structures "fractures" et "matrice" est nécessaire pour orienter les choix de représentation du milieu. Dans les cas extrêmes, l'effet d'une des structures dominera la réaction du milieu et permettra d'opter pour un concept de modélisation simplifiant la représentation de la structure aux effets "secondaires". Au contraire, dans les cas intermédiaires, les effets des deux structures seront déterminants pour une représentation pertinente du milieu et un concept de modélisation capable de prendre en compte les deux types d'hétérogénéités devra être utilisé.

2.5. Discussion

Il a été établi précédemment que les échanges de flux et de solutés entre les fractures dominantes et la matrice ont pour origine différents processus et sont dépendants des structures géologiques du milieu. D'un point de vue numérique, les modèles double-porosités sont particulièrement adaptés pour représenter les deux temps de réponse caractéristiques des hétérogénéités des milieux poreux fracturés. Cependant, ce cadre conceptuel reste incomplet. La critique principale que l'on peut formuler est la nécessité de choisir entre la représentation des hétérogénéités de la matrice et la représentation des hétérogénéités du réseau de fractures. Les améliorations apportées aux modèles double-porosités continus permettent une description pertinente de la matrice de l'échelle du bloc, caractérisé par des propriétés physiques hétérogènes, à l'échelle du milieu, caractérisé par une distribution de taille et de forme de blocs et un agencement des blocs pouvant être complexes. Cette prise en compte poussée des hétérogénéités de la matrice est cependant faite aux dépens du réseau de fractures dont les caractéristiques sont fortement simplifiées. Au contraire, les modèles double-porosités discrets axent leur représentation du milieu sur une description pertinente du milieu "fractures" en conservant les informations de l'échelle de la fracture, caractérisée par ses propriétés géométriques et hydrauliques, à l'échelle du réseau de fractures, caractérisé par l'agencement des fractures. Il paraît alors nécessaire de déterminer les propriétés clés des échanges fracture-matrice suivant les caractéristiques du milieu et ainsi de mettre en évidence le concept de modélisation le plus adapté. Il est probable que l'étude des effets combinés des deux structures mette en évidence l'existence de plusieurs régimes d'échange en fonction des caractéristiques du milieu. Dans les cas extrêmes, seulement une des deux structures aura un effet dominant sur les échanges, alors que dans les cas intermédiaires, les structures auront un effet combiné.

Dans le cadre de cette thèse, on s'attachera à étudier l'effet des structures du milieu sur le phénomène d'échange fracture-matrice. L'échange sera étudié de manière globale, aussi bien en termes d'écoulement de fluide que de transport de solutés. L'étude des phénomènes contribuant à l'échange sera succincte pour focaliser les travaux de recherche sur l'impact de l'organisation du milieu à différentes échelles. L'objectif étant ici d'offrir une réflexion sur les effets combinés des hétérogénéités des différentes structures et à différentes échelles. A l'échelle locale, l'évaluation de l'impact des structures sur les transferts sera axée sur les effets des propriétés physiques du bloc matriciel et des propriétés géométriques et hydrauliques de la fracture. Les effets de ces dernières propriétés seront aussi évalués à l'échelle globale du domaine en prenant en compte l'organisation du réseau de fractures et l'agencement des blocs

matriciels. La finalité de la présente étude étant de mettre en évidence les concepts de modélisation les plus adaptés suivant les propriétés des structures aux différentes échelles.

3. Observations et évaluation de l'impact des structures géologiques sur l'échange fracture matrice

3.1. Observations des effets des structures géologiques sur l'échange fracture matrice

Les échanges fracture-matrice sont la résultante de plusieurs phénomènes physiques et chimiques dépendant des propriétés du domaine "fractures" et du domaine "matrice" (section 2.2). Une des complexités principales dans la compréhension des transferts est liée à la définition en partie subjective de chacun de ces deux compartiments. L'intérêt de progresser dans l'identification de ces deux compartiments est de pouvoir intégrer dans l'approche double-porosité des informations de structure des milieux obtenues par des mesures géologiques, géophysiques ou hydrauliques. Les réactions du milieu naturel à différentes sollicitations hydrauliques sont à l'inverse une signature de structures géologiques et hydrauliques clés influençant l'échange entre fracture et matrice.

Les impacts des propriétés structurelles du milieu ont été mis évidence par plusieurs expériences. *Oden et al.* [2008] étudient les échanges aussi bien à l'échelle du bloc qu'à l'échelle du site (site Sellafield, UK) et montrent, à l'échelle du bloc, que la diffusion augmente quand la transmissivité diminue, et à l'échelle du site, que la chenalisation des flux impacte les retards liés à la diffusion. Plus précisément, la présence de chemins plus lents, correspondant à la présence de petites fractures, accentue les effets de retard liés à la matrice. L'importance de la présence de petites fractures pour les transferts a aussi été mise en évidence au cours de l'expérience MADE (US) pour laquelle les observations ne peuvent être reproduites que par un modèle prenant en compte les processus de diffusion aux petites échelles [*Harvey and Gorelick, 2000*].

Plusieurs auteurs ont montré que les modèles continus classiques tels que les modèles poreux équivalents et/ou les modèles double-porosité ne prennent pas en compte correctement les échanges dans la dynamique du milieu de par leur représentation simplifiée des fractures. Il est alors nécessaire d'utiliser des modèles soit plus complexes, tels que les modèles multi-porosité multi-processus [*Gwo et al., 2005; Meigs and Beauheim, 2001*], soit basés sur un autre concept de modélisation du milieu représentant explicitement les fractures [*Jorgensen et al., 2004*]. Les modèles discrets, basés sur une représentation explicite du réseau de fractures,

ont montré leur efficacité à reproduire les expériences de traçage de nombreuses études de sites à une échelle allant de quelques mètres à la centaine de mètre au maximum [Cvetkovic *et al.*, 2004; Maloszewski and Zuber, 1993] (Figure 21). Dans ces modèles, les informations de localisation, de géométries et de caractéristiques hydrauliques de chaque fracture sont conservées par l'utilisation de l'approche Discrete Fracture Network (DFN) pour représenter le réseau de fractures [Neuman, 2005] et le retard induit par diffusion des solutés dans la matrice est pris en compte par l'utilisation de solutions analytiques [Sudicky and Frind, 1982; Tang *et al.*, 1981]. Classiquement, les modèles discrets considèrent que les solutés circulent par advection dans les fractures et pénètrent par diffusion dans la matrice, le coefficient de diffusion effectif D_e étant représentatif de l'amplitude des échanges entre les fractures et la matrice et des hypothèses faites sur l'extension de la matrice.

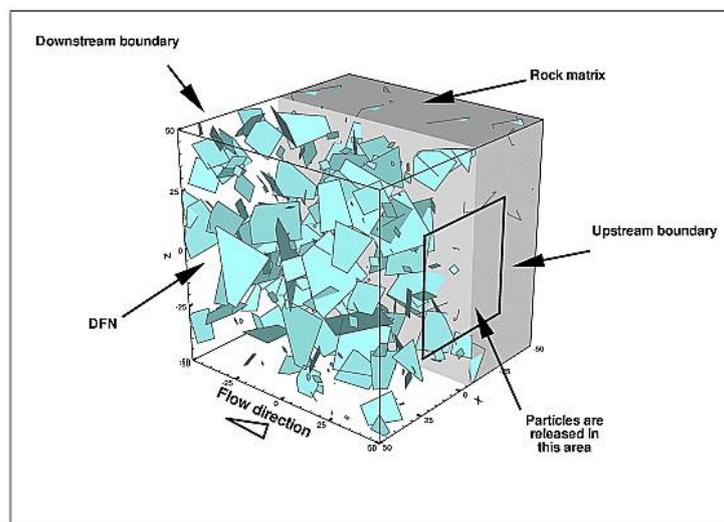


Figure 21 – Modélisation du site d'Aspo (Suisse) [Cvetkovic *et al.*, 2004].

Ce site est modélisé en utilisant l'approche DFN pour représenter le réseau de fractures et en utilisant une solution analytique pour prendre en compte le retard lié à la diffusion dans la matrice.

Plusieurs études indépendantes révèlent un effet d'échelle du coefficient de diffusion effectif D_e , ou autrement dit, une augmentation de ce coefficient avec la taille du domaine étudié [Zhou *et al.*, 2007]. Cette dépendance d'échelle a d'abord été observée en réalisant que le coefficient de diffusion évalué à l'échelle du laboratoire était systématiquement trop faible pour être appliqué à l'échelle du site. La nécessité de surestimer le coefficient de diffusion en augmentant l'échelle d'étude a aussi été observée à l'échelle du site. La Figure 22 montre l'évolution du facteur d'échelle, correspondant au rapport entre le coefficient de diffusion effectif (à l'échelle du site) et le coefficient de diffusion de référence (à l'échelle du laboratoire), en fonction de l'échelle du site étudié pour une quinzaine d'études indépendantes [Zhou *et al.*, 2007]. Plusieurs hypothèses ont été avancées pour justifier cet effet d'échelle du

transfert fracture-matrice et toutes les hypothèses mettent en cause l'impact des propriétés structurales du milieu sur l'échange. Plus précisément, il est quasiment établi que la surestimation du coefficient de diffusion compense l'impact d'une propriété du milieu favorisant l'échange mais non représentée dans les modèles utilisés. Cette propriété clé non modélisée peut être une caractéristique à l'échelle de la fracture ou du réseau de fractures. D'après *Neretnieks* [2002], la présence de fractures remplies de gouge est le facteur favorisant les échanges, alors que pour *Zhou et al.* [2006] il s'agit de l'existence d'une zone de dégradation à l'interface fracture matrice. *Wu et al.* [2004] et *Liu et al.* [2006] mettent en cause les propriétés du réseau de fractures, le premier argumentant que la caractéristique favorable aux échanges est la présence de petites fractures alors que le second met en avant une structuration fractale des réseaux.

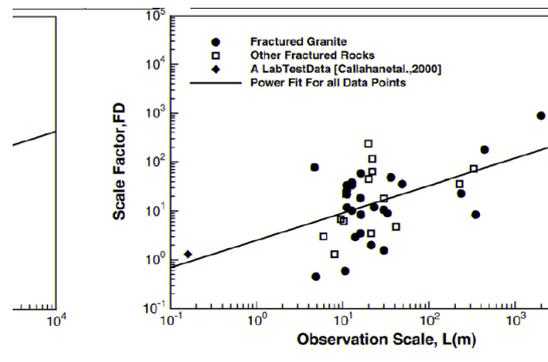


Figure 22 – Effet d'échelle du coefficient de diffusion effectif [*Zhou et al.*, 2007].

Une corrélation est observée entre le facteur d'échelle et l'échelle d'observation (taille du site étudié). Le facteur d'échelle est le rapport entre le coefficient de diffusion effectif (à l'échelle du site) et le coefficient de diffusion de référence (à l'échelle du laboratoire). La mise en évidence d'un effet d'échelle du coefficient de diffusion effectif montre que les échanges fracture-matrice sont influencés par l'échelle des structures considérées.

3.2. Evaluation de l'effet des structures sur les échanges entre fractures et matrice

3.2.1. Evaluation de l'effet des propriétés physiques de la matrice

Comme explicité précédemment, les modèles discrets prennent en compte le retard des solutés lié à leur diffusion dans la matrice en utilisant des solutions analytiques. L'une des solutions analytiques la plus couramment utilisée est celle développée par *Tang et al.* [1981]. Elle exprime l'évolution en espace et en temps d'un soluté se déplaçant par advection et dispersion 1D dans une fracture unique et pouvant diffuser dans la matrice environnante perpendiculairement à la fracture (Figure 23a). Dans ce cas, la matrice est considérée comme un domaine infini où le flux est négligeable et la diffusion unidirectionnelle. Par la suite, des solutions analytiques plus complexes ont été développées avec la prise en compte d'un réseau de fractures parallèles et régulièrement espacées [*Sudicky and Frind*, 1982] (Figure 23b), l'ajout de réactions chimiques [*Wallach and Parlange*, 1998] ou la prise en compte de la dispersion transversale dans la fracture et de l'advection dans la matrice [*Zhan et al.*, 2009].

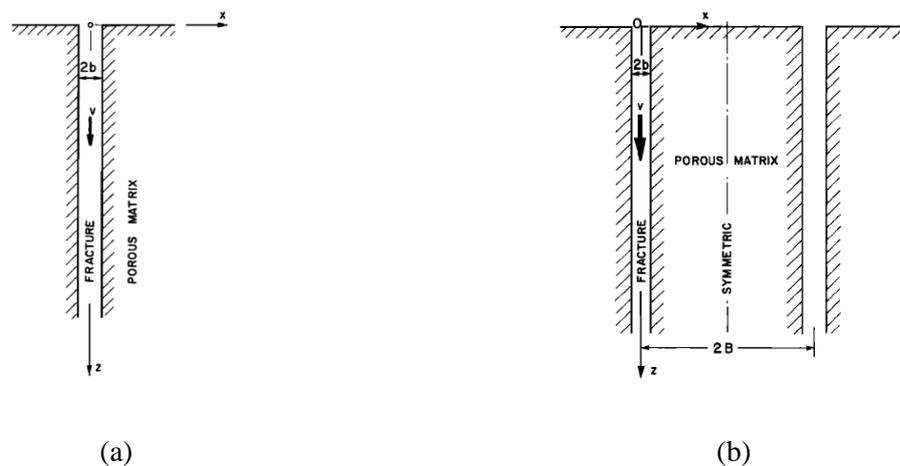


Figure 23 – Représentation simplifiée du système fracture(s)-matrice.

Le système fracture(s)-matrice peut être représenté comme (a) une fracture unique avec une matrice infinie [*Tang et al.*, 1981] ou (b) un réseau de fractures parallèles régulièrement espacées par une matrice de taille finie [*Sudicky and Frind*, 1982].

Cependant, toutes ces solutions analytiques représentent la diffusion dans la matrice comme un phénomène unidirectionnel perpendiculaire à la fracture et négligent donc l'effet de la diffusion longitudinale dans la matrice (parallèlement à la fracture). Cette hypothèse est couramment acceptée en considérant que le phénomène d'advection dans la fracture domine la dynamique du milieu et le déplacement longitudinal du soluté dans le milieu. Cependant,

l'impact de la diffusion longitudinale dans la matrice sur la dynamique des transferts de solutés n'est pas clairement établi et l'effet d'échelle observé du coefficient de diffusion effectif peut être lié à une influence croissante de ce phénomène. La relation entre l'advection dans la fracture et la diffusion longitudinale dans la matrice est caractérisée par le nombre de Péclet reliant ces deux phénomènes et la diffusion longitudinale dans la matrice peut être négligée pour des valeurs importantes de ce nombre de Péclet. Une étude rigoureuse, basée sur le développement d'une solution analytique prenant en compte la diffusion 2D dans la matrice, est nécessaire pour déterminer le nombre de Péclet critique à partir duquel l'hypothèse de diffusion matricielle 1D est acceptable. Autrement dit, l'évaluation de ce nombre de Péclet critique permettra, pour un site d'étude donné, de définir la complexité de la solution analytique à utiliser suivant l'impact de la diffusion longitudinale sur les transferts et sur la dynamique de réponse du milieu.

En développant une nouvelle méthode de résolution pour le transport dans une fracture unique entourée d'une matrice semi-infinie, nous proposons une solution analytique considérant les phénomènes d'advection 1D et de dispersion 2D dans la fracture et de diffusion 2D dans la matrice. La méthode de résolution est basée sur l'utilisation de fonctions de Green et les expressions des concentrations dans la fracture et la matrice sont équivalentes aux solutions analytiques connues dans les mêmes conditions d'application. Dans l'article suivant, la première partie décrit la méthode de résolution, la seconde montre le lien entre la solution obtenue et les solutions connues et la dernière partie sera dédiée à l'évaluation de l'impact de la diffusion longitudinale dans la matrice.

1 Solute transport for fractured-porous media-
2 Analytical solution for a single fracture with 2D
3 diffusion in the fracture and in the matrix

D. Roubinet,¹ J.-R. de Dreuzy,¹ and D. M. Tartakovsky²

J.-R. de Dreuzy, Géosciences Rennes, UMR CNRS 6118, Université de Rennes I, Rennes, France. (jean-raynald.de-dreuzy@univ-rennes1.fr)

D. Roubinet, Géosciences Rennes, UMR CNRS 6118, Université de Rennes I, Rennes, France. (delphine.roubinet@univ-rennes1.fr)

D. M. Tartakovsky, Department of Mechanical and Aerospace Engineering, University of California, San Diego, USA. (dmt@ucsd.edu)

¹Géosciences Rennes, UMR CNRS 6118, Université de Rennes I, Rennes, France.

²Department of Mechanical and Aerospace Engineering, University of California, San Diego, USA.

1. Introduction

4 Since matrix retention has been identified as a key factor of radionuclide retardation
5 [*Neretnieks*, 1980], analytical as well as semi-analytical solutions have been developed
6 for solute transport in simple fracture systems within a less permeable porous medium
7 [*Liu et al.*, 2007; *Sudicky and Frind*, 1982; *Tang et al.*, 1981]. These solutions have been
8 obtained assuming a strong dominance of advection conditions in the fracture and of dif-
9 fusion in the matrix. Assuming uniform transverse solute concentrations in the fracture,
10 *Tang et al.* [1981] developed an analytical solution with 1D advection and longitudinal
11 diffusion in the fracture and diffusion in the direction orthogonal to the fracture in a
12 semi-infinite matrix. This solution has been further extended to account for a matrix
13 bounded by neighboring parallel fractures [*Sudicky and Frind*, 1982]. These analytical
14 solutions have been widely used in the fracture-matrix context for interpreting field and
15 experimental observations [*Callahan et al.*, 2000; *Maloszewski and Zuber*, 1993; *Moreno*
16 *et al.*, 1985; *Zhou et al.*, 2007] and as a means for simulating fracture matrix transport in
17 more complex fracture geometries [*Liu et al.*, 2007; *Roubinet et al.*, 2010]. If the existing
18 analytical solutions of *Tang et al.* [1981] and *Sudicky and Frind* [1982] have become the
19 rule for the interpretation of fracture-matrix solute transport, their basic assumptions are
20 not systematically fully checked. In many cases as in centimeter to decimeter fracture
21 cored experiments [*Callahan et al.*, 2000], the ratio of matrix to fracture diffusion as well
22 as the fracture Peclet number are very large and the analytical solutions can be safely
23 used. At larger scales, the reported scale increase of the equivalent matrix diffusion [*Zhou*
24 *et al.*, 2007] may challenge the underlying assumptions of the classical fracture-matrix

25 interpretation framework. To determine the limits of validity of the existing analyti-
26 cal solutions, we develop a generalized analytical solution with 2D diffusion in both the
27 fracture and the matrix. The objective is to determine quantitatively the conditions of
28 application of the simplified solution of *Tang et al.* [1981]. The solution is obtained by
29 using Green's functions both in the fracture and in the matrix and coupling them at the
30 interface by concentration values and fluxes. Conditions are slightly different from that of
31 the aquifer/aquitard model of *Zhan et al.* [2009] that also consider a 2D diffusion in the
32 aquifer (fracture) and a 1D advection in the aquitard (matrix) orthogonal to that of the
33 aquifer. The further interests of the analytical solutions are to offer alternative analytical
34 solutions in those conditions where the conditions of applications of classical solutions
35 are not met. These analytical solutions are useful as extended interpretation frameworks
36 and as benchmarks for numerical methods [*Kolditz et al.*, 2002]. After developing the
37 analytical solution in section 2, we show how it simplifies to the other existing solutions
38 in section 3 and determine their area of relevance in section 4.

2. Solving method

2.1. Problem formulation

39 The studied system is composed of a single fracture embedded in an infinite matrix (Fig-
40 ure 1). The fracture is geometrically characterized by its half-aperture (b) and hydroli-
41 cally by the fluid velocity u and the diffusivity coefficients D_x^f and D_z^f . The fluid velocity
is uniform and constant and the diffusivity coefficients are expressed as $D_x^f = D_b.753-0.184405(1)-0.18440$

45 flow in the matrix part which is characterized by the diffusion coefficients D_x^m and D_z^m .

46 Classically, $D_x^m = D_z^m = \phi_m D_m$ where ϕ_m is the matrix porosity.

47 The space variables are x and z for the longitudinal and transversal directions respec-
 48 tively. For the longitudinal direction, x is defined as $A < x < +\infty$ with $A = 0$ for a
 49 semi-infinite fracture and $A = -\infty$ for an infinite fracture. For the transversal direction,
 50 the domains defined by $-b < z < 0$ and $0 < z < +\infty$ represent the half thickness of the
 51 fracture and the matrix part respectively.

52 The solute concentration behavior is represented by the following equations:

$$\partial_t c_f + u \partial_x c_f = D_x^f \partial_x^2 c_f + D_z^f \partial_z^2 c_f + f \quad (1)$$

$$\partial_t c_m = D_x^m \partial_x^2 c_m + D_z^m \partial_z^2 c_m \quad (2)$$

53 where c_f and c_m are the solute concentrations in the fracture part and in the matrix part
 54 respectively and f is a source term.

55 The initial conditions of the previous system are

$$\begin{aligned} c_f(x, z, 0) &= c_f^0(x, z) \\ c_m(x, z, 0) &= c_m^0(x, z) \end{aligned} \quad (3)$$

56 and the boundary conditions are for the fracture part

$$\begin{aligned} c_f(A, z, t) &= c_0(z, t) \\ c_f(+\infty, z, t) &= 0 \\ c_f(x, 0, t) &= c'(x, t) \\ \partial_z c_f(x, -l, t) &= 0 \end{aligned} \quad (4)$$

57 and for the matrix part

$$\begin{aligned}
c_m(A, z, t) &= 0 \\
c_m(+\infty, z, t) &= 0 \\
c_m(x, 0, t) &= c'(x, t) \\
c_m(x, +\infty, t) &= 0.
\end{aligned} \tag{5}$$

58 The solving method consists in determining generic expressions of c_f and c_m by using
59 the Green's functions associated to each domain for specific boundary conditions. The
60 two domains are coupled at the interface ($z = 0$) by a concentration continuity condition
61 represented by $c'(x, t)$.

For the following sections, the Laplace transform of the function h is defined as

$$\bar{h}(s) = L[h(t)] = \int_0^{+\infty} h(t)e^{-st} dt, \tag{6}$$

its Fourier transform as

$$\check{h}(\epsilon) = F[h(x)] = \int_{-\infty}^{+\infty} h(x)e^{-i\epsilon x} dx \tag{7}$$

and its Fourier Laplace transform as

$$\hat{h}(\epsilon, s) = \int_{-\infty}^{+\infty} \int_0^{+\infty} h(x, t)e^{-st}e^{-i\epsilon x} dt dx. \tag{8}$$

62 With the same notations, the inverse Laplace transform of the function h is $L^{-1}[h(s)]$
63 and its inverse Fourier transform is $F^{-1}[h(\epsilon)]$.

2.2. Concentration expressions for a semi-infinite fracture ($A = 0$)

64 For the case of a semi-infinite fracture ($A = 0$), the concentrations c_f and c_m can be
65 expressed as (Appendices A and B)

$$c_f = c_f^0 H_1 \star_{x,z} G_{f(t'=0)} + uc_0 H_2 \star_{z,t} G_{f(x'=0)} + D_x^f c_0 H_2 \star_{z,t} \partial_{x'} G_{f(x'=0)}$$

$$-D_z^f c' H_x \star_{x,t} \partial_{z'} G_{f(z'=0)} + f H_1 \star_{x,z,t} G_f \quad (9)$$

$$c_m = c_m^0 H_x H_z \star_{x,z} G_{m(t'=0)} + D_z^m c' H_x \star_{x,t} \partial_{z'} G_{m(z'=0)} \quad (10)$$

66 with $H_1(x, z) = H(x)H(-z)H(z + l)$, $H_2(z) = H(-z)H(z + l)$ and H the Heaviside
 67 function.

G_f is the Green's function solution of the equation

$$-\partial_{t'} G_f - u \partial_{x'} G_f = D_x^f \partial_{x'}^2 G_f + D_z^f \partial_{z'}^2 G_f + \delta(x - x', z - z', t - t')$$

68 with the conditions

$$\begin{aligned} G_f(x - x', z - z', 0) &= 0 \\ G_f(x, z - z', t - t') &= 0 \\ G_f(+\infty, z - z', t - t') &= 0 \\ G_f(x - x', z, t - t') &= 0 \\ \partial_{z'} G_f(x, x', z, -l, t, t') &= 0 \end{aligned} \quad (11)$$

and G_m is the Green's function solution of the equation

$$-\partial_{t'} G_m = D_x^m \partial_{x'}^2 G_m + D_z^m \partial_{z'}^2 G_m + \delta(x - x', z - z', t - t')$$

69 with the conditions

$$\begin{aligned} G_m(x - x', z - z', 0) &= 0 \\ G_m(+\infty, z - z', t - t') &= 0 \\ G_m(x, z - z', t - t') &= 0 \\ G_m(+\infty, t - t') &= 0 \\ G_m(z, t - t') &= 0. \end{aligned} \quad (12)$$

70 From the expressions (9) and (10), analytical solutions of solute behavior can be deduced
 71 for the fracture and the matrix part. The initial conditions are represented by c_f^0 and c_m^0
 72 and the condition injection by c_0 . The choice of the modeled processes is indicated by the
 73 values of the parameters u , D_x^f , D_z^f , D_x^m and D_z^m and by the use of the adequate Green's
 74 functions. For a single fracture system and a single matrix system, solute behavior is
 75 described by the expressions (9) and (10) respectively. A validation of these expressions
 76 is presented in the Appendix C. For a fracture matrix coupling system, both equations
 77 (9) and (10) express solute behavior with c' the concentration continuity condition at the
 78 fracture matrix interface. The flow continuity condition can be considered as a source
 79 term and represented by f (section 3.3) or as an explicit condition (section 3.4).

3. Simplification to existing solutions

80 This section aims at showing how to apply the generic expressions developed in the
 81 previous section to obtain some of the classical well-known analytical solution for ad-
 82 vection dispersion problem. The two first applications are for simple media with the
 83 determination of solutions for a single fracture system and a single matrix system. Then,
 84 we show applications for a fracture matrix system with different hypothesis on process
 85 representation and different coupling between the two media.

3.1. Fracture matrix coupling represented by a source term

86 The third application consists in applying the hypothesis and conditions assuming by
 87 *Tang et al.* [1981] to develop its analytical solution. We consider the simple case of pure 1D
 88 advection in the fracture and 1D diffusion (perpendicular to the fracture) in the matrix.
 89 The two domains are coupled by a concentration continuity condition and the fracture-

90 matrix exchange is considered as a source term in the fracture equation. The fracture
 91 is semi-infinite and fracture and matrix concentrations are expressed for a continuous
 92 injection on the finite side of the fracture.

This particular system is described by the conditions and parameters $c_f^0 = 0$, $D_x^f = 0$,
 $D_z^f = 0$ and

$$f(x, t) = \frac{D_m}{b} \left(\frac{\partial c_m}{\partial z} \right)_{z=0} \quad (13)$$

93 for the fracture part and by $c_m^0 = 0$ and $D_x^m = 0$ for the matrix part. As c_f is independent
 94 of z , we consider that $c' = c_f$. This equivalence will be used for the expression of c_m and
 95 corresponds to the condition (14a) of *Tang et al.* [1981].

96 By applying the previous parameters and conditions to the equations (9) and (10)
 97 and knowing that c_f and c_m are independent of z and x respectively, the concentration
 98 expressions are

$$c_f = uc_0 \star_t G_{f(x'=0)} + f \star_{x,t} G_f \quad (14)$$

$$c_m = D_z^m c_f \star_t \partial_{z'} G_{m(z'=0)}. \quad (15)$$

99 In this case, G_f is the Green's functions associated to advection process in the x -
 100 direction for a semi-infinite domain with no concentration at the boundaries and G_m is
 101 the Green's function associated to diffusion process in the z -direction for a semi-infinite
 102 domain with no concentration at the boundaries. They are expressed as

$$G_f(x - x', t - t') = \frac{1}{u} \delta[(t - t') - (x - x')/u] H(x - x')$$

$$G_m(z - z', t - t') = \frac{1}{2\sqrt{\pi D_z^m (t - t')}} \left[e^{-\frac{(z-z')^2}{4D_z^m (t-t')}} - e^{-\frac{(z+z')^2}{4D_z^m (t-t')}} \right].$$

103 By applying the Laplace Fourier transform defined by the relation (8) to the equations
 104 (14) and (15), we obtain the following formulations of the concentrations

$$\hat{c}_f = u\bar{c}_0\hat{G}_f + \hat{f}\hat{G}_f \quad (16)$$

$$\hat{c}_m = D_z^m \hat{c}_f \partial_{z'} \bar{G}_{m(z'=0)}. \quad (17)$$

From the equations (13) and (17), the Laplace Fourier transform of the source term is expressed as

$$\hat{f} = \frac{D_z^2}{b} \hat{c}_f \partial_{z'z}^2 \bar{G}_{m(z=0, z'=0)} \quad (18)$$

and by using this last expression in the equation (16)

$$\hat{c}_f = \frac{u\bar{c}_0\hat{G}_f}{1 - \frac{D_z^2}{b} \partial_{z'z}^2 \bar{G}_{m(z=0, z'=0)} \hat{G}_f}. \quad (19)$$

By inserting the expressions (F1) and (F3) in the equation (19), the fracture concentration is expressed in the Laplace Fourier space as

$$\hat{c}_f = \frac{\frac{c_0}{s}}{\frac{s}{u} + \sqrt{\frac{D_z^m s}{ub}} + i\epsilon} \quad (20)$$

and its Laplace transform is

$$\bar{c}_f = \frac{c_0}{s} e^{-\left(\frac{s}{u} + \sqrt{\frac{D_z^m s}{ub}}\right)x} H(x). \quad (21)$$

105 By replacing s by p , u by v , D_z^m by D' and x by z in the expression (21), we obtain the
 106 solution (41) of *Tang et al.* [1981] for the case $\lambda = 0$, $R = 1$ and $\theta = 1$.

The matrix concentration is deduced from the expression (17) and by using the expressions (20) and (F2)

$$\hat{c}_m = \frac{\frac{c_0}{s}}{\frac{s}{u} + \sqrt{\frac{D_z^m s}{ub}} + i\epsilon} e^{-\sqrt{\frac{s}{D_z^m}} z}$$

and its Laplace transform is

$$\bar{c}_m = \frac{c_0}{s} e^{-\frac{sx}{v}} e^{-\sqrt{s}\left(\frac{x}{u} \sqrt{\frac{D_z^m}{b}} - \frac{z}{\sqrt{D_z^m}}\right)} H(x). \quad (22)$$

107 By the same replacement than for the fracture part and with $z = x - b$ in the equation
 108 (22), we obtain the solution (43) of *Tang et al.* [1981].

3.2. Fracture matrix coupling represented by an explicit flow

In this section we aim at applying the generic expressions of c_f and c_m for the case of 1D advection and 2D dispersion in the fracture part and 1D diffusion in the matrix part. The two media are coupled by two continuity conditions: a concentration continuity condition, represented by c' , and a flow continuity condition represented by the following relation

$$D_z \partial_z c_{f(z=0)} = D_m \partial_z c_{m(z=0)}. \quad (23)$$

109 The problem is solved for a continuous injection done at the center of the fracture's
 110 thickness and at the position $x = 0$. We consider the following parameters and conditions

$$111 \quad c_f^0 = 0, f = 0$$

$$112 \quad c_m^0 = 0$$

113 and by applying them to the equations (9) and (10), we obtain the following concen-
 114 tration expressions

$$c_f = uc_0 H_2 \star_{z,t} G_{f(x'=0)} + D_x^f c_0 H_2 \star_{z,t} \partial_{x'} G_{f(x'=0)} - D_z^f c' H_x \star_{x,t} \partial_{z'} G_{f(z'=0)} \quad (24)$$

$$c_m = D_z^m c' H_x \star_{x,t} \partial_{z'} G_{m(z'=0)} \quad (25)$$

For the fracture part, the Green's function in the x -direction has to consider advection and dispersion processes for a semi-infinite medium with no concentration at the boundaries

$$G_f(x - x', t - t') = \frac{1}{2\sqrt{D_x^f \pi(t - t')}} e^{\frac{u}{2D_x^f} [(x-x') - \frac{u}{2}(t-t')]} \left[e^{-\frac{(x-x')^2}{4D_x^f(t-t')}} - e^{-\frac{(x+x')^2}{4D_x^f(t-t')}} \right]$$

and the Green's function in the z -direction has to consider dispersion process for a finite domain with no flow at the boundary $z = -l$ and no concentration at the boundary $z = 0$, and is deduced from the equation 14.3.4 of *Carslaw and Jaeger* [1959],

$$G_f(z - z', t - t') = \frac{2}{l} \sum_{n=1}^{+\infty} \cos[\alpha_n(z + l)] \cos[\alpha_n(z' + l)] e^{-D_z \alpha_n^2 (t - t')}.$$

115 The combinaison of both previous equations gives the Green's function for advection and
116 2D dispersion for the fracture part:

$$G_f(x - x', z - z', t - t') = \frac{1}{l \sqrt{D_x^f \pi (t - t')}} e^{\frac{u}{2D_x^f} [(x - x') - \frac{u}{2}(t - t')]} \left[e^{-\frac{(x - x')^2}{4D_x^f (t - t')}} - e^{-\frac{(x + x')^2}{4D_x^f (t - t')}} \right] \sum_{n=1}^{+\infty} \cos[\alpha_n(z + l)] \cos[\alpha_n(z' + l)] e^{-D_z \alpha_n^2 (t - t')}$$

117 with $\alpha_n = \frac{1}{l} [\pi(n - 1) + \pi/2]$.

For the matrix part, the Green's function has to represent diffusion in the z -direction for a semi-infinite domain with no concentration at the boundaries

$$G_m(z - z', t - t') = \frac{1}{2\sqrt{\pi D_z^m (t - t')}} \left[e^{-\frac{(z - z')^2}{4D_z^m (t - t')}} - e^{-\frac{(z + z')^2}{4D_z^m (t - t')}} \right].$$

118 After development, this case will be validated with the results of *Zhan et al.* [2009].

4. Relevence of the 1D matrix diffusion assumption

5. Discussion and perspectives

Appendix A: Generic expression of c_f for a semi-infinite fracture ($A = 0$)

$$\begin{aligned}
 & \int_{-l}^0 \int_0^{+\infty} \int_0^t \partial_{t'} c_f(x', z', t') G_f(x - x', z - z', t - t') dt' dx' dz' \\
 &= - \int_{-l}^0 \int_0^{+\infty} c_f^0(x', z') G_f(x - x', z - z', t) dx' dz' \\
 & - \int_{-l}^0 \int_0^{+\infty} \int_0^t c_f(x', z', t') \partial_{t'} G_f(x - x', z - z', t - t') dt' dx' dz'
 \end{aligned} \tag{A1}$$

119 with $G_f(x - x', z - z', 0) = 0$ and $c_f(x, z, 0) = c_f^0(x, z)$.

$$\begin{aligned}
 & \int_0^t \int_{-l}^0 \int_0^{+\infty} \partial_{x'} c_f(x', z', t') G_f(x - x', z - z', t - t') dx' dz' dt' \\
 &= - \int_0^t \int_{-l}^0 c_0 G_f(x, z - z', t - t') dz' dt' \\
 & - \int_0^t \int_{-l}^0 \int_0^{+\infty} c_f(x', z', t') \partial_{x'} G_f(x - x', z - z', t - t') dx' dz' dt'
 \end{aligned} \tag{A2}$$

120 with $c_f(0, z, t) = c_0$ and $c_f(+\infty, z, t) = 0$.

$$\begin{aligned}
 & \int_0^t \int_{-l}^0 \int_0^{+\infty} \partial_{x'}^2 c_f(x', z', t') G_f(x - x', z - z', t - t') dx' dz' dt' \\
 &= - \int_0^t \int_{-l}^0 \int_0^{+\infty} \partial_{x'} c_f(x', z', t') \partial_{x'} G_f(x - x', z - z', t - t') dx' dz' dt' \\
 &= \int_0^t \int_{-l}^0 c_0 \partial_{x'} G_f(x, z - z', t - t') dz' dt' \\
 & + \int_0^t \int_{-l}^0 \int_0^{+\infty} c_f(x', z', t') \partial_{x'}^2 G_f(x - x', z - z', t - t') dx' dz' dt'
 \end{aligned} \tag{A3}$$

121 with $G_f(x, z - z', t - t') = 0$ and $G_f(+\infty, z - z', t - t') = 0$.

$$\begin{aligned}
 & \int_0^{+\infty} \int_0^t \int_{-l}^0 \partial_{z'}^2 c_f(x', z', t') G_f(x - x', z - z', t - t') dz' dt' dx' \\
 &= - \int_0^{+\infty} \int_0^t \int_{-l}^0 \partial_{z'} c_f(x', z', t') \partial_{z'} G_f(x - x', z - z', t - t') dz' dt' dx' \\
 &= - \int_0^{+\infty} \int_0^t c'(x', t') \partial_{z'} G_f(x - x', z, t - t') dt' dx' \\
 & + \int_0^{+\infty} \int_0^t \int_{-l}^0 c_f(x', z', t') \partial_{z'}^2 G_f(x - x', z - z', t - t') dz' dt' dx'
 \end{aligned} \tag{A4}$$

122 with $G_f(x - x', z, t - t') = 0$, $\partial_z c_f(x, -l, t) = 0$, $c_f(x, 0, t) = c'(x, t)$ and

123 $\partial_{z'} G_f(x, x', z, -l, t, t') = 0$.

124 By reporting the equations (A1), (A2), (A3) and (A4) in the equation (1):

$$\begin{aligned}
& - \int_{-l}^0 \int_0^{+\infty} c_f^0(x', z') G_f(x - x', z - z', t) dx' dz' \\
& - \int_{-l}^0 \int_0^{+\infty} \int_0^t c_f(x', z', t') \partial_{t'} G_f(x - x', z - z', t - t') dt' dx' dz' \\
& - u \int_0^t \int_{-l}^0 c_0 G_f(x, z - z', t - t') dz' dt' \\
& - u \int_0^t \int_{-l}^0 \int_0^{+\infty} c_f(x', z', t') \partial_{x'} G_f(x - x', z - z', t - t') dx' dz' dt' \\
& = D_x^f \int_0^t \int_{-l}^0 c_0 \partial_{x'} G_f(x, z - z', t - t') dz' dt' \\
& + D_x^f \int_0^t \int_{-l}^0 \int_0^{+\infty} c_f(x', z', t') \partial_{x'}^2 G_f(x - x', z - z', t - t') dx' dz' dt' \\
& - D_z^f \int_0^{+\infty} \int_0^t c'(x', t') \partial_{z'} G_f(x - x', z, t - t') dt' dx' \\
& + D_z^f \int_0^{+\infty} \int_0^t \int_{-l}^0 c_f(x', z', t') \partial_{z'}^2 G_f(x - x', z - z', t - t') dz' dt' dx' \\
& + \int_{-l}^0 \int_0^{+\infty} \int_0^t f(x', z', t') G_f(x - x', z - z', t - t') dt' dx' dz'
\end{aligned}$$

and by assuming that $G_f(x - x', z - z', t - t')$ is a solution of the following equation

$$-\partial_{t'} G_f - u \partial_{x'} G_f = D_x^f \partial_{x'}^2 G_f + D_z^f \partial_{z'}^2 G_f + \delta(x - x', z - z', t - t'),$$

125 we deduce the following expression of c_f

$$\begin{aligned}
c_f(x, z, t) &= \int_{-l}^0 \int_0^{+\infty} c_f^0(x', z') G_f(x - x', z - z', t) dx' dz' \\
& + u \int_0^t \int_{-l}^0 c_0(z', t') G_f(x, z - z', t - t') dz' dt' \\
& + D_x^f \int_0^t \int_{-l}^0 c_0(z', t') \partial_{x'} G_f(x, z - z', t - t') dz' dt' \\
& - D_z^f \int_0^{+\infty} \int_0^t c'(x', t') \partial_{z'} G_f(x - x', z, t - t') dt' dx' \\
& + \int_{-l}^0 \int_0^{+\infty} \int_0^t f(x', z', t') G_f(x - x', z - z', t - t') dt' dx' dz'.
\end{aligned}$$

126

$$\begin{aligned}
c_f(x, z, t) &= \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} c_f^0(x', z') H_1(x', z') G_f(x - x', z - z', t) dx' dz' \\
& + u \int_0^t \int_{-\infty}^{+\infty} c_0(z', t') H_2(z') G_f(x, z - z', t - t') dz' dt'
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 & +D_x^f \int_0^t \int_{-\infty}^{+\infty} c_0(z', t') H_2(z') \partial_{x'} G_f(x, z - z', t - t') dz' dt' \\
 & -D_z^f \int_{-\infty}^{+\infty} \int_0^t c'(x', t') H(x') \partial_{z'} G_f(x - x', z, t - t') dt' dx' \\
 & + \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_0^t f(x', z', t') H_1(x', z') G_f(x - x', z - z', t - t') dt' dx' dz'.
 \end{aligned}$$

127 with $H_1(x, z) = H(x)H(-z)H(z + l)$ and $H_2(z) = H(-z)H(z + l)$

$$\begin{aligned}
 c_f = & c_f^0 H_1 \star_{x,z} G_{f(t'=0)} + u c_0 H_2 \star_{z,t} G_{f(x'=0)} + D_x^f c_0 H_2 \star_{z,t} \partial_{x'} G_{f(x'=0)} \\
 & - D_z^f c' H_x \star_{x,t} \partial_{z'} G_{f(z'=0)} + f H_1 \star_{x,z,t} G_f.
 \end{aligned}$$

Appendix B: Generic expression of c_m for a semi-infinite domain ($A = 0$)

$$\begin{aligned}
 & \int_0^{+\infty} \int_0^{+\infty} \int_0^t \partial_{t'} c_m(x', z', t') G_m(x - x', z - z', t - t') dt' dx' dz' \\
 & = - \int_0^{+\infty} \int_0^{+\infty} c_m^0(x', z') G_m(x - x', z - z', t) dx' dz' \\
 & - \int_0^{+\infty} \int_0^{+\infty} \int_0^t c_m(x', z', t') \partial_{t'} G_m(x - x', z - z', t - t') dt' dx' dz' \tag{B1}
 \end{aligned}$$

128 with $G_m(x - x', z - z', 0) = 0$ and $c_m(x, z, 0) = c_m^0(x, z)$.

$$\begin{aligned}
 & \int_0^{+\infty} \int_0^t \int_0^{+\infty} \partial_{x'}^2 c_m(x', z', t') G_m(x - x', z - z', t - t') dx' dz' dt' \\
 & = - \int_0^{+\infty} \int_0^t \int_0^{+\infty} \partial_{x'} c_m(x', z', t') \partial_{x'} G_m(x - x', z - z', t - t') dx' dz' dt' \\
 & = \int_0^{+\infty} \int_0^t \int_0^{+\infty} c_m(x', z', t') \partial_{x'}^2 G_m(x - x', z - z', t - t') dx' dz' dt' \tag{B2}
 \end{aligned}$$

129 with $G_m(+\infty, z - z', t - t') = 0$, $G_m(x, z - z', t - t') = 0$, $c_m(+\infty, z', t') = 0$ and $c_m(0, z', t') =$

130 0.

$$\begin{aligned}
 & \int_0^{+\infty} \int_0^t \int_0^{+\infty} \partial_{z'}^2 c_m(x', z', t') G_m(x - x', z - z', t - t') dz' dt' dx' \\
 & = - \int_0^{+\infty} \int_0^t \int_0^{+\infty} \partial_{z'} c_m(x', z', t') \partial_{z'} G_m(x - x', z - z', t - t') dz' dt' dx'
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
&= \int_0^{+\infty} \int_0^t c'(x', t') \partial_{z'} G_m(x - x', z, t - t') dt' dx' \\
&+ \int_0^{+\infty} \int_0^t \int_0^{+\infty} c_m(x', z', t') \partial_{z'}^2 G_m(x - x', z - z', t - t') dz' dt' dx' \tag{B3}
\end{aligned}$$

131 with $G_m(+\infty, t - t') = 0$, $G_m(z, t - t') = 0$, $c_m(x', +\infty, t') = 0$ and $c_m(x', 0, t') = c'(x', t')$.

132 By reporting the equations (B1), (B2) and (B3) in the equation (2):

$$\begin{aligned}
&- \int_0^{+\infty} \int_0^{+\infty} c_m^0(x', z') G_m(x - x', z - z', t) dx' dz' \\
&- \int_0^{+\infty} \int_0^{+\infty} \int_0^t c_m(x', z', t') \partial_{t'} G_m(x - x', z - z', t - t') dt' dx' dz' \\
&= D_x^m \int_0^{+\infty} \int_0^t \int_0^{+\infty} c_m(x', z', t') \partial_{x'}^2 G_m(x - x', z - z', t - t') dx' dz' dt' \\
&+ D_z^m \int_0^{+\infty} \int_0^t c'(x', t') \partial_{z'} G_m(x - x', z, t - t') dt' dx' \\
&+ D_z^m \int_0^{+\infty} \int_0^t \int_0^{+\infty} c_m(x', z', t') \partial_{z'}^2 G_m(x - x', z - z', t - t') dz' dt' dx'
\end{aligned}$$

and by assuming that $G_m(z - z', t - t')$ is a solution of the following equation

$$-\partial_{t'} G_m = D_x^m \partial_{x'}^2 G_m + D_z^m \partial_{z'}^2 G_m + \delta(x - x', z - z', t - t'),$$

133 the expression of c_m is

$$\begin{aligned}
c_m(x, z, t) &= \int_0^{+\infty} \int_0^{+\infty} c_m^0(x', z') G_m(x - x', z - z', t) dx' dz' \\
&+ D_z^m \int_0^{+\infty} \int_0^t c'(x', t') \partial_{z'} G_m(x - x', z, t - t') dt' dx'
\end{aligned}$$

134

$$\begin{aligned}
c_m(x, z, t) &= \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} H(x') H(z') c_m^0(x', z') G_m(x - x', z - z', t) dx' dz' \\
&+ D_z^m \int_{-\infty}^{+\infty} \int_0^t H(x') c'(x', t') \partial_{z'} G_m(x - x', z, t - t') dt' dx'
\end{aligned}$$

and finally

$$c_m = c_m^0 H_x H_z \star_{x,z} G_m(t'=0) + D_z^m c' H_x \star_{x,t} \partial_{z'} G_m(z'=0).$$

Appendix C: Validation of the concentration expressions

135 This appendix aims at validating the concentration expressions (9) and (10) for a single
 136 fracture system and a single matrix system respectively by comparison with well-known
 137 analytical solutions.

C1. Single fracture system

We demonstrate in this section that the analytical solution for 1D advection and dispersion in a semi-infinite column with a continuous injection is a particular case of the equation (9). By applying the parameters and conditions $c_f^0 = 0$, $D_z^f = 0$ and $f = 0$ to the equation (9) and knowing that c_f is z -independent, we obtain the following expression

$$c_f(x, t) = uc_0 \int_0^t G_{f(x'=0)} dt' + D_x^f c_0 \int_0^t \partial_{x'} G_{f(x'=0)} dt'. \quad (C1)$$

In this particular case, G_f is the Green's function associated to advection and dispersion processes in the x -direction for a semi-inifinte domain with no concentration at the boundaries and is expressed as

$$G_f(x - x', t - t') = \frac{1}{2\sqrt{D_x^f \pi(t - t')}} e^{\frac{u}{2D_x^f} [(x-x') - \frac{u}{2}(t-t')]} \left[e^{-\frac{(x-x')^2}{4D_x^f(t-t')}} - e^{-\frac{(x+x')^2}{4D_x^f(t-t')}} \right].$$

From the expressions (D1) and (D2) applied to the formulation (C1), the fracture concentration is

$$c_f(x, t) = \frac{c_0}{2} \left[e^{\frac{ux}{D_x^f}} \operatorname{erfc} \left(\frac{x + ut}{2\sqrt{D_x^f t}} \right) + \operatorname{erfc} \left(\frac{x - ut}{2\sqrt{D_x^f t}} \right) \right]. \quad (C2)$$

138 By replacing u by q/n and D_x^f by D' in the expression (C2), we obtain the analytical
 139 solution for a semi-infinite column with a constant continuous injection with a steady flow
 140 and a dispersion decay described by the equation (10.6.22) of *Bear* [1972].

C2. Single matrix system

As a second application of the generic concentration expressions, we study the case of 1D diffusion in the matrix part with a constant concentration in the fracture part. By applying the conditions $c_m^0 = 0$ and $c' = c_0$ to the equation (10) and knowing that the concentration c_m is independent of the variable x , the matrix concentration is expressed as

$$c_m(z, t) = D_z^m \int_0^t c_0 \partial_{z'} G_{m(z'=0)} dt'. \quad (\text{C3})$$

For this particular case, G_m is the Green's function associated to diffusion process in the z -direction for a semi-infinite domain with no concentration at the boundaries and is expressed as

$$G_m(z - z', t - t') = \frac{1}{2\sqrt{\pi D_z^m (t - t')}} \left[e^{-\frac{(z-z')^2}{4D_z^m (t-t')}} - e^{-\frac{(z+z')^2}{4D_z^m (t-t')}} \right].$$

From the expression (E1) applied to the equation (C3), the matrix concentration is

$$c_m(z, t) = c_0 \operatorname{erfc} \left(\frac{z}{2\sqrt{D_z^m t}} \right). \quad (\text{C4})$$

141 By replacing z by x and D_z^m by D in the expression (C4), we obtain the analytical
 142 solution of diffusion equation for a semi-infinite domain with constant injection described
 143 by the equation (2.44) of *Crank* [1975].

Appendix D: Evaluation of Green's functions for the single fracture system

For G_f the Green's function associated to 1D advection and dispersion in the x -direction for a semi-infinite domain with no concentration at the boundaries expressed as

$$G_f(x - x', t - t') = \frac{1}{2\sqrt{D_x^f \pi (t - t')}} e^{\frac{u}{2D_x^f} [(x-x') - \frac{u}{2}(t-t')]} \left[e^{-\frac{(x-x')^2}{4D_x^f (t-t')}} - e^{-\frac{(x+x')^2}{4D_x^f (t-t')}} \right]$$

144 we determine the following particular values

$$G_f(x'=0) = 0 \tag{D1}$$

145

$$\begin{aligned} \partial_{x'} G_f(x-x', t-t') = & \frac{1}{4D_x^{f3/2} \sqrt{\pi(t-t')}} e^{-\frac{u^2}{4D_x^f}(t-t')} e^{\frac{u}{2D_x^f}(x-x')} \\ & \left\{ -u \left[e^{-\frac{(x-x')^2}{4D_x^f(t-t')}} - e^{-\frac{(x+x')^2}{4D_x^f(t-t')}} \right] + \left[\frac{x-x'}{t-t'} e^{-\frac{(x-x')^2}{4D_x^f(t-t')}} + \frac{x+x'}{t-t'} e^{-\frac{(x+x')^2}{4D_x^f(t-t')}} \right] \right\} \end{aligned}$$

146

$$\partial_{x'} G_f(x'=0) = \frac{x}{2\sqrt{\pi}[D_x^f(t-t')]^{3/2}} e^{-\frac{[x-u(t-t')]^2}{4D_x^f(t-t')}}. \tag{D2}$$

Appendix E: Evaluation of Green's functions for the single matrix system

For G_m the Green's function associated to 1D diffusion in the z -direction for a semi-infinite domain with no concentration at the boundaries expressed as

$$G_m(z-z', t-t') = \frac{1}{2\sqrt{\pi}D_z^m(t-t')} \left[e^{-\frac{(z-z')^2}{4D_z^m(t-t')}} - e^{-\frac{(z+z')^2}{4D_z^m(t-t')}} \right],$$

147 we determine the following particular values

$$\partial_{z'} G_m(z-z', t-t') = \frac{1}{4\sqrt{\pi}[D_z^m(t-t')]^{3/2}} \left[(z-z')e^{-\frac{(z-z')^2}{4D_z^m(t-t')}} + (z+z')e^{-\frac{(z+z')^2}{4D_z^m(t-t')}} \right]$$

148

$$\partial_{z'} G_m(z'=0) = \frac{ze^{-\frac{z^2}{4D_z^m(t-t')}}}{2\sqrt{\pi}[D_z^m(t-t')]^{3/2}}. \tag{E1}$$

Appendix F: Evaluation of Green's functions for a coupling represented by a source term

For G_f the Green's function associated to advection in the x -direction for a semi-infinite domain with no concentration at the boundaries expressed as

$$G_f(x-x', t-t') = \frac{1}{u} \delta[(t-t') - (x-x')/u] H(x-x')$$

149 we determine the following particular values

$$\hat{G}_f = \frac{1}{s + iu\epsilon}. \quad (\text{F1})$$

For G_m the Green's function associated to 1D diffusion in the z -direction for a semi-infinite domain with no concentration at the boundaries expressed as

$$G_m(z - z', t - t') = \frac{1}{2\sqrt{\pi D_z^m(t - t')}} \left[e^{-\frac{(z-z')^2}{4D_z^m(t-t')}} - e^{-\frac{(z+z')^2}{4D_z^m(t-t')}} \right],$$

150 we determine the following particular values

$$\partial_{z'} G_m(z - z', t - t') = \frac{1}{4\sqrt{\pi} [D_z^m(t - t')]^{3/2}} \left[(z - z') e^{-\frac{(z-z')^2}{4D_z^m(t-t')}} + (z + z') e^{-\frac{(z+z')^2}{4D_z^m(t-t')}} \right]$$

151

$$\partial_{z'} G_m(z'=0) = \frac{ze^{-\frac{z^2}{4D_z^m(t-t')}}}{2\sqrt{\pi} [D_z^m(t - t')]^{3/2}}$$

152 From the expression (G1)

$$\partial_{z'} \bar{G}_m(z'=0) = \frac{e^{-\sqrt{\frac{s}{D_z^m}} z}}{D_z^m} \quad (\text{F2})$$

153

$$\begin{aligned} \partial_{z'}^2 G_m &= \frac{1}{4\sqrt{\pi} (D_m t)^{3/2}} \left[e^{-\frac{(z-z')^2}{4D_m t}} - \frac{(z-z')^2}{2D_m t} e^{-\frac{(z-z')^2}{4D_m t}} + e^{-\frac{(z+z')^2}{4D_m t}} - \frac{(z+z')^2}{2D_m t} e^{-\frac{(z+z')^2}{4D_m t}} \right] \\ &= \frac{1}{4\sqrt{\pi} D_m^{3/2}} \frac{e^{-\frac{(z-z')^2}{4D_m t}}}{t^{3/2}} - \frac{(z-z')^2}{8\sqrt{\pi} D_m^{5/2}} \frac{e^{-\frac{(z-z')^2}{4D_m t}}}{t^{5/2}} + \frac{1}{4\sqrt{\pi} D_m^{3/2}} \frac{e^{-\frac{(z+z')^2}{4D_m t}}}{t^{3/2}} - \frac{(z+z')^2}{8\sqrt{\pi} D_m^{5/2}} \frac{e^{-\frac{(z+z')^2}{4D_m t}}}{t^{5/2}} \end{aligned}$$

154 from (G1) and (G2)

$$\begin{aligned} \partial_{z'}^2 \bar{G}_m &= \frac{1}{4\sqrt{\pi} D_m^{3/2}} \sqrt{\pi} \sqrt{\frac{4D_m}{(z-z')^2}} e^{-2\sqrt{\frac{(z-z')^2}{4D_m}} s} \\ &\quad - \frac{(z-z')^2}{8\sqrt{\pi} D_m^{5/2}} \left\{ \sqrt{\pi} \sqrt{s} \frac{4D_m}{(z-z')^2} e^{-2\sqrt{\frac{(z-z')^2}{4D_m}} s} + \frac{\sqrt{\pi}}{2} \left[\frac{4D_m}{(z-z')^2} \right]^{3/2} e^{-2\sqrt{\frac{(z-z')^2}{4D_m}} s} \right\} \\ &\quad + \frac{1}{4\sqrt{\pi} D_m^{3/2}} \sqrt{\pi} \sqrt{\frac{4D_m}{(z+z')^2}} e^{-2\sqrt{\frac{(z+z')^2}{4D_m}} s} \\ &\quad - \frac{(z+z')^2}{8\sqrt{\pi} D_m^{5/2}} \left\{ \sqrt{\pi} \sqrt{s} \frac{4D_m}{(z+z')^2} e^{-2\sqrt{\frac{(z+z')^2}{4D_m}} s} + \frac{\sqrt{\pi}}{2} \left[\frac{4D_m}{(z+z')^2} \right]^{3/2} e^{-2\sqrt{\frac{(z+z')^2}{4D_m}} s} \right\} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 &= \frac{1}{2D_m(z-z')} e^{-2\sqrt{\frac{(z-z')^2}{4D_m}}s} - \frac{\sqrt{s}}{2D_m^{3/2}} e^{-2\sqrt{\frac{(z-z')^2}{4D_m}}s} - \frac{1}{2D_m(z-z')} e^{-2\sqrt{\frac{(z-z')^2}{4D_m}}s} \\
 &+ \frac{1}{2D_m(z+z')} e^{-2\sqrt{\frac{(z+z')^2}{4D_m}}s} - \frac{\sqrt{s}}{2D_m^{3/2}} e^{-2\sqrt{\frac{(z+z')^2}{4D_m}}s} - \frac{1}{2D_m(z+z')} e^{-2\sqrt{\frac{(z+z')^2}{4D_m}}s} \\
 &= -\frac{\sqrt{s}}{2D_m^{3/2}} e^{-2\sqrt{\frac{(z-z')^2}{4D_m}}s} - \frac{\sqrt{s}}{2D_m^{3/2}} e^{-2\sqrt{\frac{(z+z')^2}{4D_m}}s}
 \end{aligned}$$

155

$$\partial_{z'z}^2 \bar{G}_{m(z=0, z'=0)} = -\frac{\sqrt{s}}{D_m^{3/2}}. \tag{F3}$$

Appendix G: Laplace transform expressions

$$L\left(\frac{e^{-a/t}}{t^{3/2}}\right) = \int_0^{+\infty} \frac{e^{-a/t}}{t^{3/2}} e^{-st} dt = \sqrt{\frac{\pi}{a}} e^{-2\sqrt{as}} \tag{G1}$$

$$L\left(\frac{e^{-a/t}}{t^{5/2}}\right) = \int_0^{+\infty} \frac{e^{-a/t}}{t^{5/2}} e^{-st} dt = \frac{\sqrt{\pi}\sqrt{s}}{a} e^{-2\sqrt{as}} + \frac{\sqrt{\pi}}{2a^{3/2}} e^{-2\sqrt{as}} \tag{G2}$$

$$L[f(t-a)H(t-a)] = e^{-as} L[f(t)] \tag{G3}$$

From Abramowitz (eq 29.3.83) and for $k \geq 0$

$$L\left[\operatorname{erfc}\left(\frac{k}{2\sqrt{t}}\right)\right] = \frac{1}{s} e^{-k\sqrt{s}} \tag{G4}$$

$$L\left(\frac{e^{-\frac{a}{t}-bt}}{\sqrt{t}}\right) = \frac{\sqrt{\pi}}{\sqrt{b+s}} e^{-2\sqrt{a(b+s)}} \tag{G5}$$

$$L\left(\frac{e^{-\frac{a}{t}-bt}}{t^{3/2}}\right) = \frac{\sqrt{\pi}}{\sqrt{a}} e^{-2\sqrt{a(b+s)}} \tag{G6}$$

$$L\left(\frac{e^{-\frac{a}{t}-bt}}{t^{5/2}}\right) = \frac{\sqrt{\pi}\sqrt{b+s}}{a}e^{-2\sqrt{a(b+s)}} + \frac{\sqrt{\pi}}{2a^{3/2}}e^{-2\sqrt{a(b+s)}} \quad (\text{G7})$$

Appendix H: Fourier transform expressions

For $\text{Re}(a) > 0$

$$F\left[e^{-\frac{x^2}{a}}\right] = \sqrt{\pi a}e^{-\frac{a}{4}\epsilon^2} \quad (\text{H1})$$

For $\text{Re}(b) > 0$

$$F\left[e^{-\frac{(x-a)^2}{b}}\right] = \sqrt{\pi b}e^{-ia\epsilon - \frac{b}{4}\epsilon^2} \quad (\text{H2})$$

For $\text{Re}(b) > 0$

$$F\left[xe^{-\frac{(x-a)^2}{b}}\right] = \frac{\sqrt{\pi b}}{2}(2a - i\epsilon b)e^{-ia\epsilon - \frac{b}{4}\epsilon^2} \quad (\text{H3})$$

Appendix I: Inverse Laplace transform expressions

$$L^{-1}\left[\hat{f}(s+a)\right] = e^{-at}L^{-1}\left[\hat{f}(s)\right] \quad (\text{I1})$$

Appendix J: Integrate formulations

¹⁵⁶ For $b > 0$ and $c > 0$

$$\int_a^{+\infty} xe^{-bx^2+cx} dx = \frac{\sqrt{\pi c}}{4b^{3/2}}e^{\frac{c^2}{4b}}\text{erfc}\left(\frac{2ab-c}{2\sqrt{b}}\right) + \frac{1}{2b}e^{-a^2b+ac} \quad (\text{J1})$$

¹⁵⁷ **Acknowledgments.**

References

- 158 Bear, J. (1972), *Dynamics of fluids in porous media*, Elsevier.
- 159 Callahan, T. J., P. W. Reimus, R. S. Bowman, and M. J. Haga (2000), Using multi-
160 ple experimental methods to determine fracture/matrix interactions and dispersion of
161 nonreactive solutes in saturated volcanic tuff, *Water Resources Research*, *36*(12), 3547–
162 3558.
- 163 Carslaw, H., and J. C. Jaeger (1959), *Conduction of heat in solids*, Oxford Univers. Press.
- 164 Crank, J. (1975), *The mathematics of diffusion / by J. Crank*, Oxford science publications,
165 Clarendon Press, Oxford [England] :, (John) 2nd ed. Includes indexes. Bibliography: p.
166 [399]-406. Accessed from <http://nla.gov.au/nla.cat-vn2708850>.
- 167 Kolditz, O., Author, L. A. Glenn, and Reviewer (2002), Computational methods in envi-
168 ronmental fluid mechanics, *Applied Mechanics Reviews*, *55*(6), B117–B118.
- 169 Liu, H. H., Y. Q. Zhang, and F. J. Molz (2007), Scale dependence of the effective matrix
170 diffusion coefficient: Some analytical results, *Vadose Zone Journal*, *6*(3), 679–683, liu,
171 H. H. Zhang, Y. Q. Molz, F. J. 18 SOIL SCI SOC AMER.
- 172 Maloszewski, P., and A. Zuber (1993), Tracer experiments in fractured rocks - matrix
173 diffusion and the validity of models, *Water Resources Research*, *29*(8), 2723–2735, ISI
174 Document Delivery No.: LR884 Times Cited: 89 Cited Reference Count: 35 AMER
175 GEOPHYSICAL UNION.
- 176 Moreno, L., I. Neretnieks, and T. Eriksen (1985), Analysis of some laboratory tracer runs
177 in natural fissures, *Water Resources Research*, *21*(7), 951–958, times Cited: 80.
- 178 Neretnieks, I. (1980), Diffusion in the rock matrix - an important factor in radionuclide re-
179 tardation, *Journal of Geophysical Research*, *85*(NB8), 4379–4397, ISI Document Deliv-

180 ery No.: KF876 Times Cited: 333 Cited Reference Count: 30 AMER GEOPHYSICAL
181 UNION.

182 Roubinet, D., H.-H. Liu, and J. R. de Dreuzy (2010), A new particle-tracking approach
183 to simulating transport in heterogeneous fractured porous media, *Water Resources Re-*
184 *search*.

185 Sudicky, E. A., and E. O. Frind (1982), Contaminant transport in fractured porous media:
186 Analytical solutions for a system of parallel fractures, *Water Resources Research*, 18.

187 Tang, D. H., E. O. Frind, and E. A. Sudicky (1981), Contaminant transport in fractured
188 porous media: Analytical solution for a single fracture, *Water Resources Research*, 17,
189 10.1029/WR017i003p00555.

190 Zhan, H. B., Z. Wen, G. H. Huang, and D. M. Sun (2009), Analytical solution of two-
191 dimensional solute transport in an aquifer-aquitard system, *Journal of Contaminant*
192 *Hydrology*, 107(3-4), 162–174, times Cited: 1.

193 Zhou, Q. L., H. H. Liu, F. J. Molz, Y. Q. Zhang, and G. S. Bodvarsson (2007), Field-scale
194 effective matrix diffusion coefficient for fractured rock: Results from literature survey,
195 *Journal of Contaminant Hydrology*, 93(1-4), 161–187, zhou, Quanlin Liu, Hui-Hai Molz,
196 Fred J. Zhang, Yingqi Bodvarsson, Gudmundur S.

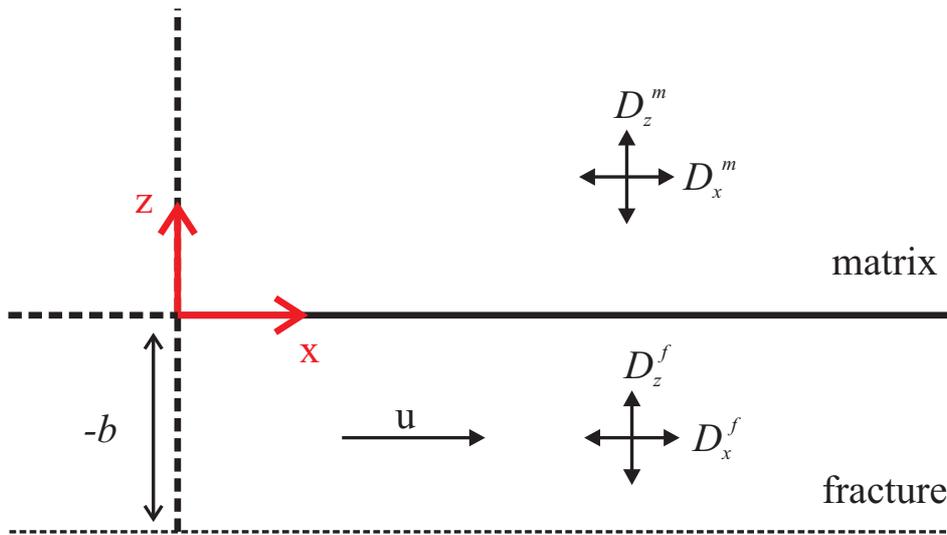


Figure 1. Representation of the fracture-matrix system. The fracture is characterized by its half-aperture b , the fluid velocity u and the dispersivity coefficients D_x^f and D_z^f . The matrix part is characterized by the diffusion coefficients D_x^m and D_z^m .

3.2.2. Evaluation de l'effet des propriétés géométriques et hydrauliques de la fracture

Il est classiquement établi que la profondeur de pénétration d'un soluté diffusant dans une roche est reliée au temps de diffusion par la relation suivante

$$\overline{x^2} = 2Dt_{diff}$$

avec $\overline{x^2}$ la moyenne du carré de la profondeur de pénétration, t_{diff} le temps de diffusion et D le coefficient de diffusion dans la roche. Cette expression est valable pour le cas d'une diffusion 1D dans une colonne avec une injection continue à la base de la colonne [Chou et al., 1996].

Dans le cas des systèmes fracture-matrice, on considère que le soluté est injecté à l'extrémité de la fracture, se déplace par advection dans la fracture et diffuse, à partir de la fracture, plus ou moins profondément dans la matrice. Les conditions d'injection relatives à la diffusion dans la matrice sont alors décrites par le comportement du soluté dans la fracture. Autrement dit, la condition d'injection ne sera pas ici simplement décrite par une quantité injectée au cours du temps mais plutôt comme une quantité en déplacement dans un volume donné. La condition d'injection pour la diffusion dans la matrice est alors liée à la vitesse de déplacement du fluide dans la fracture et aux caractéristiques géométriques de la fracture. L'effet des propriétés géométriques et hydrauliques de la fracture sur la diffusion dans la matrice est ici analysé en se basant sur la solution analytique simplifiée de Tang et al. [1981].

On considère un système composé d'une fracture unique dans la direction z et d'une matrice semi-infinie dans la direction x (Figure 23a). La fracture est caractérisée par son ouverture $2b$ et la vitesse du fluide qui y circule u , et la matrice est caractérisée par le coefficient de diffusion D et la porosité ϕ . Par souci de simplifications, la dispersion et la diffusion dans la fracture sont négligées. Les solutés sont alors transportés par advection dans la fracture et diffusent dans la matrice perpendiculairement à la fracture. Les deux équations suivantes expriment l'évolution des concentrations dans la fracture $C_f(z, t)$ et dans la matrice $C_m(x, t)$ pour une injection constante C_0 à la position $z = 0$ sur toute l'épaisseur de la fracture

$$C_f(z, t) = C_0 \operatorname{erfc} \left(\frac{\phi \sqrt{D} \tau}{2b \sqrt{(t-\tau)}} \right) \quad (14)$$

$$C_m(x, t) = C_0 \operatorname{erfc} \left(\frac{x-b+B\sqrt{D}}{2\sqrt{D(t-\tau)}} \right) \quad (15)$$

avec τ le temps d'advection dans la fracture ($\tau = \frac{z}{u}$) et $B = \frac{\phi\sqrt{D}}{b} \tau$ [Tang et al., 1981].

Les expressions (14) et (15) donnent une description de la concentration et du positionnement du soluté dans la fracture et dans la matrice en prenant en compte la dynamique hydraulique de la fracture et les propriétés physiques et géométriques des structures. En utilisant ces expressions et d'après la démonstration explicitée dans l'annexe 8.1, les variables $\overline{x^2}$ et t_{diff} sont reliés par la relation suivante

$$\langle x^2 \rangle \approx 4Dt_{diff} \left(1 - \frac{\sqrt{\pi} \phi\sqrt{D}}{2 ub} \frac{z}{\sqrt{t_{diff}}} \right). \quad (16)$$

Cette relation met en évidence que la profondeur de pénétration dans la matrice dépend de la position dans la fracture z et des propriétés géométriques et hydrauliques de la fracture. La diminution de la profondeur de pénétration lorsque z augmente est liée à la "perte" de soluté dans la matrice aux positions précédentes. L'augmentation de la position z est associée à une décroissance de la concentration de soluté dans la fracture, et donc à une décroissance de la capacité de diffusion dans la matrice. Le ratio $\frac{\phi\sqrt{D}}{ub}$ est représentatif de l'effet des propriétés géométriques et physiques des structures sur la quantité de soluté "perdu" dans la matrice aux temps précédents.

3.2.3. Evaluation de l'effet de l'organisation du réseau de fractures

Méthode de modélisation

Les modèles discrets existants considèrent une représentation simpliste soit de l'agencement des blocs matriciels, soit de l'organisation du réseau de fractures, ne permettant pas d'évaluer les impacts de l'organisation des structures sur les transferts. Un premier type de modèles utilise les solutions analytiques de fractures uniques, telles que celle de *Tang et al.* [1981], supposant que la matrice entourant chaque fracture est infinie. L'hypothèse de matrice infinie est acceptable dans le cas de blocs matriciels de grande taille comparativement à la capacité de diffusion du soluté dans la matrice. Dans le cas contraire, cette représentation simplifiée de la matrice implique une forte surestimation des temps de résidence [*Roubinet et al.*, 2010c]. Un second type de modèles prend en compte la taille finie des blocs matriciels mais se ramène pour cela à une forte simplification du réseau de fractures et/ou de la distribution de la taille et de la forme des blocs rendant impossible la représentation des hétérogénéités du milieu [*Liu and Yeh*, 2003; *Sudicky and Frind*, 1982; *Tsang and Tsang*, 2001].

Afin d'évaluer les effets de l'organisation des structures sur les échanges entre fractures et matrice, nous avons développé un modèle hybride apte à concilier une représentation discrète des réseaux de fractures et la prise en compte de l'effet de la taille et de la forme des blocs matriciels sur les transferts. Ce modèle est basé sur les modèles discrets classiques permettant une représentation pertinente de l'organisation du réseau de fractures. Le soluté est représenté par des particules se déplaçant par advection dans le réseau de fractures et dont le retard lié à la diffusion dans la matrice est évalué par l'utilisation de la solution analytique de *Tang et al.* [1981] supposant une matrice infinie. La nouveauté de ce modèle réside dans l'ajout de la possibilité de transfert du soluté d'une fracture à une autre par diffusion à travers le bloc matriciel. Contrairement aux modèles classiques considérant des blocs de taille infinie, une particule diffusant dans un bloc matriciel ne retourne pas nécessairement dans sa fracture initiale. Autrement dit, une particule quittant sa fracture initiale pour diffuser dans la matrice peut atteindre une fracture voisine en ayant traversé tout le bloc matriciel. Cette nouvelle méthode de modélisation particulière est applicable à des réseaux de fractures fortement hétérogènes et à des tailles et des formes de blocs de distribution complexe. Un logiciel *Particle Tracking method for Highly Heterogeneous media (PATH2)* a été développé sur cette méthode. C'est un outil spécialement adapté à la compréhension de l'effet des structures sur le comportement du milieu et particulièrement sur la dynamique des échanges entre

fracture et matrice. Une description détaillée du fondement de ce modèle hybride et de ces applications est présentée dans l'article suivant [*Roubinet et al.*, 2010c]. Cet article conclue sur des résultats préliminaires quant à l'effet de l'organisation du réseau de fractures sur la réaction du milieu avec des applications à des réseaux de fractures irrégulièrement espacées et à des réseaux du type tapis de Sierpinski.

A new particle-tracking approach to simulating transport in heterogeneous fractured porous media

Delphine Roubinet¹, Hui-Hai Liu² and Jean-Raynald de Dreuzy¹

¹ Géosciences Rennes, UMR CNRS 6118, Université de Rennes I, Rennes, France

² Earth Sciences Division, Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, California, United States

Abstract

Particle-tracking methods are often used to model contaminant transport in fractured porous media because they are straightforward to implement for fracture networks and are able to take into account the matrix effect without mesh generation. While classical methods assume infinite matrix or regularly-spaced fractures, we have developed a stochastic method adapted to solute transport in complex fracture networks associated with irregular matrix blocks. Diffusion times in the matrix blocks are truncated by the finite size of the blocks. High ratios of matrix diffusion to fracture advection, small fracture apertures and small blocks favor the transfer of particles to nearby fractures through matrix diffusion. Because diffusion occurs on both

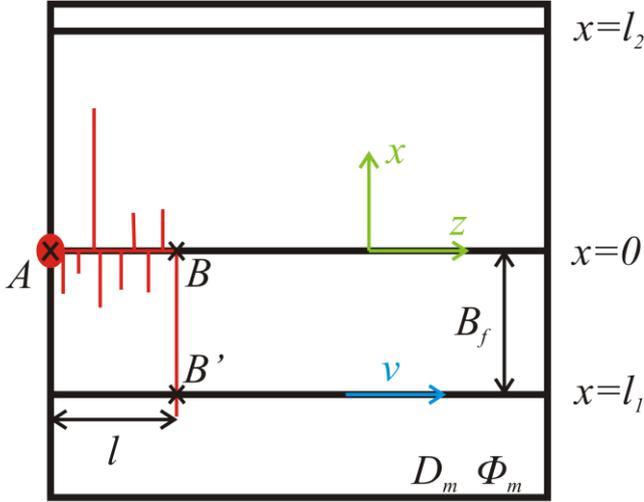


Figure 1 – Notations for the particle-tracking method. x and z are the particle positions in the matrix and in the fracture, respectively, D_m and ϕ_m are the matrix diffusion and porosity, v is the fluid velocity in the fracture, B_f is the fracture spacing and l is the distance travelled in the fracture. The initial fracture is at position $x=0$ and its neighboring fractures are at positions $x=l_1<0$ and $x=l_2>0$. The red lines represent the particle displacement by 1D diffusion in the matrix and by advection in the fracture. The particle starts at position A and arrives at position B' (case of transfer), with B' the orthogonal projection of B onto the neighboring fracture. The advection time required for travel from A to B is the time step of the algorithm.

can be transferred. This advanced method has still the major shortcoming of relying on highly regular fracture configurations precluding any block shape variability.

We propose hereafter to further extend the particle-tracking method to account for general block shape configurations. The proposed particle-tracking method does not rely on an analytical solution of the diffusion equation but directly on the definition of a stochastic process with relevant boundary conditions. The method is applicable to heterogeneous fractured porous media without restriction on fracture geometry or network density. We present in section 2 the stochastic process valid both in 2D and 3D. Sections 3 and 4 show validation and illustration cases of the method in 2D and sections 5 and 6 are devoted to discussion and conclusion.

II. Theory and method

The method has been developed for steady-state flow conditions. Matrix diffusion is assumed to be 1D and perpendicular to fractures. We denote z and x the particle position in the fracture and in the matrix, respectively (Figure 1). For simplicity, we assume purely advective transport in fractures with homogeneous concentration across the width of the

fracture. Similar assumptions have been used for developing analytical solutions for solute transport in fracture matrix systems [Sudicky and Frind, 1982; Tang et al., 1981]. We show successively how particles diffuse into the matrix and come back to their originating fracture or are transferred to nearby fractures. We quantify the associated probabilities and transient times.

1. Diffusion times for single fractures embedded in an infinite matrix

The case of a single fracture in an infinite surrounding matrix is valid when diffusion in the matrix occurs on distances smaller than the characteristic scale of the block. This condition is satisfied when transport is more controlled by the advection in the fracture than by the diffusion in the matrix. The cumulative distribution of the particle diffusion time in the infinite matrix for a given advection time t_a in the fracture is [Liu et al., 2006; Painter and Cvetkovic, 2005]

$$P(t < T) = \text{erfc} \left(\frac{\phi_m \sqrt{D_m} t_a}{2b\sqrt{T}} \right) \quad (1)$$

with b the half aperture of the fracture, ϕ_m the surrounding matrix porosity and D_m the local matrix-diffusion coefficient (D_m is the molecular diffusion coefficient multiplied by the tortuosity factor [Bear, 1979]). This formulation, based on the assumption of diffusion in a virtually infinite matrix, assumes that particles go back to the same fracture after their diffusion within the matrix.

From equation (1), the diffusion time t_{diff} is modeled as a series of independent identically distributed random variables

$$t_{diff} = \left(\frac{\phi_m \sqrt{D_m} t_a}{2\alpha b} \right)^2 \quad (2)$$

with $\alpha = \text{erfc}^{-1}(U[0,1])$ and $U[0,1]$ a uniform random number in the interval $[0,1]$. Note that equation (2) is obtained by replacing $P(t < T)$ in equation (1) with $U[0,1]$.

The matrix is assumed “infinite” only when the average diffusion distance perpendicular to the fracture x_{diff} is smaller than the fracture spacing B_f

$$x_{diff} = \sqrt{2D_m t_{diff}^*} = \frac{\phi_m D_m t_a}{\sqrt{2\alpha b}} < B_f \quad (3)$$

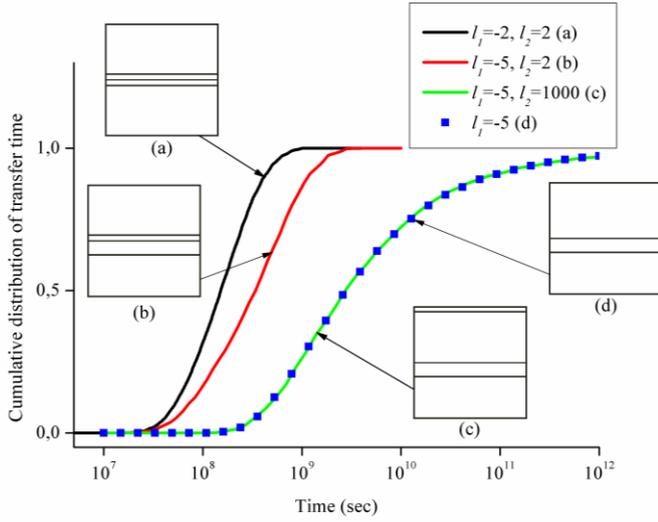


Figure 2 – Cumulative distribution of the transfer time to nearby fractures. Particles transfer from position $x=0$ to positions $x=l_1$ and $x=l_2$. Solid lines and dots represent results obtained with Feller and FPTD formulations, respectively. The local diffusion coefficient is equal to 10^{-8} m²/s and the fracture positions are expressed in meters.

where $\overline{t_{diff}^*}$ is the average of t_{diff}^* with $t_{diff}^* = \frac{t_{diff}}{2}$ the time necessary to reach a penetration depth in the matrix equal to x_{diff} . By comparison, t_{diff} is the time needed to reach a distance x_{diff} plus the time needed to go back to the originating fracture. This statement is not strictly valid for a single particle but is satisfied for a large number of particles. By defining the Péclet number as $Pe = \frac{lv}{D_m}$, where l is the distance traveled in the fracture during the advection time t_a with the velocity v (Figure 1), the condition (3) of “infinite matrix” is valid only for large values of the Péclet number (dominance of advection in the fracture over diffusion in the matrix):

$$Pe > \frac{\phi_m l^2}{\sqrt{2} ab B_f}. \quad (4)$$

For smaller values of the Péclet number, the assumption of infinite matrix breaks down and particles may transfer to the nearby fractures through the matrix.

2. Transfer probabilities and diffusion times to nearby fracture(s)

When condition (4) is not satisfied, the particle may be transferred to a nearby fracture. We determine the probability of transfer to the i^{th} neighboring fracture $P_{transfer}^i$ and the probability of return to the originating fracture as well as the corresponding

transfer times $t_{transfer}$. The probability of leaving the originating fracture $P_{transfer}$ is equal to the sum of the $P_{transfer}^i$.

We consider a fracture at position $x=0$ with two parallel neighboring fractures at positions $x=l_1 < 0$ and $x=l_2 > 0$, respectively (Figure 1). We denote $P_{transfer}^1 = P(l_1, \overline{l_2}, t_{transfer} \leq t_{diff}^*)$ the probability for a particle to transfer from position $x=0$ to position $x=l_1 < 0$ without crossing the position $x=l_2 > 0$ before the time t_{diff}^* and $P_{transfer}^2 = P(l_2, \overline{l_1}, t_{transfer} \leq t_{diff}^*)$ the probability for a particle to transfer to $x=l_2$ without crossing the position $x=l_1$ before the time t_{diff}^* . From Feller [1954], these probabilities are expressed in the Laplace space by the following expressions:

$$L(P_{transfer}^1) = \frac{\exp(l_1 \sqrt{\lambda / D_m})}{\lambda} \frac{1 - \exp(-2l_2 \sqrt{\lambda / D_m})}{1 - \exp(2(l_1 - l_2) \sqrt{\lambda / D_m})} \quad (5)$$

$$L(P_{transfer}^2) = \frac{\exp(l_2 \sqrt{\lambda / D_m})}{\lambda} \frac{1 - \exp(-2l_1 \sqrt{\lambda / D_m})}{1 - \exp(2(l_2 - l_1) \sqrt{\lambda / D_m})} \quad (6)$$

with $L()$ the Laplace transform defined by $L(f(t)) = \int_0^{+\infty} e^{-\lambda t} f(t) dt$. A sketch of the conceptual model is proposed in Figure 1. The particle crosses several times its originating fracture before reaching one of the two neighboring fractures. $P_{transfer}^1$ is larger than $P_{transfer}^2$ since $|l_1| < |l_2|$. Particle behavior is non-symmetric along the initial fracture since more than 50% of the transferred particles reach the nearest fracture with small transfer times in comparison to the farthest fracture. The irregular fracture spacing also induces strong modifications in the mean position and shape of the transfer time distribution (Figure 2). Compared to the symmetric configuration (black curve), arrival in the asymmetric case (red curve) is delayed by half an order of magnitude. Because diffusion occurs on both sides of the originating fracture before the particle reaches one of the neighboring fractures as sketched in Figure 1, transfer to both neighboring

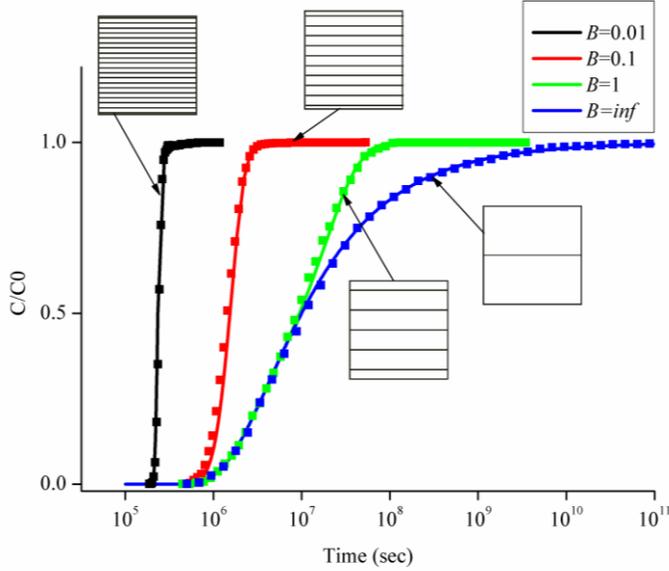


Figure 3 – Breakthrough curves for a set of parallel fractures (black, red and green curves) with different fracture spacings (B) and for a single fracture (blue curve). Solid lines and squares represent analytical solution and numerical results, respectively.

fractures is largely delayed even if only one of the distances to the nearby fractures is increased. Increase of only one of the distances also affects the shape of the transfer time distribution by yielding significantly larger arrival times (green curve and blue dots of Figure 2).

For parallel regularly spaced fractures, $|l_1| = |l_2|$, the probabilities $P_{transfer}^1$ and $P_{transfer}^2$ are equal, the particle behavior on each side is symmetric along the initial fracture and the solution is equal to the one of *Sudicky and Frind* [1982]. Furthermore, if the second fracture is extremely far from the initial position ($l_1 = l < 0$ and $l_2 = +\infty$), $P_{transfer}^2$ tends to 0 and $P_{transfer}^1$ tends to the following First Passage Time Distribution (FPTD) [*Feller*, 1965]:

$$\begin{aligned} P_{transfer}^1 &= P(x = l_1, t_{transfer} \leq t_{diff}^*) = 2P(Y_{t_{diff}^*} \geq l_1) \\ &= 2(1 - P(Y_{t_{diff}^*} < l_1)) = 1 - \operatorname{erf}\left(\frac{l_1}{2\sqrt{D_m t_{diff}^*}}\right). \end{aligned} \quad (7)$$

This case is illustrated by the last configurations in Figure 2 for which the transfer time distribution is obtained respectively by the Feller formulation (5) and (6) (green curve) and the FPTD formulation (7) (blue dots). The superposition of the curves shows that the upper matrix side is virtually “infinite” as particles do not transfer to the upper fracture before reaching the lower one.

3. Particle-tracking procedure

We consider a segment AB of the initial fracture with a particle starting at position A (Figure 1). Assuming that the particle goes from A to B , a reference diffusion time t_{diff} is determined from equation (2) as if the fracture were embedded in an infinite matrix. Transfer to the i^{th} neighboring fracture occurs with the probability $P_{transfer}^i$ and the required time $t_{transfer}$ is derived from equations (5) and (6). In this case, the particle travels from A to B' with B' the orthogonal projection of B onto the arrival fracture (Figure 1) and the travel time is $t_{AB'} = t_a + t_{transfer}$. $t_{transfer}$ is drawn from the transfer time distribution $P_{transfer}^i$ truncated by the reference diffusion time t_{diff}^* . In the absence of analytical formulation in the time domain, these computations require numerical Laplace inversions performed using Stehfest’s method [*Stehfest*, 1970a; b]. In the particular case of a single neighboring fracture, transfer to the nearby fracture occurs with the probability $P_{transfer}^1$ and the required time $t_{transfer}$ is derived from equation (7). Transfer does not occur with a probability $1 - P_{transfer}^1$. In this latter case, the infinite matrix assumption is valid and the particle travel time from A to B is simply $t_{AB} = t_a + t_{diff}$.

To maintain the simulation accuracy in the particle-tracking method, the length of the segment AB should be restricted to statistically prevent the occurrence of more than one transfer to nearby fractures. To this end, we restrict the advection along the fracture by statistically limiting the transfer probability to p_{lim} . Considering the half diffusion time t_{diff}^* , this condition is expressed by

$$\begin{aligned} \text{limiting } t_{diff}^* \text{ to the mean transfer time } \langle t_{transfer} \rangle \text{ as} \\ P(t_{diff}^* \geq \langle t_{transfer} \rangle) = 1 - P(t_{diff}^* \leq \langle t_{transfer} \rangle) \leq p_{lim}. \end{aligned} \quad (8)$$

Using the stochastic expression of the analytical solution for a single fracture embedded in an infinite matrix (equation (1)), we obtain the following condition on advection time to ensure a transfer probability lower than p_{lim}

$$t_a \leq \frac{2b\sqrt{\langle t_{transfer} \rangle}}{\phi_m \sqrt{D_m}} \operatorname{erfc}^{-1}(1 - p_{lim}). \quad (9)$$

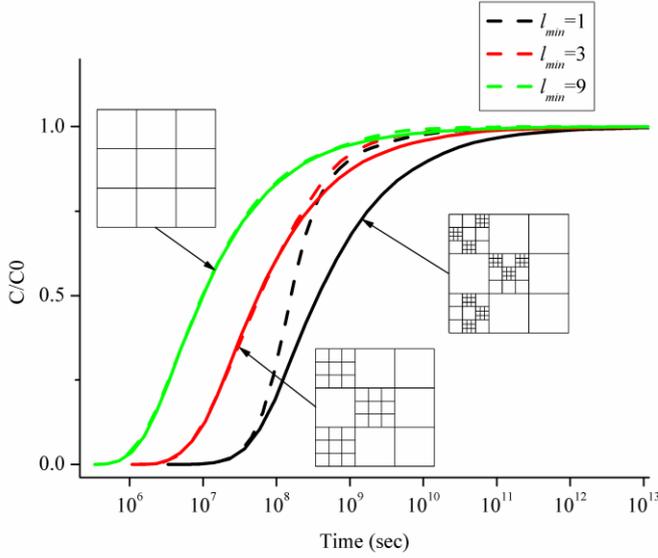


Figure 4 – Breakthrough curves for hierarchical fracture networks with different fracture resolutions. The length of the smallest fracture ranges from 1m to 9m (from the green curves to the black curves) with a domain size of 27m. Dashed lines show results assuming infinite matrix whereas solid lines show results by accounting for the effect of the neighboring fractures.

with the mean transfer time $\langle t_{transfer} \rangle$ obtained by using the backward Fokker-Planck equation and equal to the mean exit time of particles injected between two absorbing barriers [Gardiner, 2009]

$$\langle t_{transfer} \rangle = \frac{|l_1||l_2|}{2D_m}. \quad (10)$$

This particle-tracking method has been implemented in a software called PATH2 for PArticle Tracking model for Highly Heterogeneous fractured porous media.

III. Validation

The proposed model is validated for a single fracture embedded in an infinite matrix and a set of parallel fractures by comparing simulation results with analytical solutions [Pan and Bodvarsson, 2002; Sudicky and Frind, 1982; Tang et al., 1981]. Figure 3 shows comparisons between analytical and numerical results for several different fracture spacings (black, red and green curves) and for a single fracture system (blue curve). In these examples, the distance between inlet and outlet points is 100m, fluid velocity is 10^{-3} m/s, fracture aperture is 10^{-3} m, matrix diffusion coefficient is 10^{-8} m²/s, and matrix porosity is 0.15. The upper boundary of the transfer probabilities p_{lim} (equation (9)) has been set to 0.1 by verifying that the results do not vary for lower values. The simulation results

are very close to the analytical solutions, indicating that the proposed particle-tracking approach can accurately deal with solute transport involving solute particle transfer to neighboring fractures for regular configurations.

IV. Illustration on Sierpinski lattices

As an example of application, the software PATH2 is used to simulate solute transport in complex fracture networks with fractal properties and correlation between fracture length and position [Bonnet et al., 2001; Davy et al., 2006; Doughty and Karasaki, 2002; Liu et al., 2004]. We use Sierpinski lattices as a model of hierarchical organization [Doughty and Karasaki, 2002]. We apply respectively impervious boundary conditions and head gradient on the horizontal and vertical sides of the domain inducing a mean fluid velocity of 10^{-3} m/s from the left side to the right side. Particles are tracked on these structures with a matrix porosity of 0.15, a local diffusion coefficient of 10^{-8} m²/s and the relationship $2b=10^{-5}l_f$ between fracture aperture $2b$ and fracture length l_f . The domain size L is 27m. We perform three different Monte-Carlo simulations with the length of the smallest fracture l_{min} equal to 9m, 3m and 1m. Illustrations of single realizations are given in the insets (a), (b) and (c) of Figure 4. The curves of the Figure 4 represent the cumulative distribution of the time required to reach the right side of the domain for particles injected on the left side. For comparison purposes, transport is first simulated by assuming infinite surrounding matrix (Figure 4, dashed lines), and secondly by using the software PATH2 allowing particle transfer to nearby fractures through the matrix (Figure 4, solid lines). Under the assumption of infinite surrounding matrix (Figure 4, dashed lines), the decrease in l_{min} induces breakthrough curves with larger arrival times but similar shape. It is mostly due to the enhancement of matrix diffusion compared to fracture advection for the smaller aperture b of the smaller fractures (equation (1)). Allowing particle transfer (Figure 4, solid lines) significantly alters the shape of the breakthrough curve for the case $l_{min}=1$ m only. It is only for the smallest explored distance between fractures corresponding to l_{min} ($B_f=l_{min}$) that particles can be transferred to neighboring fractures as the assumption of infinite matrix (equation (4)) becomes invalid for the smallest matrix blocks. Large matrix diffusion times are truncated by transfer to closer nearby fractures and the breakthrough curve

becomes steeper (Figure 4, black solid line). Assuming an infinite matrix in this case leads to one to two orders of magnitude overestimation of the mean and standard deviation of arrival times. As previously said in section 2, diffusion on both sides of the fractures is impacted by the presence of smaller matrix blocks through the increased probability of faster particle transfer to the nearest fracture.

V. Discussion

The present particle-tracking method has been developed under the assumptions of steady-state and uniform flow, pure advection in the fracture and 1D diffusion in the homogeneous matrix. Possible approximations of the method come from the fracture-network discretization. From the DFN representation, the 2D fracture network is separated into segments delimited by fracture intersections and extremities. These segments, themselves, are divided in sections such as at most one transfer may occur for a particle traveling along a section. The condition on the section length, deduced from the equation (9), is not restrictive as the required section length will not be critically small for realistic fractured media.

The method could also be adapted to less regular networks with non-parallel fractures. Over a given advective step within a fracture, we define on each side the characteristic transfer distance as the mean distance to the closest neighboring fracture. The method precision can be improved by restricting the advective step within the originating fracture.

The presented model could be improved by a full representation of physical processes occurring in the fracture. Longitudinal dispersion effect could be integrated within the distribution of the diffusion times (equation (1)) by using the analytical solution developed for this case by *Tang et al.* [1981]. However, it seems more difficult to integrate transversal dispersion or/and Poiseuille profile within the fracture as it requires the development of an analytical solution to deduce the associated diffusion time distributions.

After all, the most interesting challenge is the extension to 3D fractured porous media for field applications. As particle path is a succession of 1D displacement (even for 2D fractures represented by planes), the diffusion time distributions described in the theoretical part, and thus the conceptual model, are fully applicable to 3D media.

VI. Conclusion

To account for the effects of small-scale fractures and small matrix-block sizes, it is critical to consider the impact of nearby fractures on solute transport. These small-scale fractures may not significantly contribute to global-scale water flow but may have significant effects on solute transport through matrix diffusion [*Liu et al.*, 2006]. To the best of our knowledge, the current study may represent the first effort in developing a particle-tracking algorithm that can handle effects of complex and widely scattered finite matrix blocks on solute transport in fractured porous media. With this simulation method, we intend to explore the effect of matrix diffusion on solute transport processes in complex fracture structures in order to better understand the origin of the scale-dependence of the effective matrix diffusion coefficient [*Liu et al.*, 2004]. This method can be also used to improve site characterization by determining the impacts of fracture network structures on transport data.

Acknowledgements This project has been funded by the French National Research Agency ANR through the MICAS project (ANR-07-CIS7-004). The Brittany council is acknowledged for its financial contribution through a mobility grant.

References

- Bear (1979), *Hydraulics of Groundwater*.
- Bonnet, E., et al. (2001), Scaling of fracture systems in geological media, *Reviews of Geophysics*, 39(3), 347-383.
- Bour, O., and P. Davy (1999), Clustering and size distributions of fault patterns: theory and measurements, *Geophysical Research Letters*, 26(13), 2001-2004.
- Carrera, J., et al. (1998), On matrix diffusion: formulations, solution methods and qualitative effects, *Hydrogeology Journal*, 6(1), 178-190.
- Cvetkovic, V., et al. (2004), Stochastic simulation of radionuclide migration in discretely fractured rock near the Äspö Hard Rock Laboratory, *Water Resour. Res.*, 40, W02404, 10.1029/2003WR002655.
- Davy, P., et al. (2006), *Flow in multiscale fractal fracture networks*, Geological Society, London, Special Publications, 261(1), 31-45, 10.1144/gsl.sp.2006.261.01.03.
- Davy, P. (2010), A Universal Model of Fracture Scaling and its consequence for crustal hydro-mechanics *Journal of Geophysical Research*, in press.
- Dershowitz, W., and I. Miller (1995), Dual-porosity fracture flow and transport, *Geophys. Res. Lett.*, 22(11), 1441-1444.
- Doughty, C., and K. Karasaki (2002), Flow and transport in hierarchically fractured rock, *Journal of Hydrology*, 263(1-4), 1-22.
- Feller, W. (1954), *Diffusion Processes in One Dimension*, *Transactions of the American Mathematical Society*, 77(1), 1-31.

- Feller, W. (1965), *An Introduction to Probability Theory and Its Applications*, Wiley.
- Gardiner, C. (2009), *Stochastic Methods*, Springer.
- Liu, H. H., et al. (2000), Determination of particle transfer in random walk particle methods for fractured porous media, *Water Resour. Res.*, 36(3), 707-713.
- Liu, H. H., et al. (2004), Scale dependency of the effective matrix diffusion coefficient, *Vadose Zone J.*, 3(1), 312-315.
- Liu, H. H., et al. (2006), An interpretation of potential scale dependence of the effective matrix diffusion coefficient, *Journal of Contaminant Hydrology*, 90(1-2), 41-57, 10.1016/j.jconhyd.2006.09.006.
- Neretnieks, I. (1980), Diffusion in the rock matrix - An important factor in radionuclide retardation, *Journal of Geophysical Research*, 85(NB8), 4379-4397.
- Neuman, S. P. (2005), Trends, prospects and challenges in quantifying flow and transport through fractured rocks, *Hydrogeology Journal*, 13(1), 124-147, 10.1007/s10040-004-0397-2.
- Painter, S., and V. Cvetkovic (2005), Upscaling discrete fracture network simulations: An alternative to continuum transport models, *Water Resour. Res.*, 41(2), 10.1029/2004wr003682.
- Pan, L. H., and G. S. Bodvarsson (2002), Modeling transport in fractured porous media with the random-walk particle method: The transient activity range and the particle transfer probability, *Water Resour. Res.*, 38(6), 10.1029/2001wr000901.
- Pruess, K., and T. N. Narasimhan (1985), A practical method for modeling fluid and heat-flow in fractured porous-media, *Society of Petroleum Engineers Journal*, 25(1), 14-26.
- Shan, C., and K. Pruess (2005), An analytical solution for slug tracer tests in fractured reservoirs, *Water Resour. Res.*, 41(8), 10.1029/2005wr004081.
- Stehfest, H. (1970a), Numerical inversion of Laplace transforms, *Communications of the Acm*, 13(1), 47.
- Stehfest, H. (1970b), Correction, *Communications of the Acm*, 13(10), 624.
- Sudicky, E. A., and E. O. Frind (1982), Contaminant Transport in Fractured Porous Media: Analytical Solutions for a System of Parallel Fractures, *Water Resour. Res.*, 18, 10.1029/WR018i006p01634.
- Tang, D. H., et al. (1981), Contaminant Transport in Fractured Porous Media: Analytical Solution for a Single Fracture, *Water Resour. Res.*, 17.
- Warren, J. E., et al. (1963), The Behavior of Naturally Fractured Reservoirs, *Society of Petroleum Engineers Journal*, September, 245-255.

Méthodologie d'évaluation de l'effet des structures

L'impact de l'organisation des structures sur les transferts a été évalué via la détermination du coefficient de diffusion effectif pour différents types de réseaux de fractures. Ce projet a été mené en collaboration avec l'équipe Hydrology du Laboratoire National de Berkeley (Lawrence Berkeley National Laboratory, LBNL) et la méthodologie et les résultats ont été présentés à l'AGU Fall meeting 2009 [Roubinet *et al.*, 2009]. La méthodologie, résumée par la Figure 24, se décompose en deux étapes. La première étape consiste à simuler les courbes de restitution pour différentes organisations de réseaux de fractures à l'aide du nouveau concept de modélisation présenté dans l'article de Roubinet *et al.* [2010c]. A partir de ces courbes de restitution, la deuxième étape consiste à déterminer le coefficient de diffusion effectif du milieu en utilisant le logiciel d'inversion iTHOUGH2 développé par Zhou [2005]. Le logiciel iTHOUGH2 est couramment utilisé au LBNL pour déterminer les paramètres effectifs d'un milieu à partir de données d'expériences de traçage en retenant la meilleure combinaison de paramètres reproduisant les données lors de leur application à la solution analytique de Tang *et al.* [1981]. L'avantage des simulations numériques est de disposer des paramètres classiques du milieu tels que la vitesse du fluide, l'ouverture des fractures et la porosité du milieu poreux et de n'avoir à déterminer que le seul paramètre de diffusion effectif D_e .

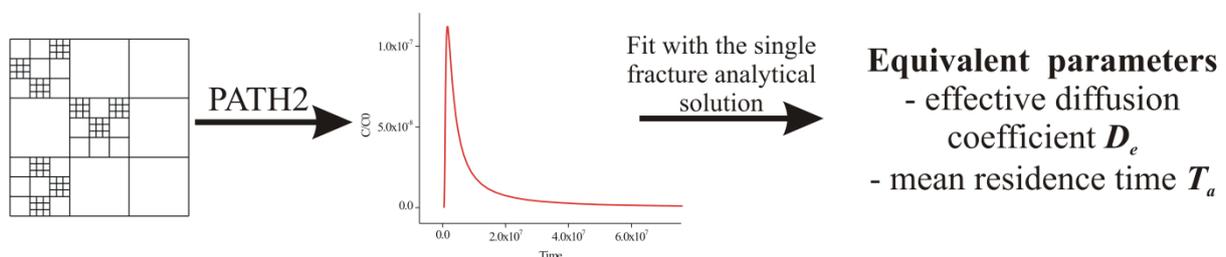


Figure 24 – Méthodologie pour l'évaluation du coefficient de diffusion effectif.

Le coefficient de diffusion effectif D_{es} est déterminé pour un milieu poreux fracturé artificiel en deux étapes. La première étape consiste à déterminer numériquement la courbe de restitution pour une injection ponctuelle dans le milieu en utilisant le logiciel PATH2 et la deuxième étape consiste à l'inversion de la courbe de restitution et permet d'obtenir la combinaison de paramètres offrant la meilleure reproduction des données. L'inversion est basée sur la solution analytique de Tang *et al.* [1981].

Résultats et interprétation

Cette méthodologie a été appliquée pour évaluer l'effet des structures sur le coefficient de diffusion effectif. Le réseau étudié est un réseau de fractures parallèles d'ouverture b et de taille L et régulièrement espacées par une distance B . Le fluide circule de gauche à droite du domaine avec une vitesse u constante et les particules sont injectées à gauche du domaine. Les courbes de restitution correspondent aux temps d'arrivée des particules sur l'extrémité droite du domaine. Une première série de simulations est effectuée en faisant varier la vitesse u de circulation du fluide dans les fractures les autres paramètres étant constant. L'évolution du coefficient de diffusion D_e en fonction de u est représenté par la Figure 25. Pour la deuxième série de simulations, on choisit une loi d'évolution de l'ouverture b et de l'espacement B des fractures en fonction de la taille du domaine L telle que $b=10^{-5}L$ et $B=0.1L$ modélisant ainsi la corrélation entre la taille du domaine et la probabilité de présence de grandes fractures. L'évolution de D_e en fonction de L pour ce cas est présenté par la Figure 26. Dans les deux cas (Figure 25 et Figure 26), le coefficient de diffusion effectif D_e augmente avec le paramètre de variation (u ou L) jusqu'à un palier et cette évolution est assimilable à l'évolution de la probabilité de non transfert des particules entre fractures (courbe en pointillé rouge). L'étude de cette probabilité est liée à l'originalité du logiciel de transport PATH2 qui permet le transfert des particules entre fractures par diffusion à travers le bloc matriciel. La probabilité de non transfert correspond alors à la probabilité que la particule reste dans la fracture dans laquelle elle a été initialement injectée [Roubinet et al., 2010c]. Lorsque la probabilité de non transfert est faible (partie linéaire de la courbe rouge), la plupart des particules transfèrent de leur fracture initiale vers une fracture voisine, et donc la diffusion des particules dans le bloc matriciel est limitée par l'atteinte des fractures voisines. Au contraire, lorsque la probabilité de non transfert est forte (palier de la courbe rouge), la plupart des particules retourne dans leur fracture initiale après diffusion dans la matrice et ainsi leur diffusion dans le bloc matriciel n'est pas limitée par les fractures voisines. Ainsi, dans les simulations présentées, les faibles valeurs du coefficient de diffusion effectif correspondent à un régime où la diffusion des particules dans la matrice est limitée par les fractures environnantes et cette limitation implique de faibles valeurs du coefficient de diffusion effectif D_e . L'augmentation de D_e correspond à la diminution de l'effet des fractures environnantes et de leur restriction sur la diffusion. La valeur constante atteinte par le coefficient D_e correspond à un régime où les fractures environnantes n'influent plus sur la diffusion dans le bloc matriciel.

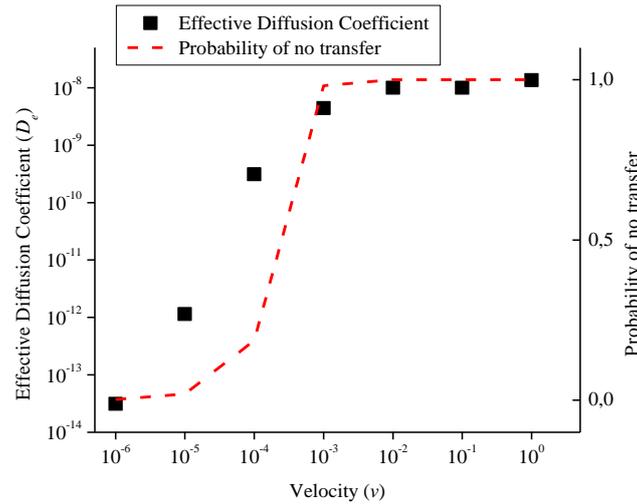


Figure 25 – Evolution du coefficient de diffusion effectif en fonction de la vitesse du fluide v pour un réseau de fractures parallèles.

La porosité de la matrice est $\phi=0.15$, le coefficient de diffusion matriciel est $D_m=10^{-8} \text{ m}^2/\text{s}$, l'ouverture des fractures est $b=10^{-3} \text{ m}$, l'espacement entre les fractures est $B=10 \text{ m}$ et la taille du domaine est $L=100 \text{ m}$.

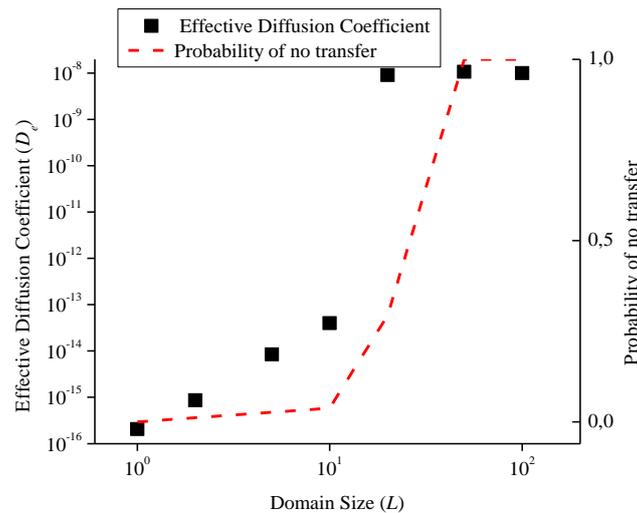


Figure 26 - Evolution du coefficient de diffusion effectif en fonction de la taille du domaine L pour un réseau de fractures parallèles.

La porosité de la matrice est $\phi=0.15$, le coefficient de diffusion matriciel est $D_m=10^{-8} \text{ m}^2/\text{s}$, l'ouverture des fractures et l'espacement entre les fractures varient avec la taille du domaine suivant les relations $b=10^{-5}L$ et $B=0.1L$.

La relation (3) de l'article de *Roubinet et al.* [2010c] met en évidence que la condition de transfert d'une particule de sa fracture initiale vers une fracture voisine est fonction des propriétés physiques du bloc matriciel, des propriétés géométriques et hydrauliques de la fracture d'origine et de l'organisation du réseau de fractures. De manière intuitive, pour des vitesses d'écoulement rapides dans les fractures et/ou pour des valeurs faibles du coefficient de diffusion de la matrice, la capacité de diffuser dans la matrice sera trop faible pour que le

soluté atteigne une fracture voisine. Par contre, si les vitesses de circulation sont lentes, que le coefficient de diffusion est important et/ou que l'espacement entre les fractures est faible, le soluté atteindra facilement une fracture voisine et la diffusion du soluté dans la matrice sera restreinte par l'agencement du réseau de fractures.

Le présent travail sur des réseaux de fractures simples a permis de mettre en évidence et de formaliser deux régimes des échanges fracture-matrice. Dans le premier régime, la diffusion est indépendante de l'agencement des fractures et est limitée par les propriétés physiques de la matrice et les propriétés géométriques et hydrauliques de la fracture. Dans le deuxième régime, la diffusion est restreinte par les fractures voisines et est limitée par les propriétés géométriques du bloc matriciel. L'étape suivante de ce travail est l'application d'une telle étude à des réseaux de fractures aux propriétés et à l'organisation plus complexes afin de se placer dans un cadre d'étude plus proche du milieu naturel.

Confrontation aux expériences de traçage

A partir des résultats obtenus dans la partie 3.2.3, le coefficient de diffusion effectif est caractérisé par deux régimes définis par les propriétés physiques de la matrice, les propriétés géométriques et hydrauliques des fractures ainsi que par l'organisation du réseau de fractures. Dans un premier régime, la diffusion dans la matrice est libre et non restreinte par les fractures voisines alors que dans le second régime, la diffusion est limitée par les structures environnantes. La relation (3) de l'article de *Roubinet et al.* [2010c] montre que la condition de restriction de la diffusion par la présence de fractures voisines est liée au nombre de Péclet P_e défini comme $P_e = \frac{ub}{\phi D}$ avec u la vitesse du fluide dans la fracture, b la demie-ouverture de la fracture, ϕ la porosité de la matrice et D la diffusion de la matrice. La Figure 27 met en évidence l'existence d'une corrélation entre le facteur d'échelle et le nombre de Péclet P_e pour une quinzaine d'expériences de sites indépendantes décrites par *Zhou et al.* [2007]. Le facteur d'échelle correspond au rapport entre le coefficient de diffusion effectif à l'échelle du site et le coefficient de diffusion de référence déterminé à l'échelle du laboratoire. La corrélation entre le coefficient de diffusion effectif D_e et le nombre de Péclet P_e est cohérente avec l'observation de l'effet d'échelle de D_e (section 3.1) en considérant qu'en augmentant la taille du domaine d'étude, on augmente la probabilité de présence de grandes fractures caractérisées par des ouvertures $2b$ et des vitesses de circulation du fluide u importantes. L'augmentation de la taille du site d'étude peut donc être corrélée à la croissance du nombre de Péclet. La dépendance des échanges avec les propriétés physiques de la matrice et géométriques et hydrauliques des fractures est alors mise en évidence par leurs effets sur les échanges à l'échelle du réseau de fractures.

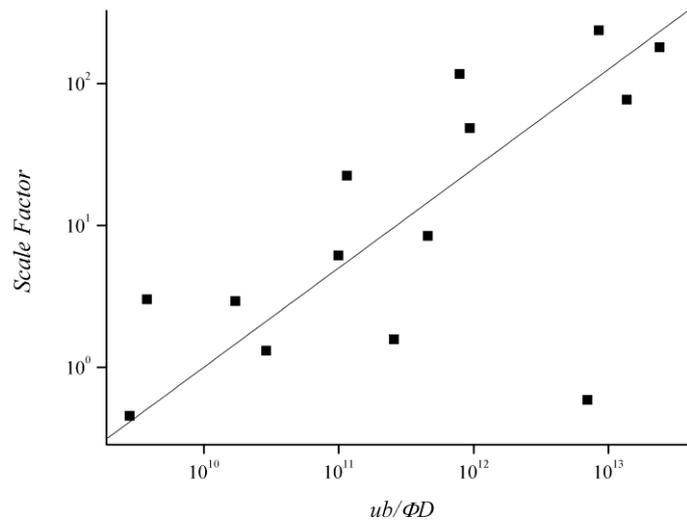


Figure 27 - Evolution du facteur d'échelle en fonction du nombre de Péclet P_e .

Le facteur d'échelle est le rapport entre le coefficient de diffusion effectif à l'échelle du terrain D_e et le coefficient de diffusion à l'échelle du laboratoire D . Le nombre de Péclet P_e est représentatif du rapport entre les phénomènes d'advection dans la fracture et de diffusion dans la matrice avec u la vitesse du fluide dans la fracture, b la demie-ouverture de la fracture, ϕ la porosité de la matrice et D la diffusion de la matrice avec

$P_e = \frac{ub}{\phi D}$. La corrélation entre le facteur d'échelle et le nombre de Péclet est établie pour les données d'expériences présentées par Zhou et al. [2007].

4. Prise en compte des effets des structures dans la modélisation des milieux poreux fracturés

4.1. Le modèle double-porosité discret

Les milieux poreux fracturés se caractérisant par la présence de fractures sur plusieurs échelles [Davy *et al.*, 2006], il est difficile de déterminer un volume élémentaire représentatif pour le domaine "fractures" [Long *et al.*, 1982]. Une représentation discrète du réseau de fractures sera alors plus adaptée qu'une représentation continue équivalente [Jorgensen *et al.*, 2004]. La conservation des informations du réseau de fractures (propriétés géométriques et hydrauliques) par l'approche Discrete Fracture Network (DFN) permet de représenter correctement les premiers temps de réponse du milieu. Cependant, les connaissances d'un site d'étude se limitent généralement aux grandes fractures du milieu. De plus, l'utilisation d'une représentation continue permet une calibration plus facile des paramètres de fonctionnement du modèle vis-à-vis des données obtenues par les expériences de terrain. Pour combiner ces deux aspects, plusieurs auteurs ont proposé des modèles double-porosité discrets hiérarchiques [Berg and Oian, 2007; Karimi-Fard *et al.*, 2006; Lee *et al.*, 2001; Wang *et al.*, 2004]. Dans ces modèles, les fractures les plus importantes sont représentées de manière discrète alors que les autres fractures sont intégrées à la roche, le choix de représentation d'une fracture étant lié à la connaissance que l'on a du site étudié. Le couplage entre les fractures et la matrice est fait de la même façon que pour les modèles double-porosité continus, c'est-à-dire par un coefficient d'échange dépendant de la taille et de la forme du bloc matriciel.

La définition des structures dépend alors des caractéristiques du milieu. Globalement, les fractures représentées explicitement seront les structures responsables des temps courts de réaction du milieu, c'est-à-dire les fractures les plus conductrices du domaine. La matrice correspondra à toutes les structures de porosité inférieure aux fractures principales, c'est-à-dire les fractures peu conductrices et la roche. Ces structures sont définies par la connaissance que l'on a du site, cette connaissance étant acquise soit par des observations directes (observations d'affleurements ou de carottes de puits), soit par des observations indirectes (réponse du milieu à des essais de pompage ou de traçage). La partie la plus délicate étant la signification de la matrice et la vérification des hypothèses qui lui sont classiquement liées.

4.2. Homogénéisation des structures

Comme explicité précédemment, la matrice, correspondant aux temps longs de réactions, représente classiquement la roche et les fractures peu conductrices et/ou déconnectées du milieu. Les fractures dites peu conductrices à l'échelle du domaine pouvant s'avérer conductrices à l'échelle du bloc, il est nécessaire d'intégrer l'effet de ces fractures dans les propriétés hydrauliques du bloc. Cependant, comme explicité précédemment, l'homogénéisation des milieux fracturés est critique de par la présence de fractures à plusieurs échelles [Davy *et al.*, 2006] et bien souvent l'impossibilité de mettre en évidence un volume élémentaire représentatif [Long *et al.*, 1982]. Pour palier à ce problème, nous avons mis en œuvre une méthode de changement d'échelle pour les flux dans les milieux fracturés fortement hétérogènes. Cette méthode est basée sur une description des propriétés hydrauliques des blocs par une matrice élémentaire au lieu du classique tenseur de perméabilité. La taille de la matrice élémentaire varie suivant la précision souhaitée et les capacités numériques disponibles. Cette nouvelle méthode, appelée la méthode EHM (Equivalent Hydraulic Matrices), est présentée dans l'article suivant [Roubinet *et al.*, 2010b].

Connectivity-consistent mapping method for 2D discrete fracture networks

Delphine Roubinet, Jean-Raynald de Dreuzy and Philippe Davy

Geosciences Rennes, UMR CNRS 6118, Université de Rennes I, Rennes, France

Abstract

We present a new flow computation method in 2D Discrete Fracture Networks (DFN) intermediary between the classical DFN flow simulation method and the projection onto continuous grids. The method divides the simulation complexity by solving for flows successively at a local mesh scale and at the global domain scale. At the local mesh scale, flows are determined by classical DFN flow simulations and approximated by an Equivalent Hydraulic Matrix (EHM) relating heads and flow rates discretized on the mesh borders. Assembling the Equivalent Hydraulic Matrices provides for a domain-scale discretization of the flow equation. The Equivalent Hydraulic Matrices transfer the connectivity and flow structure complexities from the local mesh scale to the domain scale. Compared to existing geometrical mapping or equivalent tensor methods, the EHM method broadens the simulation range of flow to all types of 2D fracture networks both below and above the Representative Elementary Volume (REV). Additional computation linked to the derivation of the local mesh-scale Equivalent Hydraulic Matrices increases the accuracy and reliability of the method. Compared to DFN methods, the EHM method first provides a simpler domain-scale alternative permeability model. Second, it enhances the simulation capacities to larger fracture networks where flow discretization on the DFN structure yields system sizes too large to be solved using the most advanced multigrid and multifrontal methods. We show that the EHM method continuously moves from the DFN method to the tensor representation as a function of the local mesh-scale discretization. The balance between accuracy and model simplification can be optimally controlled by adjusting the domain-scale and local mesh-scale discretizations.

1. Introduction

Fractured media has been classically modeled using either Discrete Fracture Network (DFN) or Stochastic Continuum (SC) approaches [Neuman, 2005]. Both approaches have their own advantages and drawbacks [Hsieh, 1998]. First, they differ by their underlying permeability structure and their capacity of being specified by existing field data [Hsieh, 1998]. The DFN approach easily accounts for extensive fracture characterization [Cvetkovic et al., 2004; Davy et al., 2006] while the SC approach copes more consistently with hydraulic data [Ando et al., 2003]. Second, the simulation of hydraulic processes requires the development of specific methods using the DFN approach whereas only standard discretization schemes are required with the SC approach. Third, because the SC approach simplifies the fracture network structure, it is generally less computationally demanding than the DFN method. Hybrid approaches have been

developed to combine the advantages of the DFN and SC approaches. Most of them use a DFN approach at the onset for building equivalent heterogeneous continuous models mapping either the smallest fractures [Lee et al., 2001] or all fractures in the case of the Fracture Continuum Model (FCM) [Botros et al., 2008; Bourbiaux et al., 1998; Jackson et al., 2002; Reeves et al., 2008; Svensson, 2001]. Fracture Continuum Models aim at benefiting both from the structure complexity of DFNs and from the simulation and computational simplicities of continuous media. The objective is often to use the FCM approximation as a basis for simulating more computationally demanding transient or multiphase flows [Bourbiaux et al., 1998; Karimi-Fard et al., 2006].

The quality of the FCM models critically depends on the derivation of the block-scale permeabilities from the DFNs, i.e. on the mapping of the fracture network onto the continuum grid. The block is considered here as the elementary cell of the

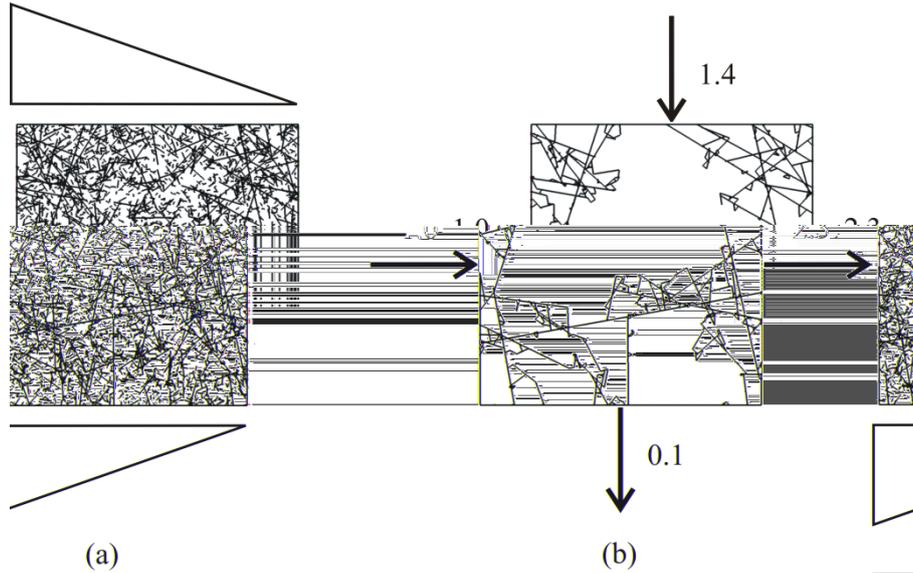


Figure 1 - Fracture network at the block scale (a) and corresponding flows (b) for the gradient head boundary conditions illustrated in (a). Fracture network parameters are the system size L normalized by the smallest fracture length ($L=100$), the fracture density number twice larger as its value at percolation threshold, the power-law fracture length exponent of 2.5 and the lognormal transmissivity distribution of logarithmic standard deviation 3.0. Boundary flows integrated on the domain sides and normalized by the mean fracture transmissivity are given in (b). They display large differences between opposite sides and illustrate the non-tensor nature of the flows.

continuum grid. Block-scale permeabilities are obtained either from geometrical characteristics [Botros *et al.*, 2008; Svensson, 2001] or through block-scale numerical simulations of flow [Jackson *et al.*, 2002]. Potential errors stem from differences between the derived scalar or tensor permeabilities and the effective flows within the block. They arise from the difficulty to account for complex fracture connectivity on a broad range of scales. For mapping based on geometrical rules, errors decrease with finer discretization whereas for mapping based on hydraulic computation of the equivalent permeability tensor, errors increase below the Representative Elementary Volume [Chen *et al.*, 2008; Long *et al.*, 1982]. Jackson *et al.* [2002] corrected part of the latter error by using a larger simulation zone, namely the “guard zone”, designed to remove dummy additional fracture connectivity with the sides of the block. FCMs keep the general connectivity structure above the scale of the block but remove most of the connectivity effects at lower scales. This results in less flow localization at the block scale and in difficulties in defining an equivalent block permeability tensor. A simple assessment criterion of the relevance of the tensor representation is the difference between flows on opposite block faces. They are equal in the tensor representation. Their difference is expected to increase steeply for complex networks below the REV scale as shown in the example of Figure 1. To

avoid handling complex connectivity at the block scale, existing FCM methods are applied either at scales close to the smallest fractures modeled [Botros *et al.*, 2008; Reeves *et al.*, 2008] or at scales larger than the Representative Elementary Volume (REV) [Durlafsky, 1991; Jackson *et al.*, 2002]. The first methods, i.e. the methods applicable to scales close to the smallest fracture modeled, represent permeability by a scalar or a diagonal tensor. They require fine grids for fractured medium representation but can be highly accurate for not too dense fracture networks [Botros *et al.*, 2008]. The second methods, i.e. the methods applicable to scales larger than the REV, represent permeability by an anisotropic full tensor defined by three 2D parameters K_{xx} , K_{yy} and $K_{xy}=K_{yx}$. They require the a priori knowledge of the REV and are hence more suited to dense fracture networks. Their drawbacks are the strong homogenization of flow, their applicability to a restricted scale range and the increase of the numerical error with the refinement of discretization.

None of these methods applies between the scale of the smallest fractures modeled and the REV, a scale range that spans orders of magnitude for multiscale fracture networks (i.e. fracture networks for which the fracture-length distribution is a power law) [Bonnet *et al.*, 2001; de Dreuzy *et al.*, 2001b]. In fact, this scale range extends at least from the connectivity scale to the REV scale. The

connectivity scale is the scale at which networks are just connected. It ranges from meters to kilometers [Berkowitz *et al.*, 2000; Davy *et al.*, 2009]. Because of the fracture transmissivity variability, the REV scale can be one to three orders of magnitude larger than the connectivity scale [Baghbanan and Jing, 2007; de Dreuzy *et al.*, 2001a; 2002]. Extending at least from the scales contributing to connectivity to the REV scale, the scale range of fractures contributing to flow covers several orders of magnitude from the meter to the kilometer scale. For this scale range, the only available flow simulation method is the DFN method. The DFN flow simulation method, however, is limited in terms of fracture number and domain size. The limiting step arises when solving the linear system issued from the flow discretization on the network structure. With traditional system-solving methods like the conjugate gradient, limitations stemmed from computation time. However, the new numerical methods like the multifrontal or algebraic multigrid method, as implemented in UMFPACK [Davis, 2004] and HYPRE [Falgout *et al.*, 2005], are orders of magnitude faster but require additional memory [de Dreuzy and Erhel, 2003]. Their sole limitation is the computer memory and not the computation time. As a rule of thumb, they can solve at most a linear system of rank one million in a couple of minutes on a personal workstation (Pentium Xeon, 3 GHz, 8 Go). Consequently, improving simulation capacities is not about speeding up the method but about enabling simulations otherwise impossible because of memory requirements. We will thus look in this paper at the numerical memory complexity rather than at the numerical time complexity. Our longer-term strategy is to use parallel computing for performing Monte-Carlo simulations while sequential individual simulations remain sequential [Erhel *et al.*, 2009]. This ensures scalability and a minimum of parallel computing implementation.

We propose a new FCM method for the scale range where no existing FCM method is applicable. Like with the previously-cited FCM methods, the objective is to simplify the domain-scale numerical scheme and computations while keeping the complexity of the DFN structure. The new method divides the simulation complexity by solving for flows successively at the local block scale and at the global domain scale. At the block scale, flows are determined by classical DFN flow simulations and approximated by an Equivalent Hydraulic Matrix

(EHM) relating heads and flow rates discretized on the mesh borders. Assembling the Equivalent Hydraulic Matrices allows for a domain-scale discretization of the flow equation. The Equivalent Hydraulic Matrices transfer the connectivity and flow structure complexities from the block scale to the domain scale. The method is similar to Boundary Element Methods [Dershowitz and Fidelibus, 1999] as it relates heads and flow rates on the block borders. As the Equivalent Hydraulic Matrices are determined at the block scale by DFN simulations, we show that the method is systematically applicable regardless of the scale, fracture density and fracture-length and transmissivity distributions. The method accuracy and complexity are given by the level of discretization of the block borders and of the domain. We call this method the Equivalent Hydraulic Matrices (EHM) method as heads and flow rates on the block borders are linearly linked by a matrix representing the block-scale hydraulic properties rather than by a scalar or a tensor permeability. This article describes the EHM method (section 2), shows its results compared to existing methods (section 3) and discusses its performance (section 4).

2. The Equivalent Hydraulic Matrices method

This section defines the EHM method. Once the domain meshed into elementary blocks, the principle of the EHM method is to express the block-scale hydraulic properties by a linear relationship between discretized flow rates and heads on the block borders. This expression will replace the scalar or tensor models used in classical FCM models. With \mathbf{h}_k as the discretization points (also called poles) of the block numbered k , the vector of flow rates \mathbf{q}_k and heads \mathbf{h}_k on these points are related by the following linear relationship:

$$\mathbf{q}_k = \mathbf{M}_k \mathbf{h}_k \quad (1)$$

The block matrix \mathbf{M}_k contains sub-block scale connectivity information and can be considered as the block-scale constitutive relationship. It is obtained by performing block-scale flow simulations on the DFN. Once obtained, the block-scale matrices \mathbf{M}_k are used for simulating flow rates at the system scale by imposing the continuity of heads and flow rates across the block borders. Relationship (1)

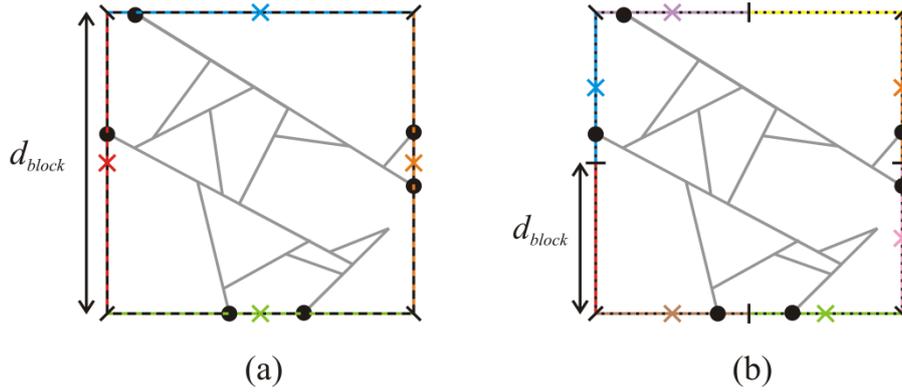


Figure 2 - Principle of the block-border discretization with two different discretization scales d_{block} corresponding to the side length (a) and to half of it (b). The backbone of the sub-network contained in the block is represented by the grey segments. Intersections mk between the backbone and the block borders are the black dots. Discretization segments and poles pk are respectively the color dashed segments and crosses. In (a), the four discretization segments intersect the backbone in one or two points. The four poles corresponding to the four crosses are thus defined and the Equivalent Hydraulic Matrix (EHM) is of rank 4. In (b), only six of the eight discretization segments intersect the backbone leading to the definition of 6 poles and to an EHM of rank 6.

differs a priori from Darcy’s law by its relating flow rates to heads and not to head gradients. This is only a surface difference since the construction method (section 2.2) and the resulting properties of matrices (Appendix A) ensure a dependence of the flow rates on head gradients.

2.1. Discretization

Discretization is made up of two parts consisting in discretization of the domain into elementary blocks (classical meshes) and discretization of block borders into poles. The first discretization consists in defining the mesh of the Fracture Continuum Model. We use hereafter a regular grid even though the EHM method can cope with irregular meshes. Each mesh cell will be called a block. The block contains a subset of the fracture network, i.e. a sub-network, the intersections of which with the block limits are denoted mk . mk is the i^{th} intersection of block k . The second discretization consists in splitting up the block borders into segments of constant length d_{block} , the discretization of each border starting at the border corner. Each segment contains either zero, one or more than one fracture border intersection mk . We define poles pk as the centers of those segments containing at least one intersection (Figure 2). Segments containing no intersection with the subnetwork are disregarded. The fundamental principle of the EHM method is that all intersections contained in the same segment are set to the same hydraulic head corresponding to the head of the

pole. These additional equalities reduce the number of unknowns at the cost of the approximation that close intersections have the same hydraulic head. The accuracy of the approximation is a function of the block discretization ratio r_{block} defined as the block-border discretization scale d_{block} normalized by the block face length. The coarsest discretization corresponds to $r_{block}=100\%$ and gives a single pole by block face. It leads to a representation close to the tensor representation (Figure 2a). It is, however, not equal to a tensor. First, opposite fluxes may not be equal. Second, some faces may not be intersected by the network and thus may not have led to a pole. Finer discretizations, obtained for decreasing r_{block} values, lead to more accurate representations converging to the DFN method when all poles correspond exactly to one intersection (Figure 2b). Like in classical numerical methods, we will show in section 3 that the numerical error of the EHM method decreases monotonously with the block-border discretization ratio r_{block} , i.e. when shifting from tensor-like to DFN methods.

2.2. Construction of the block-scale Equivalent Hydraulic Matrices

Equivalent Hydraulic Matrix \mathbf{H}_k expresses the linear relationship between flows and heads on the block border discretization. More specifically, by developing relationship (1), coefficient h_{ij} is the contribution of the head at the j^{th} pole to the flow at the i^{th} pole:

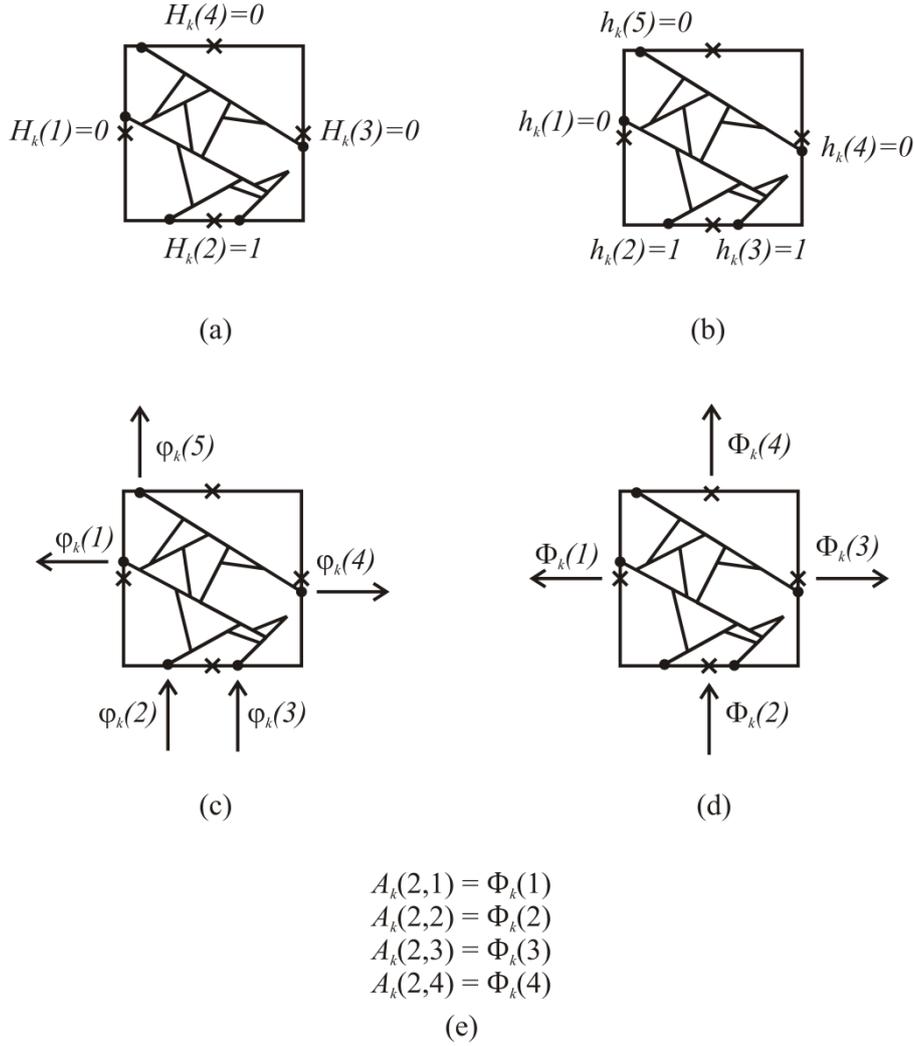


Figure 3 - Principle of the determination of one of the columns of the Equivalent Hydraulic Matrix A_k . In this example, block k is made up of five intersections between the sub-network and the block borders (black points) and four poles (blue crosses). The boundary conditions applied to poles illustrated in (a) are a fixed head of 1 for the 2nd pole and 0 for the other ones. They condition the boundary conditions applied to the intersections illustrated in (b), which are a fixed head of 1 for the intersections represented by the 2nd pole and 0 for the other ones. Flow rates in poles (d) are deduced from flow rates at the intersections (c). The flow rate at the i^{th} pole is the sum of the flow rates at the intersections represented by this pole. The elements of the second column of the matrix A_k are deduced from flow rates computed at the poles (e).

$$(2)$$

where i is the pole number of block k and $\phi_k(i)$ and $h_k(i)$ are the flow rate and head, respectively, at i^{th} pole. $\phi_k(i)$ is also equal to the flow rate computed at pole i by imposing a fixed head of 1 at pole j and 0 at the other ones, i.e. a fixed head of 1 for the intersections overlapped by the segment centered on pole j and 0 for the other ones. With these boundary conditions, all coefficients of column j can be simultaneously determined by a single DFN simulation (Figure 3). The construction of the full Equivalent Hydraulic Matrix requires n simulations and not n^2 , since the sum of all elements from a column of A_k is equal to zero because of flow conservation (Appendix A). We

underline that this method does not require any modification of the fracture network structure or any realignment of fractures. The approximation lies exclusively in equating flows and heads at the scale of the segment of the border discretization.

2.3. Domain-scale flow simulation

Solving the flow equation at the domain scale consists in imposing the continuity of heads and flow rates on poles positioned on the block faces. External head and flow rate boundary conditions are simply implemented by imposing the head in the matrix system for the fixed head values and by adding a source term for the fixed flow rates on the corresponding poles, respectively.

Network type	Parameters				Figure 4
	p	a	θ	p	
A0	192	1	0°, 30°	0	
A1	192	1	0°, 30°	3	
A2	12	1	0°, 30°	0	
A3	12	1	0°, 30°	3	I1
B0	6	2.5	Uniform	3	
B1	6	3	Uniform	3	I2
B2	6	3.5	Uniform	3	
C0	10	2.5	Uniform	3	
C1	10	3	Uniform	3	
C2	10	3.5	Uniform	3	I3
D0	20	2.5	Uniform	0	
D1	20	2.5	Uniform	3	I4

Table 1 – Characteristics of the tested fracture networks. The first four networks are on-lattice structures whereas the other ones are off-lattice structures. The ratio of the domain size L to the length of the smallest fracture l_{min} is set to 100. The fracture density is characterized by the percolation parameter p [Bour and Davy, 1998]. Fractures either cross the whole domain ($a=1$) or are distributed according to a power-law distribution ($a>1$). Fracture orientations (θ) are either specified to a set of fixed angles (first four cases) or uniformly distributed. Fracture transmissivity is constant (p) or lognormally distributed with a lognormal standard deviation (p). The last column indicates the figure numbers displaying an example of the network type in Figure 4. Fracture network types are classified in family of networks: “A” is for lattice structures, “B” for networks at percolation threshold, “C” for networks with an intermediary fracture density and “D” for dense networks.

We note P the union of all pole points with the convention that poles common to two or more blocks occur only once in P . P is made up of N^i poles at the interface between two blocks (P^i) and of N^f poles at the physical limits of the domain (P^f). The total number of poles at the domain scale N is equal to the sum of poles of types and :

$$(3)$$

With $B(j)$ as the set of blocks sharing pole and with as the flow rate at pole i of the b^{th} block of $B(j)$, flow continuity writes:

$$(4)$$

For the N^{fd} fixed poles at the domain limit where a Dirichlet boundary condition is applied:

$$(5)$$

For the N^{fn} poles on the Neumann boundary

condition, the imposed flow is simply inserted in equation (4). Equations (1), (4) and (5) lead to a linear system of N equations of the N unknown heads at the poles.

The first advantage of the EHM method compared to existing Fracture Continuum Models (FCMs) is the conservation of connectivity between blocks. In fact, faces intersected by fractures contain at least one pole whereas faces without intersecting fractures do not have any pole. This prevents dummy additional connectivity between blocks [Jackson et al., 2002; Reeves et al., 2008]. The second advantage of the EHM method is the existence of block-scale discretization parameter r_{block} , which can be used to tune the balance between numerical accuracy and computational cost.

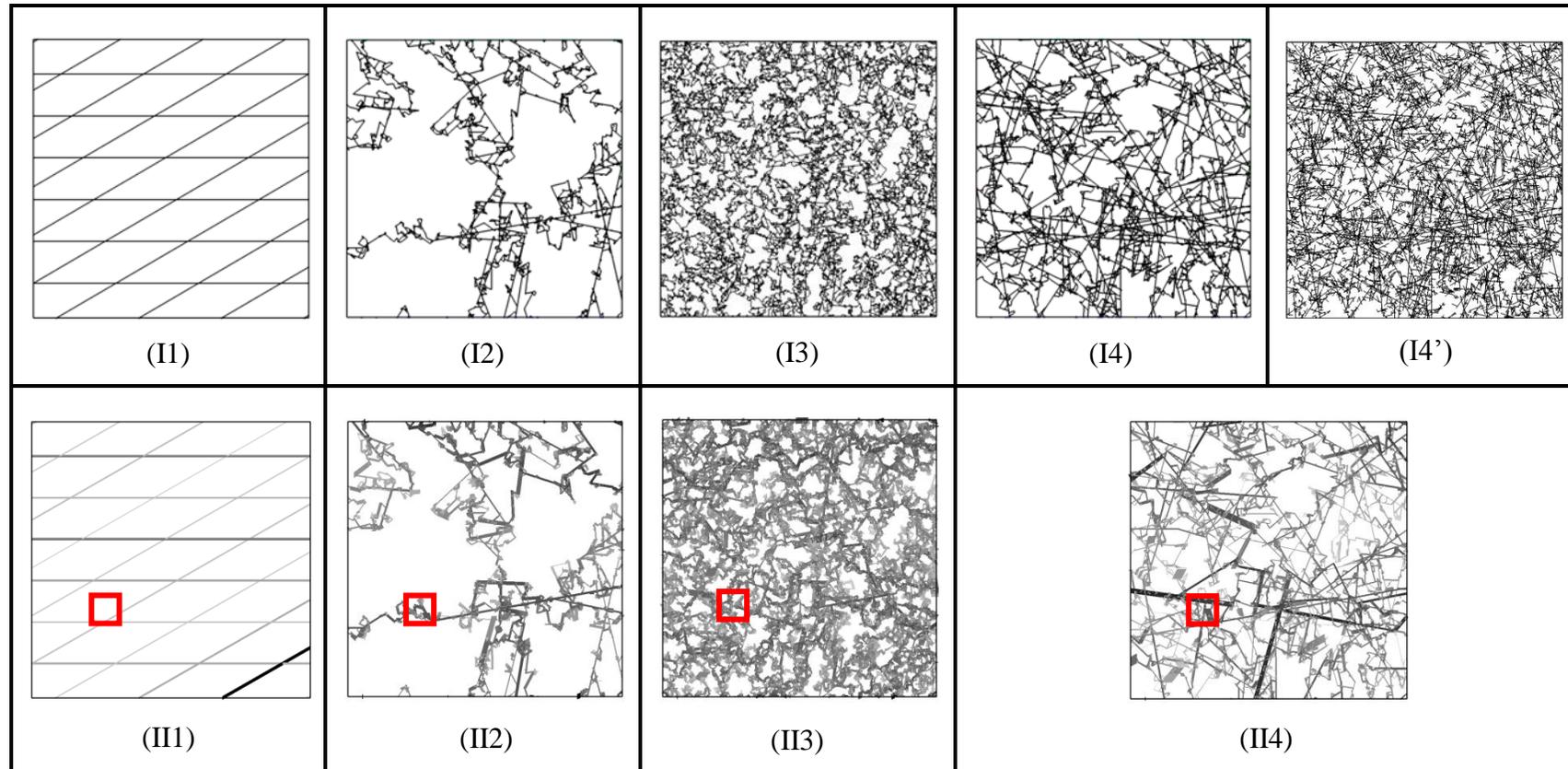


Figure 4 - Illustration of the tested fracture networks with examples of backbones (I1-I4), infinite clusters (I4') and flows (II1-II4) obtained with the gradient boundary conditions illustrated by Figure 1a and computed with a broadly distributed fracture transmissivity (see Table 1). Flow magnitude is represented by grey intensity and segment width. I1, I2, I3 and I4-4' correspond to network types A3, B1, C2 and D1 (Table 1). Red squares stand for an elementary block corresponding to a domain discretization of 10×10 blocks.

ROUBINET ET AL.: MAPPING 2-D DISCRETE FRACTURE NETWORKS
(PREPRINT VERSION)

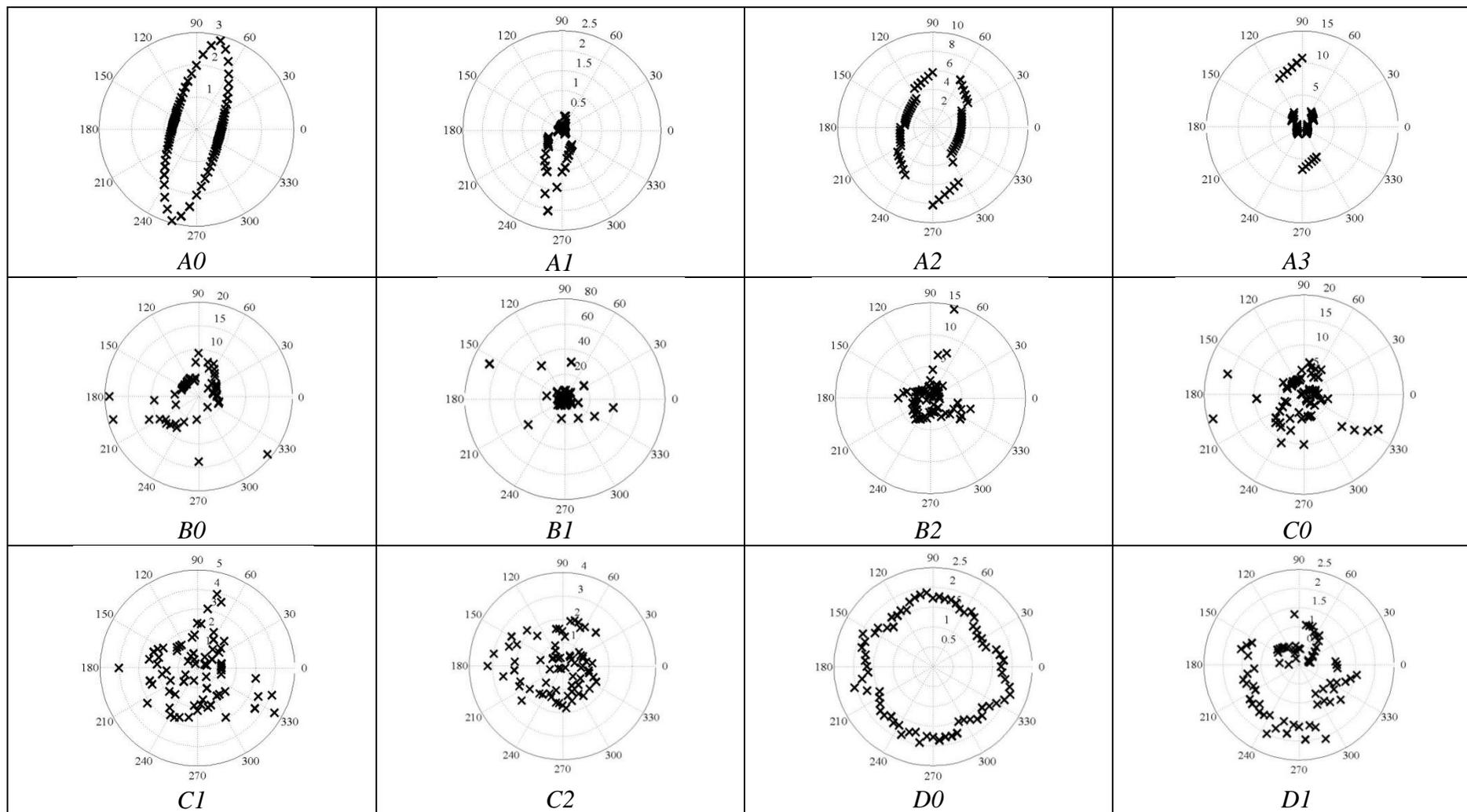


Figure 5 - Polar plots of permeability for the networks of Table 1, representing the permeability versus the polar angle θ . Each point represents for a given θ the permeability computed in a square of side length $L/3$ (where L is the domain size), of axis rotated by θ and centered on the initial system center.

ROUBINET ET AL.: MAPPING 2-D DISCRETE FRACTURE NETWORKS
(PREPRINT VERSION)

	ANIS_GEO				TENSOR_SIM			EHM (10%)			EHM (25%)		
Domain discretization	10×10	30×30	50×50	200×200	10×10	30×30	50×50	10×10	30×30	50×50	10×10	30×30	50×50
<i>A0</i>	33	33	31	20	0.14	0.04	0.92	5.5×10^{-5}	2.0×10^{-5}	2.7×10^{-5}	33	2.3×10^{-5}	2.8×10^{-5}
<i>A1</i>	44	49	47	2.3				4.9×10^{-5}	1.5×10^{-5}	3.2×10^{-5}	25	1.6×10^{-5}	3.3×10^{-5}
<i>A2</i>	49	2.3	2.0	0.3	7.5	35	37	3.4×10^{-5}	3.1×10^{-5}	1.4×10^{-5}	3.4×10^{-5}	3.2×10^{-5}	1.4×10^{-5}
<i>A3</i>	23	6.0	5.6	1.2				2.1×10^{-4}	6.3×10^{-5}	4.4×10^{-5}	2.1×10^{-4}	6.3×10^{-5}	4.4×10^{-5}
<i>B0</i>			22	4.7				0.42	0.25	0.11	3.1	1.2	0.59
<i>B1</i>			1.2×10^3	41				3.6	0.73	0.29	10	4.2	2.6
<i>B2</i>			3.4×10^4	2.2×10^2				45	1.6	1.5	81	45	4.8
<i>C0</i>			78	49				1.0	0.5	0.2	6.1	1.3	0.87
<i>C1</i>			2.1×10^3	93				5.9	1.3	1.5	33	5.7	5.1
<i>C2</i>			1.2×10^4	4.4×10^2				23	4.5	2.1	1.8×10^2	29	13
<i>D0</i>			1.7×10^2	28	11	21	50	2.8	0.89	0.51	21	5.1	2.9
<i>D1</i>			4×10^2	19				3.8	0.75	0.45	23	5.7	2.8

Table 2 – *flow_error* as defined by equation (7) for the backbone of the fracture network types defined in Table 1 and for the three computational methods ANIS_GEO, TENSOR_SIM and EHM at different discretization levels. Domain discretization refers to the ratio of the domain size to the block size in each direction. EHM methods are characterized in brackets by their block-scale discretization parameter r_{block} equal to the ratio expressed in % between the block-scale discretization distance d_{block} and the block scale. Empty cells mean that the conditions of application of the method are not fulfilled in the corresponding case.

close to threshold ($p=6$) and at around two and three times the density at threshold ($p=10$ and $p=20$). For lattice structures, p is close to the number of fractures within the domain and has been chosen equal to 12 and 192 for testing methods on sparse and dense lattices, respectively. Orientations are set to 0° and 30° relative to the main flow directions for the lattice structures and are uniformly distributed for the complex stochastic fracture networks. For the complex stochastic fracture networks, fracture lengths are power-law distributed [Bonnet *et al.*, 2001] according to the following distribution function:

$$p \propto l^{-p} \quad (6)$$

where l is the fracture length, a is the characteristic power-law length exponent and p the fracture number of length l . Natural values of a derived from outcrops range in the interval [2.0,3.5]. Fracture transmissivity values have been chosen to be either the same for all fractures or broadly distributed according to a lognormal distribution of logarithmic standard deviation equal to 3 [Tsang *et al.*, 1996]. Flow boundary conditions are classical gradient-like boundary conditions with fixed head on two opposite domain faces and a constant head gradient on the orthogonal faces (Figure 1a). The bottom line of Figure 4 illustrates the flow distribution computed with a broad transmissivity distribution and shows the strong channeling induced by the transmissivity distribution.

3.2. Comparison criteria

For comparing the performance of the EHM method with other existing methods, we use an accuracy criterion and a numerical memory complexity criterion. Accuracy is defined as the mean difference between the inlet and outlet flows and their reference counterparts. The reference is obtained from the direct simulation on the domain-scale discrete fracture network. By denoting Q_j and Q_i the flow rates obtained respectively by the method “ m ” and the reference method on face j , the comparison criterion writes:

$$C_j = \frac{|Q_j - Q_i|}{Q_i} \quad (7)$$

where j and i stand for the left and right vertical domain faces.

The memory complexity criterion is taken as the number of non-zero elements nmz of matrix B in the linear system $Bx=b$ issued from the discretization of the flow equation at the domain scale. Even if the number of non-zero elements is not the ideal criterion, it is still better than the system size in this case where the limitation lies rather in memory requirements than in computation time. All results represent averages over 10 simulations. We have checked that for the most complex cases $D0$ and $D1$, 10 and 100 simulations give very close results. Accuracy and numerical memory complexity results are computed for several discretizations characterized by the number of blocks (domain-scale discretization) and by r_{block} (block-scale discretization).

3.3. Results with existing mapping and tensor methods

To assess the Equivalent Hydraulic Matrices method, we compare it with other existing methods: first with what we call the ANIS_GEO method representing permeability by a diagonal tensor derived from fracture geometrical mapping onto the blocks and used within a finite volume method [Botros *et al.*, 2008] and second with what we call the TENSOR_SIM method representing permeability by a full tensor obtained from block-scale DFN flow simulations and used within a mixed hybrid finite element framework (Appendix B). For these two methods, the matrix permeability is fixed to 10^{-12} m/s. We use these two methods only when they are strictly applicable. From [Botros *et al.*, 2008], the ANIS_GEO method is applicable only if the ratio of the block length to the minimal fracture length is lower than 2.5. For the stochastic complex networks (Table 1 B0-D1), the ratio of the domain size to the minimal fracture length is $L=100$, requiring for the ANIS_GEO method a domain-scale discretization of at least 40×40 blocks. As the TENSOR_SIM method relies on the full permeability tensor at the block scale, we have determined this parameter for all studied networks from the block-scale directional permeability plots (Figure 5). The method is applicable only when the directional permeability is close to an ellipse [Long *et al.*, 1982]. It is the case for networks $A0$, $A2$ and $D0$ (Figure 5). For the other networks, transmissivity and fracture length distributions display heterogeneities that cannot be represented by a tensor at the scale of the block.

	DFN	ANIS_GEO				TENSOR_SIM			EHM (10%)			EHM (25%)		
Domain discretization		10×10	30×30	50×50	200×200	10×10	30×30	50×50	10×10	30×30	50×50	10×10	30×30	50×50
<i>A0</i>	26	0.46	4.4	12	200	1.2	12	34	14	110	140	1.2	42	75
<i>A1</i>	26	0.46	4.4	12	200				15	101	140	1.2	41	87
<i>A2</i>	0.16	0.46	4.4	12	200	1.2	12	34	0.7	1.6	2.4	0.6	1.5	2.4
<i>A3</i>	0.16	0.46	4.4	12	200				0.7	1.6	2.4	0.6	1.5	2.4
<i>B0</i>	0.87			12	200				0.45	1.4	2.5	0.3	1.2	2.2
<i>B1</i>	13			12	200				1.1	4.2	6.7	0.6	2.6	4.5
<i>B2</i>	33			12	200				1.5	6.6	12	0.7	3.5	7.1
<i>C0</i>	6.1			12	200				1.6	4.0	6.0	0.9	3.0	5.0
<i>C1</i>	53			12	200				4.5	16	26	1.8	8.6	16
<i>C2</i>	240			12	200				11	56	96	2.8	22	46
<i>D0</i>	52			12	200	1.2	12	34	8.7	27	41	2.9	15	26
<i>D1</i>	51			12	200				8.7	27	41	2.9	15	26

Table 3 – Numerical memory complexity expressed as the number of non-zero elements (nnz) of the domain-scale linear systems issued from the flow discretization for the network cases of Table 1. Parameters are identical to those of Table 2. All numbers are expressed in thousands of non-zero elements.

Table 2 shows the flow error as measured by (7) using the ANIS_GEO, TENSOR_SIM and EHM methods for several domain discretizations. With the ANIS_GEO method, the flow error decreases systematically from a 50×50 to a 200×200 domain discretization. ANIS_GEO is particularly accurate for sparse flow structures (networks with a small fracture density or with a broad transmissivity distribution). In fact, the simple summation of the fracture contributions induced by the mapping increases sub-block-scale connectivity and hence increases flow errors. Results also show that ANIS_GEO is not applicable to networks with connectivity driven by small fractures ($3 < a < 3.5$), yielding errors systematically larger than 41%. To be applied systematically, the geometrical projection method ANIS_GEO requires high levels of discretization involving large linear systems (Table 3). Such discretization levels can be achieved in 2D but likely not in 3D.

The TENSOR_SIM method is accurate for regular and dense structures with an error lower than 1% for network *A0* (Table 2). As opposed to the ANIS_GEO method, the error decreases when the block scale increases since the block becomes closer and eventually larger than the REV [Li *et al.*, 2009]. The main drawback of this method is its highly limited range of application. Most of the tested networks of Table 1 did not fulfill its conditions of

application.

3.4. Assessment of the EHM method

We have tested two levels of block-scale discretization of the EHM method: $r_{block}=10\%$ (called the most accurate method) and $r_{block}=25\%$ (called the least accurate method). The EHM method gives much smaller errors than those given by the geometrical and tensor methods ANIS_GEO and TENSOR_SIM (Table 2) except for *A0* (dense lattice structure with uniform fracture transmissivity) and *D0* (dense fracture network with uniform fracture transmissivity) with a domain discretized by 10×10 blocks and $r_{block}=25\%$. For these two cases, the tensor method gives smaller errors than the least accurate EHM method. In fact, the tensor method is very accurate because the REV is smaller than the block. The large errors of the least accurate EHM method are linked to the large number of fracture intersection points with the block border set to the same head, i.e. the head of the corresponding pole. The merged points are quantified by the border merging percentage p_{border} equal to the difference in percentage between the intersection point and pole numbers. p_{border} is 0% in the absence of any approximation of the block-scale discretization and increases as larger approximations are induced by the use of a smaller number of poles

Domain discretization	EHM (10%)			EHM (25%)		
	10×10	30×30	50×50	10×10	30×30	50×50
<i>A0</i>	70	21	14	91	53	36
<i>A1</i>	69	23	14	91	53	32
<i>A2</i>	4.7	1.7	2.6	13	4.3	2.6
<i>A3</i>	4.7	1.7	2.6	13	4.3	2.6
<i>B0</i>	14	7	5.3	26	14	10
<i>B1</i>	44	23	15	59	37	28
<i>B2</i>	54	32	23	70	49	39
<i>C0</i>	25	12	8.3	41	22	15
<i>C1</i>	53	29	21	70	46	35
<i>C2</i>	72	44	33	86	65	53
<i>D0</i>	50	26	18	70	44	32
<i>D1</i>	50	26	18	70	44	32

Table 4 – Block-scale border merging percentage p_{border} for the fracture network types of Table 1.

for the block-scale discretization. For *A0* and *D0* with the 10×10 domain discretization and $r_{block}=25\%$, p_{border} is larger than 90% and 70%, respectively (Table 4). This explains the cases where the EHM method is less accurate than the TENSOR_SIM method. For the same networks with finer domain discretizations (30×30 and 50×50 blocks), trends are reversed and the EHM method becomes more accurate than the tensor method. For lattice cases, the flow error with the EHM method is smaller than 5% for a domain discretization of 50×50 blocks.

For stochastic complex fracture networks, flow errors range from 0.11% to 180% with a majority of errors below 10% (Table 2). Errors larger than 10% affect cases *B2* and *C2* characterized by a coarse discretization of 10×10 blocks and by networks with the narrowest length distribution corresponding to $a=3.5$. The latter fracture networks have the largest number of fractures and fracture border intersections inducing first a stronger decrease in the numerical memory complexity (Table 3), and then larger values of point merging percentages p_{border} (Table 4).

Domain discretization	ANIS_GEO				TENSOR_SIM			EHM (10%)			EHM (25%)			Table 1
	10×10	30×30	50×50	200×200	10×10	30×30	50×50	10×10	30×30	50×50	10×10	30×30	50×50	
<i>D0</i>			5.5×10^2	1.5×10^2	37	38	14	11	4.9	3.0	76	23	14	
<i>D1</i>			1.7×10^3	1.5×10^2				12	4.3	2.4	70	20	11	14'

Table 5 – $flow_error$ as defined by equation (7) for the infinite cluster of fracture networks *D0* and *D1* (see Table 1 for description). EHM methods are characterized in brackets by their block-scale discretization parameter r_{block} equal to the ratio expressed in % of the block-scale discretization distance d_{block} to the block scale.

In all other cases, the flow error is smaller than 5% for a domain discretization of 50×50 blocks. With the most accurate method corresponding to $r_{block}=10\%$ and a domain discretization of 50×50 blocks, errors range between 0.11% and 2.1%. For 9 out of the 12 test cases for which corresponds to a fracture transmissivity distribution spanning at least 3 orders of magnitude, errors remain as low as a few percents showing the very good performance of the EHM method for complex flow structures.

Results of Table 2 show two interesting properties of the EHM method. First, errors are not sensitive to the fracture transmissivity distribution as shown by the comparison of the *D0* and *D1* cases. Second, errors systematically decrease both with the domain discretization at constant r_{block} and with r_{block} at constant domain discretization for all complex stochastic fracture networks. These properties offer possibilities to control the error by decreasing either the domain-scale discretization in blocks or the block-scale discretization ratio r_{block} . We note that all the above simulations have been performed on the backbone. However the applicability of the EHM method is not restricted to the backbone as shown by its good performance on infinite clusters (Table 5). Even if errors increase by a factor of 5 from the backbone to the infinite cluster, they still remain lower than 10% with the least accurate method ($r_{block}=10\%$) and a domain discretization of 50×50.

3.5. Flow error versus numerical memory complexity

Numerical memory complexity is taken as the number of non-zero elements in the domain-scale linear system issued from the discretization of the flow equation (nnz) (Table 3). nnz determines the memory required to solve the linear system. It does not, however, take into account the computation of the Equivalent Hydraulic Matrices at the block scale

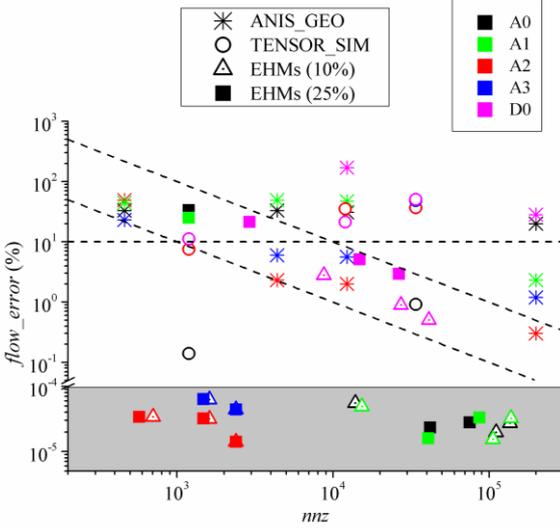


Figure 6 - flow_error versus numerical memory complexity (nnz) for lattice structures and dense fracture networks with constant fracture transmissivity (magenta symbols). The grey area underlines a lower part of the graph where errors range between $5 \times 10^{-6}\%$ and $10^{-4}\%$. The dashed horizontal line pictures the 10% error value. The dashed diagonal lines are power-law functions of exponent -1 and are meant as a guide for the eye for the decrease tendency of the EHM method. Note that errors larger than 103 are not represented.

as they are not critical in terms of system size and memory requirements. With the classical ANIS_GEO and TENSOR_SIM methods, the numerical memory complexity increases quadratically with the discretization ratio. With the EHM method, the numerical memory complexity is more variable and increases more slowly. Whatever the domain discretization and the value of r_{block} for complex stochastic fracture networks, EHM methods yield smaller numerical memory complexity than the DFN method except for the *B0* case. In the latter case, the proportion of blocks crossed by a single fracture increases the numerical memory complexity without improving the accuracy.

A more advanced evaluation of the methods is proposed by comparing their error according to their numerical memory complexity (Figures 6-8). For lattice structures (Figure 6 except magenta symbols), the EHM method is orders of magnitude more accurate than the classical methods at comparable complexities except for the *A0* case already discussed in section 3.4. Figure 6 also shows that the accuracy of the TENSOR_SIM method increases with the numerical memory complexity as discussed in section 3.3. For the dense complex stochastic

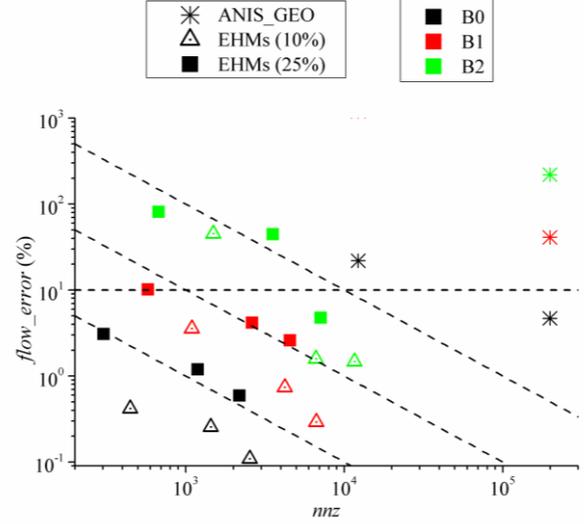


Figure 7 - flow_error versus numerical memory complexity (nnz) for stochastic complex fracture networks at threshold with distributed fracture transmissivities. The dashed horizontal line pictures the 10% error value. The dashed diagonal lines are power-law functions of exponent -1 and are meant as a guide for the eye for the decrease tendency of the EHM method. Note that errors larger than 103 are not represented.

fracture network of case *D0* (Figure 6, magenta symbols), the error with the TENSOR_SIM method is smaller than the error with all other methods at very low complexity (11%) but cannot be made smaller by refining the discretization. By contrast, with the EHM method, the error is larger at small complexity but decreases to less than 1% for the highest complexities. For the stochastic complex fracture networks (Figures 7-8), errors with the EHM method decrease with the numerical memory complexity (nnz), with a systematic trend close to nnz^{-1} . Figures 6-8 show that the errors using the EHM method with $r_{block}=10\%$ and $r_{block}=25\%$ are roughly parallel in log-log plots. For the same level of error corresponding to horizontal lines in Figures 6-8, the $r_{block}=10\%$ method yields smaller numerical memory complexities than the method with $r_{block}=25\%$.

3.6. Parameter optimization

The choice of the optimal method parameters depends on the targeted accuracy, available computation time and memory and on the fracture network structure. We illustrate the methodology to determine the appropriate parameter values on the most complex fracture network presented before *D1*. Basically, we show in this section that the accuracy

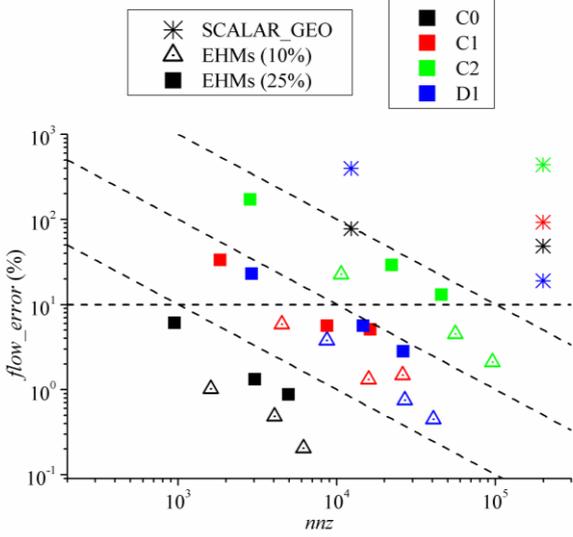


Figure 8 - flow_error versus numerical memory complexity (nnz) for stochastic complex fracture networks with distributed fracture transmissivities. The dashed horizontal line pictures the 10% error value. The dashed diagonal lines are power-law functions of exponent -1 and are meant as a guide for the eye for the decrease tendency of the EHM method. Note that errors larger than 103 are not represented.

is controlled by the discretization ratio r_{block} times the length of the block edge while computation time and memory requirements are controlled by the inverse of the discretization ratio ($1/r_{block}$). The approximation of the method is performed on the block-border discretization by equating the head of points belonging to the same discretization segment. The sole parameter influencing accuracy is thus the normalized segment length d_{block} equal to the discretization ratio r_{block} times the length of the block edge divided by the minimal fracture length. The error $error_{flow}$ defined in (7) increases monotonously with d_{block} (Figure 9). Flow errors smaller than 20% are obtained for d_{block} values smaller than 2. Once the segment length has been fixed by the targeted accuracy, the computation time and memory requirements are adjusted by choosing the discretization of the system in blocks controlled by the parameter $1/r_{block}$ (Figure 10). Here the computation time refers to the full time of the flow simulation including the determination of the Equivalent Hydraulic Matrices and the solution of the large system issued by the domain-scale flow discretization. Memory requirements are still taken as the number of non-zero elements in the domain-scale matrix (nnz). As previously said, nnz decreases

for coarser domain discretizations. The computation is mainly controlled by the determination of the Equivalent Hydraulic Matrices. It first sharply decreases with $1/r_{block}$ and then increases slightly. The minimum expresses an optimal distribution of computations between the domain scale and the block scale. Smaller $1/r_{block}$ values yield more numerous smaller blocks and more Equivalent Hydraulic Matrices to determine and in turn an increase of the full computation time by more than order of magnitude. Large $1/r_{block}$ values yield less numerous larger blocks which Equivalent Hydraulic Matrices take a much larger time to determine, increasing the full computation time by at least 50%. Similar results showing the existence of the minimum have been obtained for greater number of Monte-Carlo simulations and for different fracture network structures.

4. Discussion

The principle of the Equivalent Hydraulic Matrices method is to distribute the numerical complexity among two scales, the block-scale and the domain-scale. This method introduces a reduction of the domain-scale numerical memory complexity by coarsening the block-border discretization. The approximation consists in equating heads on nearby network points. It remains local and adjusts automatically to the specific network configuration. Like the tensor and geometrical mapping methods, the EHM method increases connectivity along block interfaces but only through the introduction of shortcuts between existing paths and not through the

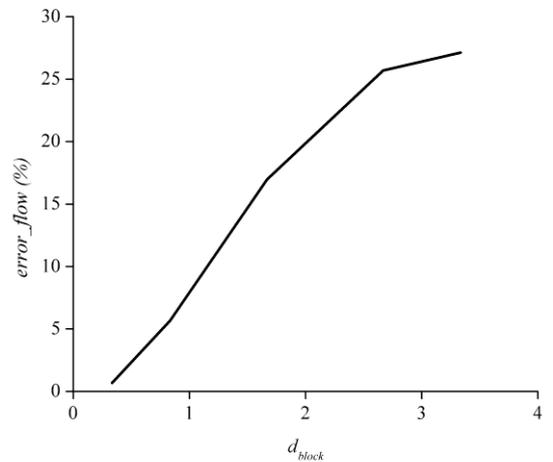


Figure 9 - flow_error versus d_block the discretization ratio r_{block} times the length of the block edge for the network D1 (domain size $L=100$).

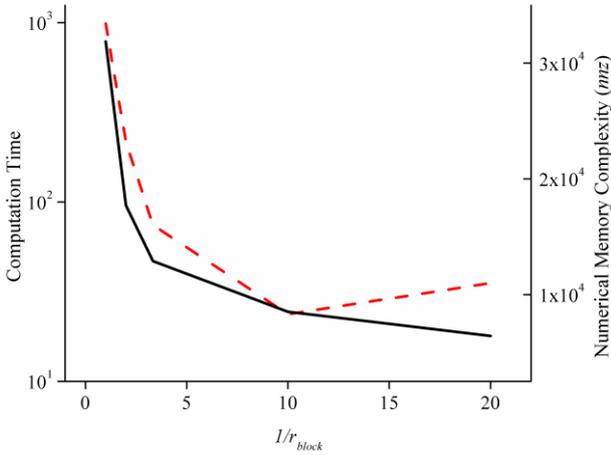


Figure 10 - Computation time (red dashed line) and numerical memory complexity taken as the number of non-zero elements in the largest matrix (black line) as a function of block size divided by the segment discretization length $1/r_{block}$ for $D1$ with d_{block} equal to 1.

connection of otherwise disconnected faces. Moreover, the connectivity increase is limited to the block borders and does not affect the connectivity within the block.

The EHM method is structured around the block-scale Equivalent Hydraulic Matrices, which transfer the local connectivity information from the block scale to the domain scale. The Equivalent Hydraulic Matrices are determined by the configurations of the fracture network within the blocks but do not depend on the boundary conditions. In other words, the matrices are not intrinsic medium properties like a tensor but can be used instead of the discrete fracture network in all flow contexts both above and below the Representative Elementary Volume (REV). The Equivalent Hydraulic Matrices method is still applicable below the REV due to the adjustment of the block-scale matrices to the specificity of the connectivity structures.

Because the Equivalent Hydraulic Matrices are derived from DFN computations, it is not surprising that they contain more information than the geometrical projection methods and lead to better performance at equivalent domain-scale numerical memory complexity. We express the domain-scale numerical memory complexity by the number of non-zero elements (nnz) of the linear system issued from the discretization of the flow equation. nnz is two to four orders magnitude smaller with the EHM method than with geometrical projection methods.

The EHM method also displays systematically decreasing flow errors with the domain discretization and block-scale discretization parameter r_{block} . This offers possibilities to find the best optimal complexity for a given error requirement. As seen in section 3.3, this is not possible with the tensor method TENSOR_SIM and it requires too fine a domain discretization with the geometrical method ANIS_GEO.

The EHM method is intermediary between the full DFN flow simulation and the tensor method. Like in the classical tensor methods [Jackson *et al.*, 2002], the method relies on block-scale DFN simulations. It is also similar to classical numerical methods from several respects. First, it expresses the relationship between flows and heads on the block borders like many numerical methods such as finite element or boundary element methods. Second, it converges to the full DFN solution when the domain discretization or the block-scale discretization increases. As a two-scale method, it shares similarities with multiscale methods like multigrid methods. It is, however, a pure bottom-up approach in the sense that the block-scale information is used at domain scale but not the other way around. From this respect, it is closer to the principle of the multiscale finite element methods [Efendiev and Hou, 2007] than to the principle of multigrid methods [Wesseling, 2004]. Finally, it remains opposed to homogenization methods since the Equivalent Hydraulic Matrices strongly depend on the block-scale fracture network structure and cannot be extrapolated to other blocks or other scales.

However, EHM methods have two drawbacks, the first one being the specificity of the domain-scale simulation method that precludes the use of commonly available continuous flow simulation softwares like MODFLOW. The second drawback is the additional numerical time complexity arising from the computation of the block-scale equivalent matrices. The total numerical complexity includes the solution of the domain-scale linear system and the computation of the Equivalent Hydraulic Matrices at the block scale. The first contribution is evaluated by the number of non-zero elements in the domain-scale linear system nnz used in the previous section. The second contribution is a function of the number of block-scale simulations multiplied by the complexity of the block-scale simulations. We have

chosen to retain only the first contribution to the numerical complexity for the two following reasons. First, the complexity of the domain-scale linear system is a critical constraint. Very large systems corresponding to $nnz > 10^7$ require parallel computation. While this constraint is met only for very large systems in 2D, it is common for 3D fracture networks at much smaller domain scales. Second, the EHM methods will likely be interesting for transient simulations. In fact, the computation of the EHM will be performed only once and the complexity of the transient simulations will depend only on the domain-scale linear system complexity. The choice of both the domain discretization and the block-scale discretization parameter will be dictated by the numerical optimization, the performance of simulations through block-scale and domain-scale computations restricted to manageable sizes, and last but not least by the required accuracy.

5. Conclusion

We have presented a new mapping method for solving the flow equation in 2D discrete fracture networks. The method consists in superposing a mesh onto the fracture network and finding the relationship between heads and flows on the borders of each block of the mesh. The relationship is linear and can be expressed in matrix form, hence the name the ‘‘Equivalent Hydraulic Matrices’’ (EHM) method. We have shown that this linear relationship is fundamentally analog to Darcy’s law as it is equivalent to relating flows to well-chosen head gradients on block borders. The matrix coefficients can be determined by block-scale numerical simulations and express equivalent block-scale permeability between block border zones. The zones are chosen independently for each block interface and correspond to the discretization of intersection points between the fracture network and the block border. The method is parameterized both by the block-scale discretization parameter (block-scale discretization distance divided by the characteristic block scale) and the domain discretization (the domain scale divided by characteristic block scale in each direction). The flow simulation at the domain scale is performed simply by assembling the block-scale Equivalent Hydraulic Matrices through head and flow continuity conditions.

The interest of the EHM method is to keep good

approximations of both the internal block and inter-block connectivities. Discretization is performed at a local scale and adjusts automatically to local fracture network configurations. We show on a broad range of 2D fracture networks with different density, fracture length and transmissivity distributions that the relative error of the method decreases systematically with the domain discretization and the block-scale discretization parameter, allowing for a possible automatic control of the method accuracy. We also show that the relative error of the EHM method remains restricted to a few percents for a coarse domain discretization (30×30 to 50×50), whatever the network geometrical structure and the fracture transmissivity distribution. The main advantage is its applicability to all kind of network structures, whereas the tensor method can only be used for blocks larger than the Representative Elementary Volume, a too restrictive condition for general DFN simulations. Geometrical methods give results of comparable accuracy for a much larger domain discretization leading to domain-scale numerical memory complexities orders of magnitude larger than the numerical memory complexity of the EHM method. The EHM method enables large-scale 2D flow simulation networks. We intend to test its performance on 3D fracture network simulations and in transient flow contexts

Appendix A: Property of the Equivalent Hydraulic Matrix

With the construction method described in section 2.2, \mathbf{M}_j has several properties. First, by imposing a fixed head of 1 at pole j and 0 at the other ones as boundary conditions, the flow goes into the block by \mathbf{M}_j and outward through the other poles (\mathbf{M}_k , $k \neq j$). Considering the flow going into the block as positive and the flow going outward as negative leads to:

$$\mathbf{M}_j \cdot \mathbf{M}_k = 0 \quad (8)$$

Second, for a given column j , all elements are determined simultaneously by solving the flow equation; mass conservation implies that

$$\mathbf{M}_j \cdot \mathbf{1} = 0 \quad (9)$$

Or similarly:

$$\mathbf{1} \cdot \mathbf{M}_j = 0 \quad (10)$$

Third, because the reciprocity principle is applicable in the case of Darcian flow [Barker, 1991], is symmetric:

$$(11)$$

Fourth, we show that the linear relationship (1) between flows and heads with property (10) leads to a relationship between flows and head gradients. In fact:

and using (10):

$$(12)$$

where is the distance between poles and . Equation (12) shows that flow at is the sum of the head gradients from to the other poles. Equation (12) gives a simple interpretation of . is the proportionality coefficient between flow and the head gradient between and . can thus be interpreted as an “equivalent transmissivity” between the i^{th} and j^{th} poles.

Appendix B: Tensor permeability and finite elements (TENSOR_SIM method)

The Equivalent Hydraulic Matrices method consists in dividing the domain into blocks and describing block-scale hydraulic properties using Equivalent Hydraulic Matrices. The discretization of the block borders by poles is determined by the block-scale discretization parameter r_{block} , which is the ratio of the block-scale distance discretization to the block length. This parameter r_{block} drives the discretization of intersections between block borders and fractures. Coefficients of the EHMs are determined by simulations at the block scale as described in

section 2.2. The EHMs are equivalent to tensors in that they impose the following discretization and construction rules: (1) $r_{block}=100\%$, i.e. each block border is discretized by at most one pole, (2) each block border is represented by one pole (even if there is no intersection point), (3) matrix coefficients are determined by applying head gradient boundary conditions in the vertical and horizontal directions [Renard et al., 2001], (4) the computed flow rates used for the determination of the coefficients are the directional flow rates, i.e. the mean of the flow rates going out of the domain through borders perpendicular to the studied direction, and (5) coefficients are corrected to obtain symmetric positive definite tensors [Long et al., 1982]. Adding these rules of determination, the Equivalent Hydraulic Matrices become tensors that describe block-scale permeability. Computed block-scale tensors are used within a classical mixed hybrid method adapted for quadrangles to simulate flow at the domain scale [Chavent and Roberts, 1991]. We denote this method the TENSOR_SIM method.

Notations

K_{xx}	permeability in the x -direction due to a head gradient in the x -direction, m/s.
K_{yy}	permeability in the y -direction due to a head gradient in the y -direction, m/s.
K_{xy}	permeability in the x -direction due to a head gradient in the y -direction, m/s.
K_{yx}	permeability in the y -direction due to a head gradient in the x -direction, m/s.
	vector of poles.
	vector of flow rates at the poles for block k , m^2/s .
	vector of heads at the poles for block k , m.
	Equivalent Hydraulic Matrix of block k , m/s.
	vector of intersections between the fractures and the faces of block k .
d_{block}	discretization distance of block borders, m.
r_{block}	discretization ratio of block borders. number of poles of block k .
	distance between the i^{th} and j^{th} poles, m.
P	union of all poles.
P^i	union of poles on block interfaces.
P^f	union of poles on domain faces.

N	total number of poles.
N^i	number of poles of type P^i
N^f	number of poles of type P^f .
$B(j)$	set of blocks sharing pole flow rate at poles from the b^{th}
block, m^2/s .	
N^{fd}	number of poles on the Dirichlet boundary condition.
N^{fn}	number of poles on the Neumann boundary condition.
	head of poles on the Neumann boundary condition, m
	fixed head on the Neumann boundary condition, m
p	percolation parameter.
l	fracture length, m.
$p(l)$	fracture length distribution.
a	power law exponent.
	flow rate computed by the method “ m ” on the face j , m^2/s .
	flow rate computed by the reference method on the face j , m^2/s .
nnz	number of non-zero elements of the domain-scale linear system.
p_{border}	border discretization percentage

Acknowledgments. The French National Research Agency ANR is acknowledged for its contribution to the development of numerical methods through the MICAS project (ANR-07-CIS7-004). We thank Jocelyne Erhel for fruitful discussions.

References

Ando, K., et al. (2003), Stochastic continuum modeling of flow and transport in a crystalline rock mass: Fanay-Augeres, France, revisited, *Hydrogeology Journal*, 11(5), 521-535, DOI: 10.1007/s10040-003-0286-0.

Baghbanan, A., and L. R. Jing (2007), Hydraulic properties of fractured rock masses with correlated fracture length and aperture, *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences*, 44(5), 704-719, DOI: 10.1016/j.ijrmms.2006.11.001.

Barker, J. A. (1991), The reciprocity principle and an analytical solution for darcian flow in a network, *Water Resour. Res.*, 27(5), 743-746

Berkowitz, B., et al. (2000), Scaling of fracture connectivity in geological formations, *Geophys. Res. Lett.*, 27(14), 2061-2064

Bonnet, E., et al. (2001), Scaling of Fracture Systems in Geological Media, *Reviews of Geophysics*, 39(3), 347-383

Botros, F. E., et al. (2008), On mapping fracture networks onto continuum, *Water Resour. Res.*, 44(8), DOI: 10.1029/2007wr006092.

Bour, O., and P. Davy (1997), Connectivity of random fault networks following a power law fault length distribution,

Water Resources Research, 33(7), 1567-1583

Bour, O., and P. Davy (1998), On the connectivity of three dimensional fault networks, *Water Resources Research*, 34(10), 2611-2622

Bourbiaux, B., et al. (1998), A rapid and efficient methodology to convert fractured reservoir images into a dual-porosity model, *Revue De L Institut Francais Du Petrole*, 53(6), 785-799

Chavent, G., and J. E. Roberts (1991), A unified physical presentation of mixed, mixed-hybrid finite-elements and standard finite-difference approximations for the determination of velocities in waterflow problems, *Advances in Water Resources*, 14(6), 329-348

Chen, S. H., et al. (2008), Numerical estimation of REV and permeability tensor for fractured rock masses by composite element method, *International Journal for Numerical and Analytical Methods in Geomechanics*, 32(12), 1459-1477, DOI: 10.1002/nag.679.

Cvetkovic, V., et al. (2004), Stochastic simulation of radionuclide migration in discretely fractured rock near the Äspö Hard Rock Laboratory, *Water Resour. Res.*, 40, DOI: 10.1029/2003WR002655.

Davis, T. A. (2004), Algorithm 832: UMFPACK V4.3---an unsymmetric-pattern multifrontal method, *ACM Trans. Math. Softw.*, 30(2), 196-199, DOI: 10.1145/992200.992206.

Davy, P., et al. (2006), Flow in multiscale fractal fracture networks, *Fractal Analysis for Natural Hazards*(261), 31-45

Davy, P., et al. (2009), A Universal Model of Fracture Scaling and its consequence for crustal hydro-mechanics, *Journal of Geophysical Research*, submitted

de Dreuzy, J. R., et al. (2001a), Hydraulic properties of two-dimensional random fracture networks following a power law length distribution 2. Permeability of networks based on lognormal distribution of apertures, *Water Resour. Res.*, 37(8), 2079-2095

de Dreuzy, J. R., et al. (2001b), Hydraulic properties of two-dimensional random fracture networks following a power law length distribution 1. Effective connectivity, *Water Resour. Res.*, 37(8), 2065-2078

de Dreuzy, J. R., et al. (2002), Hydraulic properties of two-dimensional random fracture networks following power law distributions of length and aperture, *Water Resour. Res.*, 38(12), 1276, DOI: 10.1029/2001wr001009.

de Dreuzy, J. R., and J. Erhel (2003), Efficient algorithms for the determination of the connected fracture network and the solution to the steady-state flow equation in fracture networks, *Comput. Geosci.*, 29(1), 107-111

Dershowitz, W. S., and C. Fidelibus (1999), Derivation of equivalent pipe network analogues for three-dimensional discrete fracture networks by the boundary element method, *Water Resour. Res.*, 35(9), 2685-2691

Durlofsky, L. J. (1991), Numerical calculation of equivalent grid block permeability tensors for heterogeneous porous media, *Water Resour. Res.*, 27(5), 699-708

Efendiev, Y., and T. Hou (2007), Multiscale finite element methods for porous media flows and their applications, *Applied Numerical Mathematics*, 57(5-7), 577-596, DOI: 10.1016/j.apnum.2006.07.009.

Erhel, J., et al. (2009), A parallel scientific software for heterogeneous hydrogeology, in *Parallel Computational Fluid Dynamics 2007*, edited, pp. 39-48.

- Falgout, R. D., et al. (2005), Pursuing scalability for Hypre's conceptual interfaces, *ACM Trans. Math. Softw.*, 31(3), 326-350, DOI: 10.1145/1089014.1089018.
- Hsieh, P. A. (1998), Scale effects in fluid flow through fractured geological media, in *Scale dependence and scale invariance in hydrology*, edited, pp. 335-353, Cambridge University Press.
- Jackson, C. P., et al. (2002), Self-consistency of a heterogeneous continuum porous medium representation of a fractured medium, *Water Resour. Res.*, 36, 189-202
- Karimi-Fard, M., et al. (2006), Generation of coarse-scale continuum flow models from detailed fracture characterizations, *Water Resour. Res.*, 42(10), DOI: 10.1029/2006WR005015.
- Lee, S. H., et al. (2001), Hierarchical modeling of flow in naturally fractured formations with multiple length scales, *Water Resources Research*, 37(3), 443-455
- Li, J. H., et al. (2009), Permeability tensor and representative elementary volume of saturated cracked soil, *Can. Geotech. J.*, 46(8), 928-942, DOI: 10.1139/t09-037.
- Long, J. C. S., et al. (1982), Porous media equivalents for networks of discontinuous fractures, *Water Resour. Res.*, 18(3), 645-658
- Neuman, S. P. (2005), Trends, prospects and challenges in quantifying flow and transport through fractured rocks, *Hydrogeology Journal*, 13(1), 124-147, DOI: 10.1007/s10040-004-0397-2.
- Reeves, D. M., et al. (2008), Transport of conservative solutes in simulated fracture networks: 1. Synthetic data generation, *Water Resour. Res.*, 44(5), DOI: 10.1029/2007wr006069.
- Renard, P., et al. (2001), Laboratory determination of the full permeability tensor, *Journal of Geophysical Research*, 106(B11), 26443-26452
- Svensson, U. (2001), A continuum representation of fracture networks. Part I: Method and basic test cases, *Journal of Hydrology*, 250(1-4), 170-186
- Tsang, Y. W., et al. (1996), Tracer transport in a stochastic continuum model of fractured media, *Water Resources Research*, 32(10), 3077-3092
- Wesseling, P. (2004), *An Introduction to Multigrid Methods*, Edwards.

4.3. Représentation de l'échange

4.3.1. Echange de fluides

Pour intégrer l'impact des hétérogénéités dans le coefficient d'échange, les transferts doivent être évalués explicitement avec une représentation prenant en compte les hétérogénéités du réseau de fractures (présence de fractures sur plusieurs échelles aux propriétés différentes) et les hétérogénéités de la matrice (distribution complexe de taille et de forme de blocs). Classiquement, cette problématique est gérée en discrétisant à la fois les fractures et la matrice par une méthode d'éléments finis correspondant à l'utilisation de mailles irrégulières 2D pour l'étude de milieux 2D. Comme expliqué dans la section 2.3.5, le maillage complet d'un domaine de l'échelle de l'ouverture de la fracture à l'échelle du bloc matriciel implique un coût numérique important difficile à supporter pour des domaines 3D ou/et des études en régime transitoire. Pour palier à ce problème, nous choisissons de mettre en œuvre une méthode numérique alternative avec une discrétisation du domaine par des éléments 1D pour des milieux 2D. Le réseau de fractures et la matrice seront respectivement représentés par des "éléments fractures" et des "éléments matrice" étant des segments 1D caractérisés par une ouverture, une transmissivité et un coefficient de stockage. Plus précisément, la matrice sera représentée par une grille régulière d'éléments aux propriétés équivalentes au milieu matriciel initial. La Figure 28 illustre cette description sachant que les segments noirs ("éléments fractures") représentent le réseau de fractures et les segments rouges ("éléments matrices") représentent la grille d'éléments 1D équivalent à la matrice. Cette représentation a pour avantage d'être simple à implémenter et permettra d'aboutir, après validation, à une évaluation directe de l'échange par détermination des flux entre les intersections des éléments de différents types. La méthode de détermination des propriétés à attribuer aux éléments matrice afin d'obtenir un milieu équivalent au milieu matriciel initial est présentée dans l'annexe 8.2.

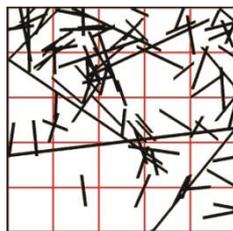


Figure 28 – Discretisation des milieux poreux fracturés par des éléments 1D.

Les fractures sont représentées par des éléments 1D correspondant aux fractures du milieu initial (segments noirs) et la matrice par une grille d'éléments 1D équivalente à la matrice du milieu initial (segments rouges).

4.3.2. Echange de solutés

L'exploitation des méthodes présentées dans la partie précédente montre que le phénomène de diffusion dans la matrice est lié aux propriétés géométriques et hydrauliques de la fracture et à l'organisation du réseau de fractures. D'après la partie 3.2.3, deux régimes peuvent être distingués: un premier régime où la profondeur de pénétration dans le bloc par diffusion est inférieure à la taille du bloc et un second régime où cette profondeur de pénétration atteint les limites du bloc. Dans le premier cas, la diffusion a lieu sur une faible épaisseur autour de la fracture et est indépendante de la taille du bloc qui peut être considéré comme une zone de diffusion infinie, alors que dans le deuxième cas, la diffusion a lieu dans tout le bloc matriciel. Dans le premier cas, le facteur limitant est la capacité à diffuser dans la matrice, liée aux paramètres de la fracture et classiquement bien représentée par les modèles discrets alors que dans le deuxième cas, le facteur limitant la diffusion est la taille du bloc correspondant à l'un des fondements des modèles double-porosité. La distinction entre les deux régimes dépend de la taille du bloc et du nombre de Péclet reliant les phénomènes d'advection dans la fracture et de diffusion dans la matrice. La condition de transferts des particules entre fractures par diffusion à travers le bloc matriciel est explicitée par l'équation (3) de *Roubinet et al.* [2010c]. Aux résultats de la partie 3.2.3, il faut ajouter ceux de la partie 0 qui montrent que la profondeur de pénétration dans le bloc matriciel dépend de la position dans la fracture, cette relation étant explicitée par l'équation (16). La nécessité de considérer les propriétés géométriques et hydrauliques de la fracture pour les échanges est alors à nouveau mise en évidence. La variation de la profondeur de pénétration le long de la fracture implique l'existence d'un régime intermédiaire entre les deux régimes précédemment décrits. Ce régime correspond à la coexistence, dans le même bloc, de zones où la diffusion est limitée par la taille du bloc matriciel (diffusion sur toute la largeur du bloc) et de zones où la diffusion est limitée par les propriétés physiques du milieu (diffusion autour de la fracture).

La définition classique du coefficient d'échange est adaptée au régime de diffusion limité par la taille du bloc mais n'est pas capable de prendre en compte la limitation liée aux propriétés de la fracture qui aura particulièrement lieu pendant les premiers temps de l'injection et/ou aux positions éloignées de l'injection. Une nouvelle définition du coefficient d'échange, prenant en compte les effets des caractéristiques du bloc et des fractures, est nécessaire pour décrire le régime où la diffusion est limitée physiquement. Une première étape dans la détermination de ce coefficient d'échange consiste à caractériser le comportement des temps de diffusion dans la matrice en fonction des paramètres des fractures. Une seconde étape

consistera à établir la relation entre les temps de diffusion et le nouveau coefficient d'échange comme cela a été fait dans le cas du coefficient de diffusion classique par *Noetinger et al.* [2001]. Par simplicité, la présente étude considère une diffusion 1D dans la matrice mais l'utilisation de solutions analytiques adaptées permettra d'étendre ce travail à une diffusion 2D. Les travaux explicités ci-dessous ont été fait l'objet d'une présentation à la conférence CMWR 2010 [*Roubinet et al.*, 2010a].

Expression analytique du temps de diffusion moyen

A partir de la solution analytique de *Tang et al.* [1981], la distribution cumulée du temps de diffusion dans une matrice infinie t_{diff}^{∞} pour un soluté se déplaçant par advection dans la fracture et par diffusion 1D dans la matrice s'exprime comme

$$P(t_{diff}^{\infty} < t) = \operatorname{erfc}(\sqrt{\tau/t}) \quad (17)$$

avec $\tau = \left(\frac{\phi\sqrt{D}t_a}{2b}\right)^2$, ϕ étant la porosité de la matrice, D le coefficient de diffusion de la matrice, $2b$ l'ouverture de la fracture et t_a le temps d'advection correspondant au temps passé dans la fracture. Le temps de diffusion moyen dans une matrice infinie $\overline{t_{diff}^{\infty}}$ est alors défini par

$$\overline{t_{diff}^{\infty}} = \int_0^{\infty} t P(t_{diff}^{\infty} = t) dt = \int_0^{\infty} \sqrt{\tau} \frac{e^{-\tau/t}}{\sqrt{\pi t}} dt$$

et tend vers l'infini. Cette expression du temps de diffusion a l'avantage de prendre en compte les effets des propriétés géométriques et physiques de la fracture, par les paramètres b (demi-ouverture de la fracture) et t_a (temps d'advection), sur les échanges entre la fracture et la matrice.

Pour évaluer l'effet de la présence de fractures voisines (ou de la taille des blocs matriciels) sur le temps de diffusion moyen, la distribution pour le cas d'une matrice infinie est tronquée par le temps moyen d'atteinte des fractures voisines par diffusion. D'après *Gardiner* [2009], pour une particule initialement à la position $x = 0$, le temps moyen nécessaire pour atteindre l'une des deux positions $x = -l_1$ et $x = l_2$ est

$$t^* = \frac{|l_1||l_2|}{2D_m}.$$

Le temps moyen de diffusion $\overline{t_{diff}}$ dans des blocs matriciels en couche est alors déterminé en tronquant la distribution (17) à partir du temps t^*

$$\overline{t_{diff}} = \int_0^{t^*} t P(t_{diff}^\infty = t) dt + \int_{t^*}^\infty t^* P(t_{diff}^\infty = t) dt. \quad (18)$$

En utilisant la dérivée de l'expression (17), le temps de diffusion moyen s'exprime comme

$$\overline{t_{diff}} = \frac{2\sqrt{t^*}}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\tau} e^{-\frac{\tau}{t^*}} - 2Z^2 \operatorname{erfc}(\sqrt{\tau/t^*}) + t^* \operatorname{erf}(\sqrt{\tau/t^*}) \quad (19)$$

qui peut être approximée par

$$\overline{t_{diff}} = \begin{cases} \frac{4\sqrt{t^*}}{\sqrt{\pi}} \sqrt{\tau}, \tau \ll t^* \\ t^*, \tau \gg t^* \end{cases}. \quad (20)$$

Le temps de diffusion moyen est décrit par deux régimes en fonction du temps caractéristique τ dépendant des paramètres de la matrice (porosité et coefficient de diffusion) et des paramètres de la fracture (vitesse et temps d'advection). Dans le premier régime, le temps de diffusion dans le bloc est limité par la taille du bloc par la dépendance en t^* mais aussi par les paramètres de la fracture par la dépendance en τ . Lorsque ce dernier temps caractéristique augmente, le système tend vers une configuration de plus en plus favorable à la diffusion dans la matrice avec une diminution de l'ouverture de la fracture et/ou une augmentation du temps passé dans la fracture. Le temps de diffusion moyen augmente avec τ jusqu'à atteindre la valeur seuil t^* correspondant au temps de diffusion moyen pour une concentration fixe de soluté dans la fracture. Le second régime correspond à une diffusion limitée seulement par la taille du bloc et est équivalent à la définition classique du coefficient d'échange qui considère que le soluté diffuse entièrement dans le bloc. L'évolution du premier au second régime correspond à une investigation de plus en plus importante du bloc matriciel par le soluté jusqu'à un remplissage total du bloc. Le premier régime met en évidence que la proportion de bloc investie par diffusion dépend de la géométrie de la fracture (ouverture et longueur) et de la dynamique d'écoulement dans la fracture (vitesse).

La Figure 29 représente l'évolution du temps de diffusion moyen en fonction des paramètres du domaine en utilisant l'expression (19) pour différents espacements entre les fractures (ou taille de blocs) représentés par le paramètre B . Les paramètres du domaine correspondent au ratio $\frac{\phi\sqrt{D}t_a}{2b}$ avec ϕ la porosité de la matrice, D le coefficient de diffusion de la matrice, b la demie-ouverture de la fracture et t_a le temps d'advection. Le temps de diffusion moyen augmente avec la taille du bloc (de la courbe bleue à la courbe verte) ainsi que la valeur critique du temps caractéristique du domaine permettant le passage du premier au deuxième régime. Plus le bloc est grand, plus l'atteinte d'un régime où seule sa taille influe nécessite des

conditions favorables à la diffusion. Ces dernières conditions comprennent la géométrie de la fracture et la vitesse de circulation du soluté dans la fracture. Autrement dit, la vitesse requise de déplacement dans la fracture pour remplir un bloc sera d'autant plus faible que le bloc est grand.

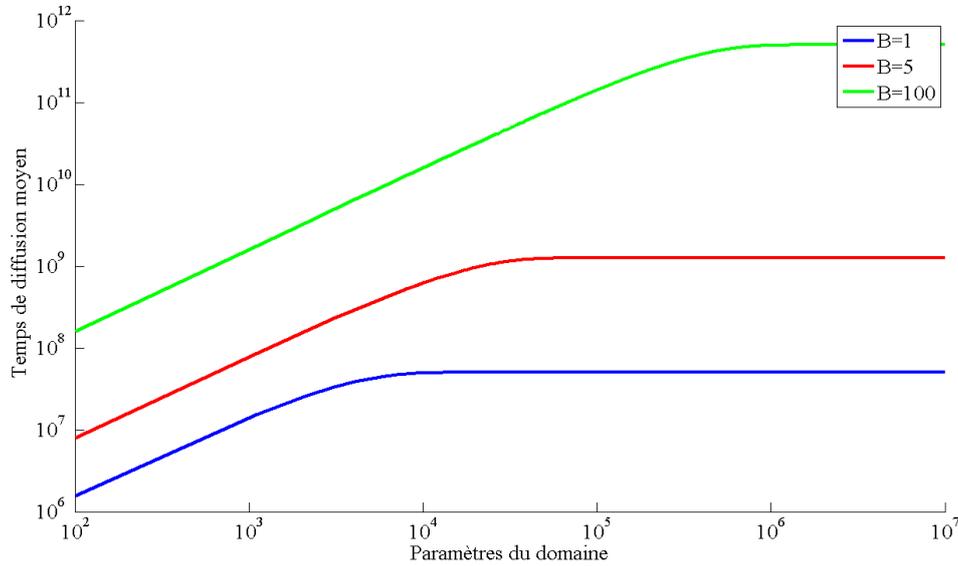


Figure 29 - Evolution du temps de diffusion moyen en fonction des paramètres du domaine à partir de l'expression analytique (19).

Le temps de diffusion moyen, caractéristique de la profondeur de pénétration dans le bloc, augmente avec le ratio $\frac{\phi\sqrt{D}t_a}{2b}$ jusqu'à une valeur seuil. ϕ est la porosité de la matrice, D le coefficient de diffusion de la matrice, b la demi-ouverture de la fracture et t_a le temps d'advection. Le temps de diffusion moyen est représenté pour différentes tailles de bloc B .

Simulations numériques et interprétation

Afin d'évaluer le comportement du temps moyen de diffusion en fonction des propriétés des fractures et des blocs pour des structures complexes, une détermination numérique est mise en œuvre. Cette détermination est faite en utilisant le logiciel PATH2 présenté par *Roubinet et al.* [2010c] et est validée pour le cas simple de fractures parallèles régulièrement espacées. La Figure 30 et la Figure 31 montrent que la détermination numérique du temps de diffusion moyen (courbes en traits pleins) correspond aux valeurs obtenues par l'expression analytique (20) pour différents espacements de fractures (paramètre B) et différentes valeurs du coefficient de diffusion de la matrice (paramètre D_m).

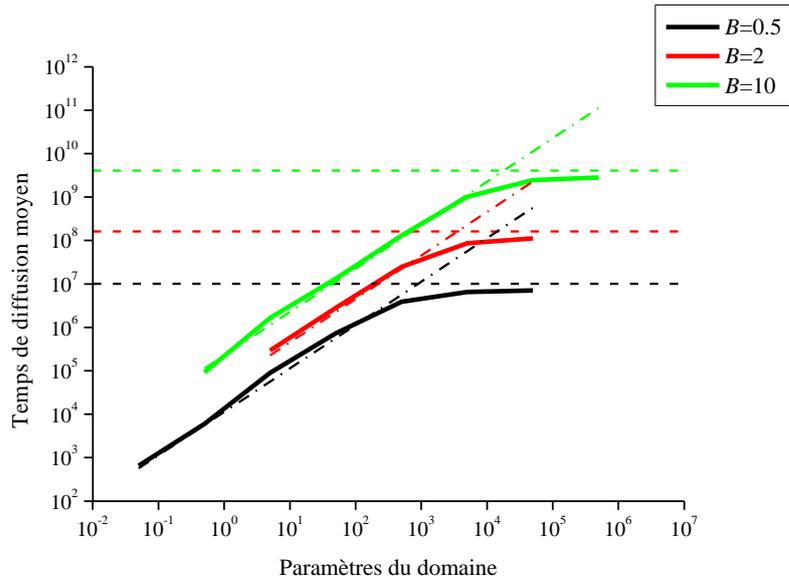


Figure 30 - Evolution du temps de diffusion moyen en fonction des paramètres du domaine pour différentes tailles de bloc B .

La superposition des simulations numériques (courbes en trait plein) et de la solution analytique (courbes en pointillés) permet de valider la détermination numérique du temps de diffusion moyen. Les paramètres du domaine sont les mêmes que ceux de la Figure 29.

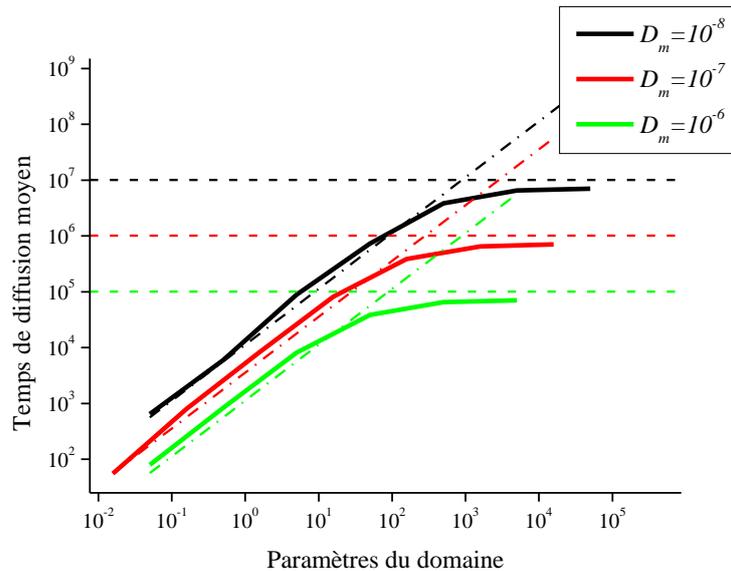


Figure 31 - Evolution du temps de diffusion moyen en fonction des paramètres du domaine pour différentes valeurs du coefficient de diffusion D_m .

La superposition des simulations numériques (courbes en trait plein) et de la solution analytique (courbes en pointillés) permet de valider la détermination numérique du temps de diffusion moyen. Les paramètres du domaine sont les mêmes que ceux de la Figure 29.

Après validation, le logiciel PATH2 est utilisé pour évaluer le comportement du temps moyen de diffusion sur les structures de type tapis de Sierpinski présentées par la Figure 32. Ces structures permettent d'étudier l'influence de la distribution de la taille des blocs en allant d'une distribution simple avec un seul niveau de division (Figure 32a) à une distribution plus

compliquée avec quatre niveaux de division (Figure 32d). La Figure 33 montre que les deux régimes du temps de diffusion moyen identifiés pour les structures simples sont aussi présents pour des structures compliquées. Quelque soit le niveau de division des structures, le temps moyen de diffusion augmente avec les paramètres du domaine jusqu'à une valeur seuil. La courbe noir oblique en pointillés gras correspond à l'approximation analytique du premier régime (première équation du système d'équations (20)) en considérant la taille du plus grand bloc. Lorsque la diffusion est limitée par les paramètres physiques du domaine, la distribution de la taille des blocs a peu d'influence sur les échanges. Par contre, les différentes valeurs seuil obtenues suivant la structure étudiée montrent que le second régime dépend de la distribution des blocs. L'atteinte de valeurs constantes prouve que les échanges ne sont plus limités par les propriétés physiques des fractures mais seulement par les propriétés physiques et géométriques de la matrice. Les lignes horizontales en pointillés de la Figure 33 correspondent aux valeurs seuil $\overline{t_{diff}^*}$ atteintes par le temps de diffusion moyen et peuvent être reproduites par l'expression suivante

$$\overline{t_{diff}^*} = \exp(25.8 - 1.8N + 0.1N^2)$$

où N est le niveau de division du milieu.

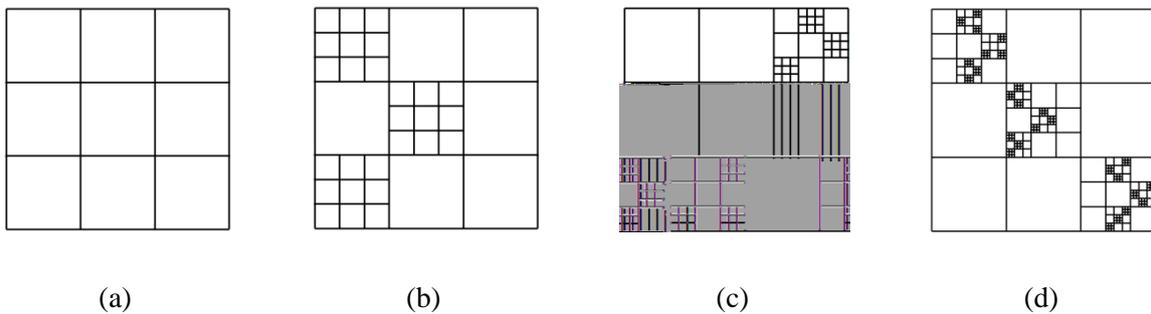


Figure 32 - Structures en tapis de Sierpinski avec différents niveaux de division. Les traits noirs représentent les fractures et les zones blanches les blocs matriciels. La complexité des réseaux augmente en allant de (a) vers (d) avec un niveau de division allant de 1 à 4.

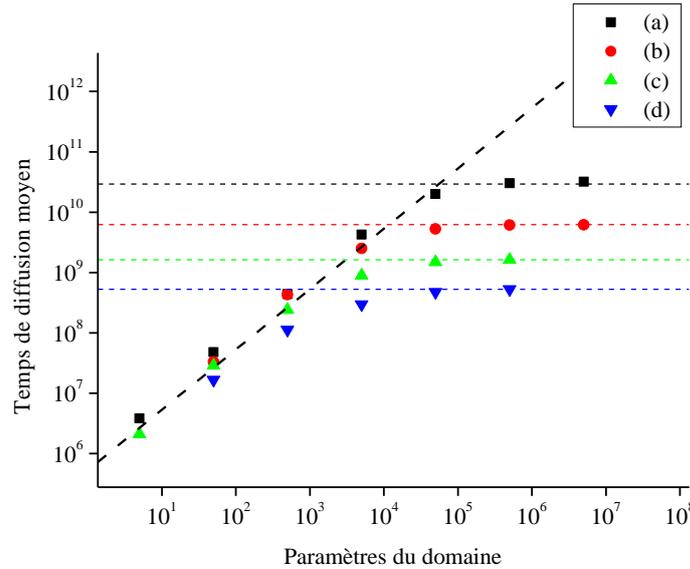


Figure 33 - Evolution du temps de diffusion moyen en fonction des paramètres du domaine pour des structures en tapis de Sierpinski.

L'expression des paramètres du domaine est la même que pour la Figure 29. Les symboles représentent les valeurs obtenues par simulations pour les structures présentées par la Figure 32. Les simulations sont faites pour un domaine de 100m, une matrice de porosité 0.1, un coefficient de diffusion de $10^{-8} \text{m}^2/\text{s}$, une vitesse moyenne de 10^{-3}m/s et l'ouverture des fractures varie de 10^{-1}m à 10^{-7}m . La courbe oblique en pointillés noirs épais correspond à l'expression analytique du premier régime du temps de diffusion moyen (équation 20) pour le bloc de plus grande taille. Les courbes horizontales en pointillés mettent en évidence les valeurs seuil atteintes.

L'étude comportementale du temps de diffusion moyen du soluté dans la matrice met en évidence que les échanges se caractérisent par deux régimes. Suivant le régime, les propriétés clés du domaine pour les échanges sont différentes. Dans le premier régime, les transferts des fractures vers la matrice sont influencés par les propriétés géométriques et physiques des fractures alors que dans le deuxième régime, seules les propriétés de la matrice ont un effet. La définition classique du coefficient d'échange, en ne considérant que le deuxième régime, surestime les échanges si la diffusion dans la matrice est limitée par les propriétés des fractures. Afin de prendre en compte les effets des propriétés des fractures, il est nécessaire d'intégrer le comportement mis en évidence dans cette étude dans l'expression du coefficient d'échange. En considérant une concentration constante du soluté dans la fracture, le coefficient d'échange s'exprime simplement comme l'inverse du temps de diffusion moyen [Noetinger et al., 2001]. Pour intégrer les effets des paramètres de la fracture, il faudra alors déterminer la relation entre le temps de diffusion moyen et le coefficient d'échange dans le cas d'un soluté circulant par advection dans la fracture.

5. Prise en compte des effets des structures dans la modélisation en bioremediation

Des expériences de laboratoire ont été menées au sein de l'équipe EAU à Géosciences Rennes par Alexandre Boisson pour étudier les paramètres clés du phénomène de dénitrification. L'observation de la dynamique de dénitrification dans un tube en plastique avec développement d'un biofilm a révélé l'existence de deux régimes distincts dans le processus de dénitrification. La réaction est limitée biologiquement durant la première phase de l'expérience et physiquement durant la deuxième phase. En assimilant le système flux/biofilm à un système de zones mobile/immobile et en reliant la capacité de réaction à la capacité de diffuser dans la zone immobile (biofilm), le comportement expérimental observé peut être expliqué par les conclusions précédentes sur la dépendance entre les structures du milieu et sa dynamique de réaction. Nous avons vu précédemment que la diffusion de solutés dans la matrice peut être limitée soit par les propriétés hydrauliques de la fracture, impliquant alors une diffusion dans une zone limitée autour de la fracture, soit par la taille du bloc matriciel, impliquant alors une diffusion dans toute la zone matricielle. Pour l'expérience de dénitrification, la différence majeure réside dans la variation de taille de la zone immobile puisque le biofilm sera d'épaisseur très faible au début de la réaction et s'épaissira au fur et à mesure de l'expérience. Cependant, la même logique peut être appliquée en considérant que la première phase de l'expérience est assimilable à une période où l'épaisseur de la zone immobile est faible et donc la limitation de diffusion (ou de réaction) sera liée à la taille du biofilm, impliquant une limitation biologique. Par contre, la deuxième phase correspond à une période où le biofilm est assez développé pour que la limitation de diffusion (ou de réaction) soit liée aux paramètres hydrauliques de la zone mobile, impliquant une limitation physique de la réaction. L'article suivant présente le protocole et les résultats de l'expérience de dénitrification ainsi que le modèle conceptuel permettant de reproduire les deux régimes caractéristiques de la réaction en prenant en compte l'effet des structures et de leurs propriétés sur la réaction.

1 **Flow velocity impact on denitrification process at the** 2 **meso-scale: experiment and modelling**

3 A. Boisson¹, D. Roubinet¹, L. Aquilina¹, O. Bour¹ and J-R de Dreuzy¹

4 ¹ Géosciences Rennes, UMR CNRS 6118, Université de Rennes I, Rennes, France

5 **Abstract**

6 Although hydrodynamic processes are known to impact on biogeochemical reactions, their
7 influence is still not well identified. Particularly, the effects of physical factors such as flow
8 velocity and diffusion need to be evaluated. We propose an experiment and a model to study
9 the relationship between hydrodynamic parameters and reactivity at the meso-scale. The
10 experiment consists in monitoring denitrification process for nitrate rich site water passing
11 continuously through plastic tubes (carbon source). For several velocities (from 6.2 to 35
12 mm/min), the experiments show two main phases: a first phase where the nitrate consumption
13 is biologically controlled and a second phase where the nitrate consumption is physically
14 controlled. The complexity of the reactivity highlights the relevance of dynamic experiments
15 over static ones for the understanding of this process. We finally propose a conceptual model
16 where nitrates are present in a mobile phase while the reactivity occurs in the immobile
17 biofilm phase. As in our experiment, the system is firstly biologically constraint (biofilm
18 growth) and then physically constraint (flow velocity effect on diffusion in the biofilm). This
19 model allows the definition of equivalent parameters for the biofilm effective thickness and
20 the diffusion coefficient of the system. The current study improves the understanding of
21 denitrification process at the meso-scale.

22 **I. Introduction**

23 Worldwide, nitrate leaching to groundwater represent a long term risk for groundwater
24 quality (Spalding and Exner, 1993). Natural attenuation of this compound by biological
25 degradation (denitrification) has been extensively studied from the batch scale (Kornaros and
26 Lyberatos, 1997; Marazioti et al., 2003) to complex aquifer scale (Korom, 1992; Tarits et al.,
27 2006). A full understanding of denitrification processes in natural systems implies a structural
28 description of the several porosity scales and the determination of dominant physical,
29 chemical and biological processes at each scale (Sturman et al., 1995). As reactivity in
30 complex natural media is partially driven by physical heterogeneities (Tompkins et al., 2001),
31 the understanding of reaction kinetics, well developed for static experiments (Hiscock et al.,
32 1991; Korom, 1992), needs implies further development for dynamic experiments. Effects of
33 physical heterogeneities have been studied on 2D systems, on reactive columns (Sinke et al.,
34 1998; Vongunten and Zobrist, 1993) and on other geometries (Thullner et al., 2002) or 1D
35 systems, such as tubes (Garny et al., 2009; Lewandowski et al., 2007; Lewandowski et al.,
36 2004). Most of these studies help for relating biofilm development to reactivity (Garny et al.,
37 2009; Lewandowski et al., 2007; Lewandowski et al., 2004) and to physical parameters
38 (Beyenal and Lewandowski, 2002; Garny et al., 2009; Lau and Liu, 1993; Stoodley et al.,
39 1994). More precisely, Characklis discusses the influence of hydraulic conditions on biofilm
40 development (shape, size and reactive layer) and nutrient availability (Characklis, 1981).
41 However, there is a lack of knowledge about the direct impact of physical parameters on the
42 bulk reactivity although physical parameters such as velocity may be a key-control of the
43 overall reactivity in natural media where mobile water is usually interacting with a non
44 mobile mineral phase.

45 The global comprehension of hydrodynamic parameter effects on bioreactivity implies an
46 accurate understanding of this relationship at the meso-scale. With experiments in plastic
47 tubes (equivalent to a 1D flow system), the system geometry is perfectly known and the
48 hydraulic parameters are controlled. It is thus the most convenient configuration scale to
49 assess the influence of hydrodynamic parameters such as advection and diffusion on a single
50 flow line. It avoids dealing with the flow complexity of columns which are always a sum of
51 processes occurring on a large number of flow lines. The experiment presented here gives
52 information linking mobile (bulk water) and immobile phases (matrix and/or biofilm) relevant
53 for understanding reactive processes in natural media.

54 In order to understand physical and biological controls on the reactivity, we measure the
55 reactivity evolution of nitrate-rich water passing through PVC tubes with different velocities.
56 We aim at determining the mechanisms that are hydrodynamic-dependant during the
57 denitrification process due to biofilm development. Using a new conceptual model based on a
58 mobile / immobile representation of the system, we investigate the key parameters of the
59 denitrification experiment. The material and methods used for the denitrification experience
60 are described in section 2 and the experiment results and their interpretation are presented in
61 section 3. Section 4 is devoted to the conceptual model description and its application on
62 experiment results. We then discuss how both experiment and model may be a simplification
63 of natural media where nitrates flowing with water (mobile phase) interact with a mineral
64 source (immobile phase).

65 **II. Material and methods**

66 The experiment consists in a continuous injection of nitrate-rich water in plastic tubes (1D
67 flow) and monitoring the nitrate consumption due to bacteria development. Bacteria grow

68 using carbon from the tubes and nitrates from the water. Plastic compounds are known to
69 serve as substrate for heterotrophic bacterial growth (Mohee et al., 2008; Shah et al., 2008).
70 The experiments are made in the dark at a constant temperature of 18°C with three different
71 velocities (6.2mm/min, 13mm/min and 35mm/min). All experiments are conducted with
72 similar experimental setup and materials described below.

73 **1. Materials**

74 We use “reactive” tubes providing carbon (“Watson Marlow® PVC double manifold” tubes)
75 and non reactive tubes (Pharmed® or Teflon tubes) with an inner diameter of 2mm. The PVC
76 tubes are transparent and thus allow biofilm observation. The nitrate-rich water (45mg/L) has
77 been collected in the Ploemeur site (Brittany, France) where natural denitrification has been
78 observed (Tarits et al., 2006) and do not receive any treatment. The water is sampled from the
79 same piezometer at a maximum of 1 year interval. No water chemistry changes have been
80 observed during this period. Although part of the developing microbial population may come
81 from the tubes as no sterilisation was made, bacteria are supposed to come from the water
82 since 1) they are naturally present in such groundwater (Bekins, 2000; Bougon et al., 2009);
83 2) several experiments of crushed granite and water from the Ploemeur site have showed
84 denitrification processes. The inoculation of the medium occurs by bacterial attachment. The
85 water prior to injection in the tube is maintained under argon atmosphere in high density
86 polyethylene (which non reactivity is controlled) where regular injection of argon allows
87 deoxygenation of the water by bubbling and keeps it in anoxic conditions. The organic carbon
88 concentration in the injected water remains below 0.5 ppm during the whole experiment.

89 **2. Analysis**

90 All samples are filtered with a 45µm Sartorius filter before analyses. Major anions (NO₃⁻,
91 SO₄²⁻, Cl⁻, F⁻) are analyzed daily using a Dionex DX 120 ion chromatograph. Organic and
92 inorganic carbons are analyzed every three days using a Shimadzu 5050A Total Organic
93 Carbon analyzer. The volume used for analyses (5 ml) is equal to the full volume of the tube
94 here after called pore volume. It corresponds to a volume that passed only once in the system.
95 Thus the sampling protocol is independent of the velocity. Dissolved oxygen is measured
96 using a WTW315i-CondOX probe. Flow is measured daily by weighting at the tube outlet: its
97 variations are below 2% in weighted mass.

98 **3. Preliminary experiment in batch**

99 Using the experimental tubes and water, a preliminary batch experiment is performed to
100 check the occurrence of the denitrification process with plastic tubes and immobile water.
101 150ml of deoxygenated water is placed in glass flasks under argon atmosphere with plastic
102 tube fragments (with a mass of 8g and a reactive surface of 0.018m²). Other batches are made
103 containing the same water only. Experiments are conducted in duplicates. In the case of site
104 water and tubes, a complete consumption of the nitrates is observed within 130 hours. In the
105 batch containing only water the concentration of the nitrates does not evolve, which confirms
106 that the denitrification reaction occurs between the tube carbon and the water solutes and is
107 not only related to water compounds. Consequently, plastic tubes can be considered as the
108 carbon source of the denitrification reaction.

109 **4. Flow through experiments**

110 In the flow through experiments, water is delivered from the tank to the PVC tube through
111 Teflon and Pharmed tubes placed in a peristaltic pump (Watson Marlow 205U; Figure 1). It is
112 checked during all the experiments that no reaction occurs in this setup before the PVC tubes.
113 The PVC tubes (135cm length) are placed at the end of the Pharmed tubes. Experiments are
114 performed at three different flow velocities: $V_1=35$ mm/min (8 replicates), $V_2=13$ mm/min (10
115 replicates) and $V_3=6.2$ mm/min (3 replicates). Residence-times in the tubes range from 40
116 min to 3h 40min. These velocities are in the order of magnitude of the velocities observed in
117 situ in the Ploemeur site. Experiments are performed with replicates to take in account the
118 inherent variability of biogeochemical reactions. The experiments were done in three phases
119 during 1 year to ensure the reproducibility of the system. .

120 **III. Results**

121 Figure 2 shows the nitrate consumption versus time for the three different flow velocities.
122 Errors bars show the variability of the results among the different replicates. Beyond the
123 variability, three phases during the nitrate consumption can be identified. Nitrate consumption
124 first increases (i.e. $\text{NO}_{3\text{outlet}} - \text{NO}_{3\text{inlet}}$ becomes more and more negative) with time similarly
125 to batch experiments, secondly it becomes constant and thirdly decreases. The introduction of
126 dynamic flow conditions enhances the complexity of the system. The secondary and third
127 phases were not observed in batch experiments and can be attributed to the dynamic
128 conditions of the flow through experiment. Biofilm development is observed during the
129 experiment (Figure 3). Its thickness has not been measured but constant outlet flow indicates
130 that this development do not lead to a significant tube clogging.

131 **1. Speed up of the degradation (Phase 1)**

132 The first phase (points included in the dashed square of Figure 2) is a linear nitrate
133 consumption increase which can be observed before the thresholds in Figure 2. Figure 4
134 shows experimental results expressed as the reactivity and not as the nitrate consumption. To
135 consider a similar nitrate mass provided in the system whatever the flow velocity, the reaction
136 rate ($\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$) evolution is observed versus pore volume instead of versus time. The
137 degradation rate of the nitrates (Figure 4) does not depend on the velocity but only on the
138 quantity of water passed through the experiment (i.e. the number of pore volume). The mass
139 of nitrates consumed per pore volume is thus independent of the residence time. The increase
140 with time of the reaction rate (Figure 4) comes from the development of a biofilm. The
141 biofilm first appears as clusters from the millimeter scale to the centimeter scale at the
142 beginning of the experiment (<600hrs) (Figure 3a) before spreading continuously along the
143 tubes (Figure 3b). As nitrate and organic carbon are present at the tube outlets (carbon
144 concentration ranging from 6.5 to 21ppm), they are in excess in the system. The limiting
145 factor controlling this first phase is the bacterial growth rate that can be characterized by the
146 degradation rate (Figure 4).

147 As the reaction rate is linked to bacterial development, the integrated consumed mass is the
148 critical parameter in this situation whereas in batch only the limitation via nitrate consumption
149 could be observed.

150 **2. Nitrate consumption threshold (Phase 2)**

151 The second phase shows a nitrate consumption threshold dependent on the velocity (Figure
152 2). It represents the maximum nitrate consumption for a given flow velocity. The maximum
153 reaction rates (Figure 4) reached for each velocity is presented Table 1. It shows a control of

154 the maximum reaction rate by the velocity. As carbon and nitrates (the main reactants) are
155 still in excess at the tube outlets, their availability is once more not the limiting factor. We
156 interpret the velocity dependence of the thresholds as the diffusion capacity of the nitrates
157 within the biofilm. This diffusion process is in turn linked to the velocity within the tube. This
158 process is further described in section IV.

159 We notice that variability increases with experimental time. This increase of the variability
160 was expected as biofilms are difficult to reproduce over long a experimental time and may
161 evolve differently from identical initial conditions (Lewandowski et al., 2007; Lewandowski
162 et al., 2004).

163 **3. Slow down of the nitrate degradation (Phase 3)**

164 We observe in most cases (Figure 2 blue and red curves) that the nitrate consumption may
165 decrease ($\text{NO}_{3\text{outlet}} - \text{NO}_{3\text{inlet}}$ tends towards zero) after reaching the maximum reaction rate.
166 The reactivity decrease takes place slowly as the water residence time in the tubes is much
167 smaller than the experimental time. This phenomenon will be discussed more in the details
168 elsewhere (Boisson et al 2010).

169 **IV. Interpretation using a mobile / immobile model**

170 We aim at building a conceptual model able to reproduce the reaction dynamic from a
171 biologically limited reaction in the first phase to a physically limited reaction in the second
172 phase. We argue that the system can be represented by a mobile part (advective flow which
173 transport nitrates) and an immobile part (biofilm) where nutrients (nitrate and carbon) are
174 accessible through diffusion. While the biofilm thickness is small (first phase), nutrients can
175 diffuse through all the thickness of the biofilm and the nitrate consumption is thus limited by

176 the biofilm size (Figure 5a). Then, the biofilm reaches a critical size (second phase) above
177 which only a part of its thickness is accessible by diffusion (Figure 5b). In the second phase,
178 we will show that the nitrate consumption limited by the diffusion capacity is linked to the
179 flow velocity of the mobile part. The following subsections describe the mathematical
180 formalism of the conceptual model and show its consistency with the experimental results.

181 **1. Model description**

182 The mobile / immobile model assumes a simple representation of the system with 1D
183 advection in the mobile part and 1D diffusion in the immobile part (perpendicular to the
184 mobile part). The main parameters are the thickness of the two parts, the porosity and the
185 diffusion of the immobile part and the flow velocity of the mobile part.

186 Two main kind of mobile-immobile models are classically used. The continuous ones take
187 into account the finite size of the immobile part (Lim and Aziz, 1995; Noetinger and
188 Estebenet, 2000) and the discrete ones take into account the physical parameters of the mobile
189 part (Cvetkovic et al., 2004; Neretnieks, 2002). With the latter ones, nutrients are displaced by
190 advection in the mobile part surrounded by an infinite immobile part. Nutrient diffusion in the
191 immobile part is physically restricted by the diffusion capacity x_k (characteristic distance
192 covered by diffusion) (Roubinet, 2010a)

$$193 \quad x_k = \frac{\emptyset D}{d v_k} L \quad (1)$$

194 where \emptyset and D are the immobile part porosity and diffusion, d and L are the mobile part
195 thickness and length and v_k is the flow velocity in the mobile part. The diffusion capacity x_k
196 depends on the velocity of the mobile part v_k . In fact, if the nutrients travel fast in the mobile
197 part (high flow velocity), the opportunities of diffusing inside the immobile part are small and

198 the diffusion capacity is restricted to a small area around the mobile part. Conversely, if the
199 nutrients travel slowly in the mobile part flow (small flow velocity), the opportunities of
200 diffusing are important and the diffusion capacity represents a larger proportion of the
201 immobile part.

202 The thickness of the immobile part is noted e_b and its growth is modeled by a pore volume
203 dependent function $f(V)$

$$204 \quad e_b = f(V(t)) \quad (2)$$

205 where $V(t)$ the pore volume (equal to the volume of the tube) characterizes the nitrate mass
206 brought into the system. By simplicity, the mobile part thickness, as well as the velocity, is
207 considered as constant with time. This assumption will be discussed in section V.

208 We define the effective biofilm thickness e_{eff} as the thickness that nitrates cover by diffusion
209 inside the immobile part. The nitrate are consumed only within this layer and the nitrate
210 consumption ΔC is assumed to be directly proportional to e_{eff} by

$$211 \quad \Delta C = \alpha e_{eff} \quad (3)$$

212 with α the nitrate consumption per unit of effective biofilm thickness.

213 e_{eff} increases first with time when nutrients diffuse through all the biofilm thickness (e_b) in
214 the first phase and levels up to the diffusion capacity (x_k) in the second phase. Consequently,
215 the reaction rate is controlled by the biofilm growth for short times (Figure 5a) and by the
216 diffusion capacity for long times (Figure 5b). It is expressed as

$$217 \quad \Delta C = \begin{cases} \alpha f(V(t)), & t \leq \tau_c \text{ (a)} \\ \alpha \frac{\phi D}{dv_k} L, & t \geq \tau_c \text{ (b)} \end{cases} \quad (4)$$

218 where τ_c is the characteristic time for which the biofilm thickness becomes larger than the
219 diffusion capacity ($e_b > x_k$). The transition between the two phases is related to a
220 characteristic biofilm thickness which is reached when enough nitrates have been brought to
221 the system by a given number of pore volumes.

222 By describing a nitrate consumption biologically controlled (biofilm growth) and then
223 physically controlled (flow velocity), the conceptual model reproduces the nature and
224 dynamic of the experimental control factors during the first two phases.

225 **2. Model application**

226 The model parameters are the nitrate consumption per space unit (α), the biofilm growth law
227 ($f(V(t))$) and porosity (ϕ), the diffusion coefficient (D), the tube length (L) and diameter (d)
228 and the flow velocity (v_k) (Figure 5). The parameters linked to the mobile part (flow velocity
229 and tube length and diameter) are known and fixed in the model and the parameters
230 describing the immobile part are determined from the experimental results (Figure 2). The
231 linear behavior of the nitrate consumption with time (first phase) corresponds to the biological
232 control of the reaction modeled by the equation (4a). Assuming a linear evolution of the
233 biofilm thickness ($f(V(t)) = at$), the coefficients α and a are determined from the slope of
234 the first phase. The second phase, modeled by the equation (4b), offers three threshold values
235 (one per velocity) to fit the product of the parameters α , ϕ and D . As the first regime is
236 described by one coefficient with the results and two with the model, the model has one
237 freedom level.

238 The parameters are determined by manual fitting and restricted to realistic values from the
239 literature. Figure 2 shows a good agreement between experimental data and model results for

240 the parameters given in the Table 2. The fitted biofilm porosity corresponds to the lowest
241 value of the classically known range (Lewandowski, 2000) and the model diffusion
242 coefficient is one order of magnitude lower than the diffusion coefficient of nitrates in water
243 (Li and Gregory, 1974). It means that the formation factor of the system, which relates the
244 diffusion coefficient in water and in biofilm (Horn and Morgenroth, 2006), is close to 0.2
245 (classical values being around 0.18). For the biofilm growth law, the applied linear law
246 corresponds to the exponential phase described by Chapelle (2001).

247 **V. Discussion**

248 **1. Experiment**

249 This study reveals three main regimes of the reaction behaviour: the reaction is limited by the
250 biofilm growth in the first regime and by the flow velocity in the second. The first regime is
251 thus biologically controlled whereas the second regime, corresponding to a maximum reaction
252 rate, is physically controlled. Then the final decrease of the reaction efficiency shows the
253 action of another control operating. We suppose that it could result from a biochemical
254 limitation due to reaction by-products. This third phase will be discussed elsewhere in details
255 (Boisson et al, 2010). Moreover, we observe different behaviour between static and dynamic
256 experiment. Indeed, in batch experiments, a nitrite production followed by a consumption. In
257 flow through experiment only a constant nitrite production is observable. It appears that the
258 flow dynamic may also have an impact on the microbial community or microbial activity
259 bacterial evolution. To improve our understanding of the biological system, microbial
260 community investigation is required. However the reproductibility of the experiments
261 provides a good confidence in the applicability of the results.

262 **2. Model**

263 With the presented conceptual model, the biofilm structure and its dynamic development are
264 strongly simplified and the chosen configuration is minimalist to focus on physical processes.
265 The mobile / immobile representation assumes two main assumptions. Firstly, advection in
266 the mobile part is the dominant process of the system in terms of hydraulic dynamic.
267 Secondly, there is no flow in the immobile part. The amplitude of the fluid velocities used in
268 the experiments implies the validity of the first assumption. However, the second assumption
269 (no flow in the biofilm) is more questionable, as it depends on the biofilm shape and density.
270 For a homogeneous and dense biofilm, the previous assumption is valid and the determined
271 parameters will be the “real” parameters of the domain. Conversely, for a heterogeneous and
272 sparse biofilm, the determined parameters will be the equivalent parameters of the domain
273 (equivalent to a dense biofilm).

274 System representation is also simplified by considering that the mobile part thickness and its
275 velocity are constant. We argue that the approximations done are negligible. This assumption
276 could be verified by developing a more complex model with time-dependent thickness and
277 velocity of the mobile part.

278 Finally, the definition of the reactivity rate by equation (4) assumes that the reaction time has
279 the same order of magnitude than the diffusion time.

280 **3. Application**

281 The presented experiment and the conceptual model aim at reproducing natural attenuation
282 with electron acceptors provided by the water and electron donors provided by the minerals
283 (pyrite or other minerals in case of autotrophic denitrification) immobile in the system. This

284 system may be obviously applied to porous media, but even if the link with this tube geometry
285 is not straight forward it can also be applied to fractured media.

286 For the fractured media, the heterogeneity mainly comes from the presence of fractures at
287 several scales with various geometrical and hydrodynamic properties (Davy et al., 2006).
288 Most of the homogenization methods existing for these media are not able to represent the
289 hydraulic heterogeneities of the network (Roubinet, 2010b). However, as fractures are opened
290 channels favorable to microbial development and nutrient circulation, most of the
291 denitrification process occurs in the fractures (Johnson et al., 1998). At the domain scale, even
292 if this assumption needs more studies, it assumes that the fracture network structure, with the
293 heterogeneity of geometry and hydraulic properties, has a strong impact on the denitrification
294 performance (Tompkins et al., 2001). Indeed, in the Ploemeur fractured site, a drastic
295 chemical evolution including denitrification was observed, following fluxes modification by
296 pumping (Tarits et al., 2006). To improve the understanding of denitrification process in
297 fractured media, a first required step is the study of previously cited key parameters for this
298 process at the fracture scale.

299 **VI. Conclusions**

300 We propose an innovative experimental setup linking biogeochemical reactivity to a physical
301 parameter: the flow velocity. We show that reaction limiting processes in transient conditions
302 vary with experimental time. The reaction is firstly biologically controlled (microbial growth),
303 then physically controlled (diffusion and nutrient supply) and finally biochemically controlled
304 (inhibition by by-products). Flow dynamics have also a direct impact on the population
305 development and/or activity. This highlights that experiments in dynamic conditions are of
306 prime importance as, contrary to static experiments, they exhibit the whole complexity of the

307 reaction. We also develop a conceptual model to explain the variation with time of the
308 limiting processes. The system description by equivalent parameters allows predicting the
309 time-evolution of the reaction controlling processes.

310 The current study enhances the comprehension of denitrification process in fractured media.
311 Further investigations are needed to understand all the complexity of the processes inside the
312 tubes and the reasons of the reaction stop. Other works in progress focus on the long time
313 behaviour of such systems. Information brought by dynamic experiments is essential to deal
314 with the domain scale and may have consequences on the management of the resources.

315 **Acknowledgements**

316 The French National Research Agency ANR is acknowledged for its financial funding
317 through the MOHINI project (ANR-07-VULN-008).

318

319 **Figure caption**

320 Figure 1: Experimental setup

321 Figure 2: Nitrates consumption ($[\text{NO}_3^-]_{\text{outlet}} - [\text{NO}_3^-]_{\text{inlet}}$) versus time during the experiments.
322 Points represent data and continuous lines represent the model described in section IV. The
323 dashed rectangle delimits the phase 1. Error bars indicate the mean square deviation

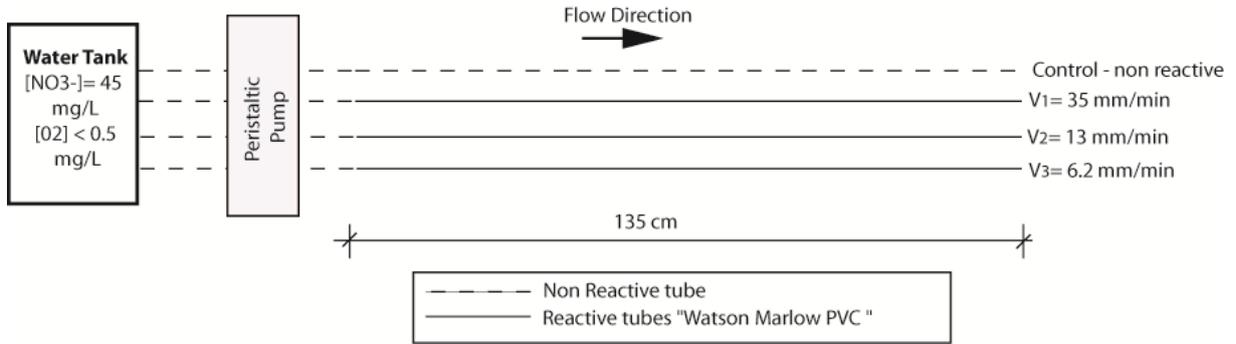
324 Figure 3: Biofilm development in the tubes a) millimeter and centimeter long clusters; b)
325 continuous biofilm

326 Figure 4: Degradation rate ($d[\text{NO}_3^-] \cdot \text{velocity}$) versus number of pore volumes

327 Figure 5: Modeling of the experiment in tubes. The cylinders represent portions of the tubes
328 and the white and grey areas correspond to the immobile part (biofilm) and the mobile part
329 (advective flow), respectively. e_{eff} is the effective biofilm thickness, e_b is the real biofilm
330 thickness and x_k is the diffusion capacity associated to the flow velocity v_k . For short and long
331 times, e_{eff} is equal to e_b and x_k respectively. For long times, the diffusion capacity and thus the
332 effective biofilm thickness increase by decreasing the velocity ($x_1 < x_2$ for $v_1 > v_2$).

333

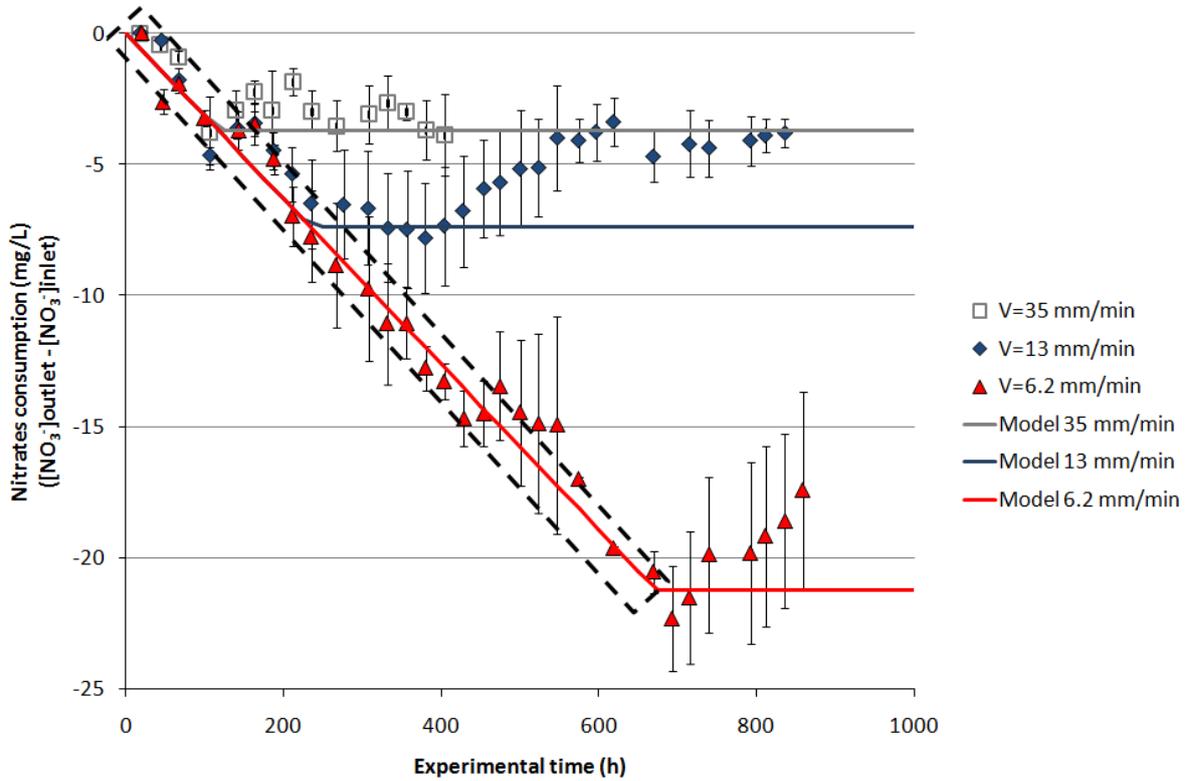
334 **Figures**



335

336

Figure 1: Experimental setup

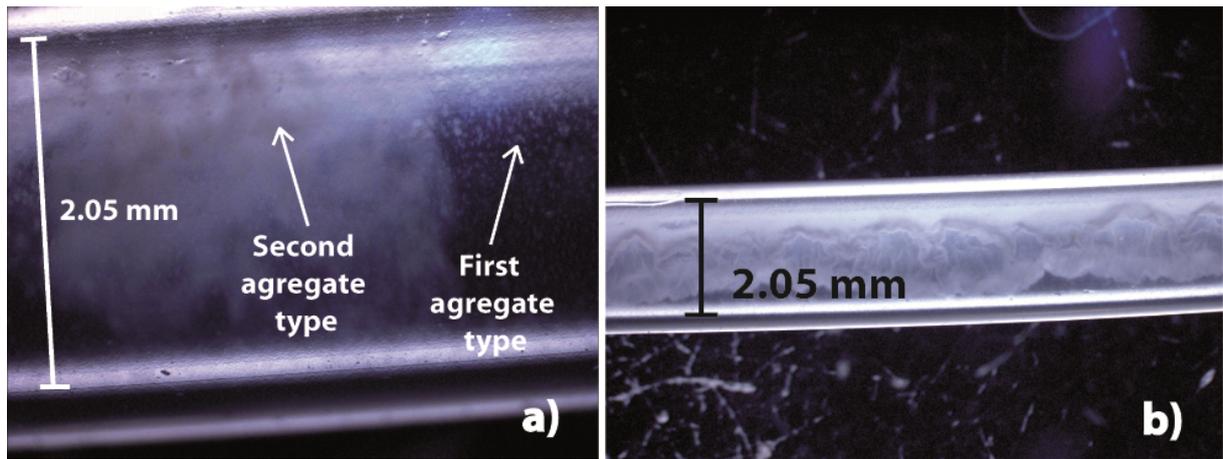


337

338 **Figure 2: Nitrates consumption ($[NO_3^-]_{outlet} - [NO_3^-]_{inlet}$) versus time during the experiments. Points represent data and**

339 **continuous lines represent the model described in section IV. The dashed rectangle delimits the phase 1. Error bars**

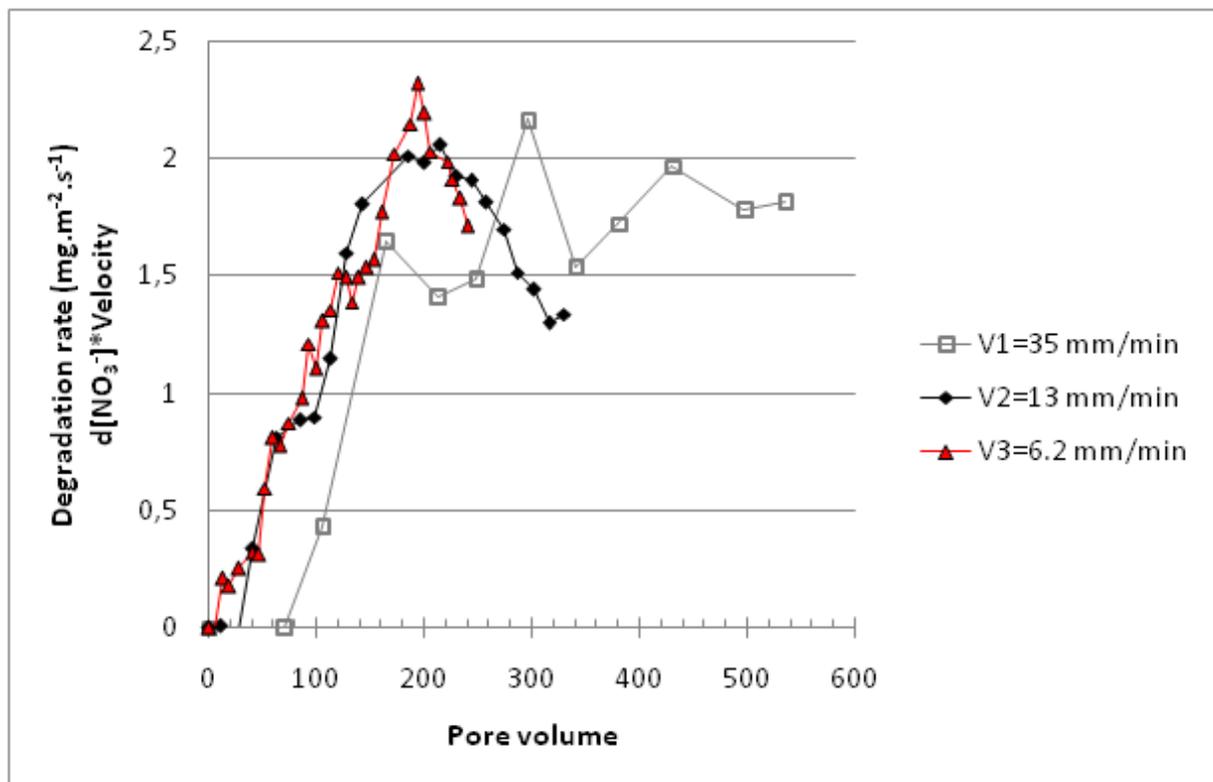
340 **indicate the mean square deviation**



341

342

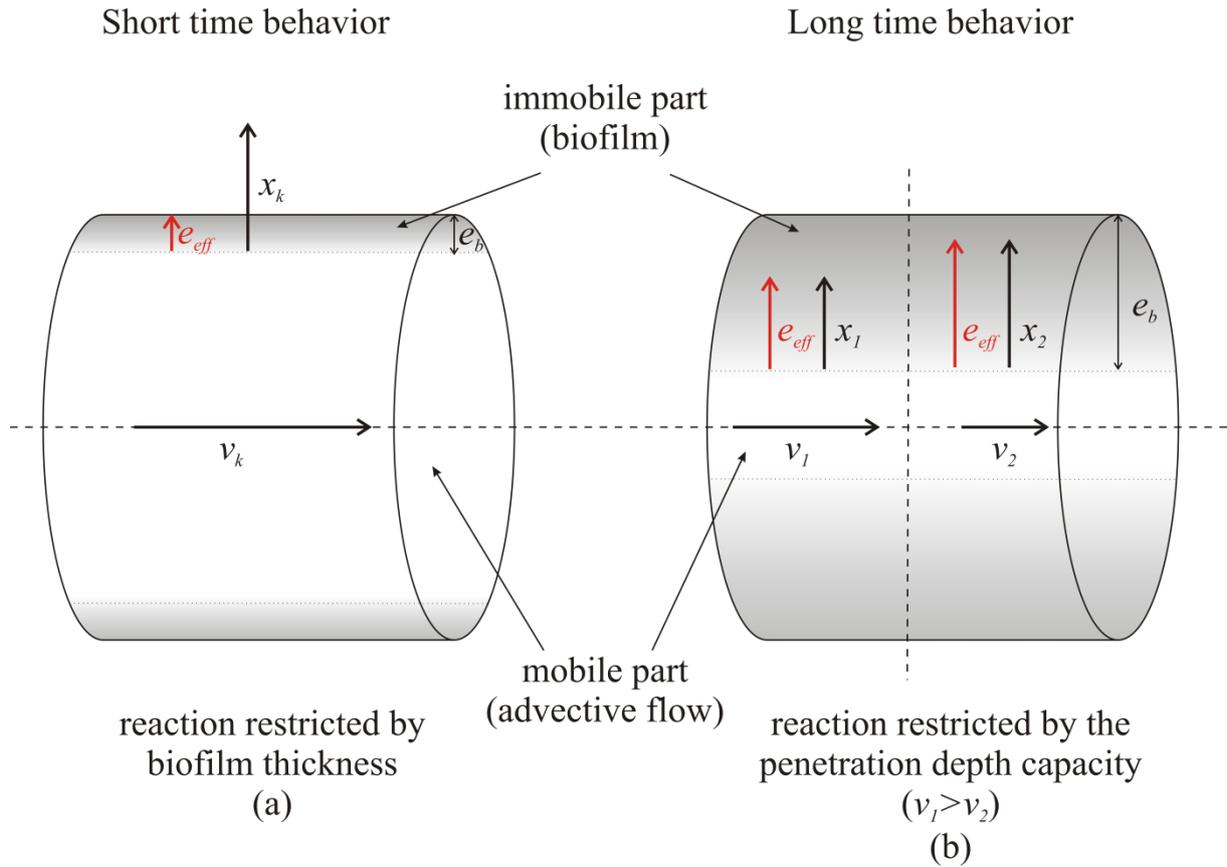
Figure 3: Biofilm development in the tubes a) millimeter and centimeter long clusters; b) continuous biofilm



343

344

Figure 4: Degradation rate ($d[\text{NO}_3^-] \cdot \text{velocity}$) versus number of pore volumes



345

346

347

348

349

350

351

Figure 5: Modeling of the experiment in tubes. The cylinders represent portions of the tubes and the white and grey areas correspond to the immobile part (biofilm) and the mobile part (advective flow), respectively. e_{eff} is the effective biofilm thickness, e_b is the real biofilm thickness and x_k is the diffusion capacity associated to the flow velocity v_k . For short and long times, e_{eff} is equal to e_b and x_k respectively. For long times, the diffusion capacity and thus the effective biofilm thickness increase by decreasing the velocity ($x_1 < x_2$ for $v_1 > v_2$).

352 **Tables**

353

Velocity (mm.min⁻¹)	Maximum reaction rate (mg.m⁻².s⁻¹)
6.2	2.3
13	2.05
35	1.78

354

Table 1: Maximum reaction rate

Parameter	Value	Unit
Nitrate consumption per space unit (α)	2 10⁴	
Biofilm growth law $f(V(t))$	1.58 10⁻⁶ t	
Biofilm porosity (ϕ)	60	%
Diffusion coefficient (D)	2,8 10⁻¹⁰	m²/s
Tube length (L)	1,35	m
Tube diameter (d)	0,00205	m

355

Table 2 : Parameter values of the model. Parameters in regular case are fixed parameters and parameters in bold case

356

are fitted parameters.

357

358 **References**

- 359 Bekins, B., 2000. Preface - Groundwater and microbial processes. *Hydrogeology Journal*,
360 8(1): 2-3.

- 378 Hiscock, K.M., Lloyd, J.W. and Lerner, D.N., 1991. Review of natural and artificial
379 denitrification of groundwater. *Water Research*, 25(9): 1099-1111.
- 380 Horn, H. and Morgenroth, E., 2006. Transport of oxygen, sodium chloride, and sodium nitrate
381 in biofilms. *Chemical Engineering Science*, 61(5): 1347-1356.
- 382 Johnson, A.C., Hughes, C.D., Williams, R.J. and Chilton, P.J., 1998. Potential for aerobic
383 isoproturon biodegradation and sorption in the unsaturated and saturated zones of a chalk
384 aquifer. *Journal of Contaminant Hydrology*, 30(3-4): 281-297.
- 385 Kornaros, M. and Lyberatos, G., 1997. Kinetics of aerobic growth of a denitrifying bacterium,
386 *Pseudomonas denitrificans*, in the presence of nitrates and/or nitrites. *Water Research*, 31(3):
387 479-488.
- 388 Korom, S.F., 1992. Natural denitrification in the saturated zone - A review. *Water Resources*
389 *Research*, 28(6): 1657-1668.
- 390 Lau, Y.L. and Liu, D., 1993. Effect of flow-rate on biofilm accumulation in open channels.
391 *Water Research*, 27(3): 355-360.
- 392 Lewandowski, Z., 2000. Notes on biofilm porosity. *Water Research*, 34(9): 2620-2624.
- 393 Lewandowski, Z., Beyenal, H., Myers, J. and Stookey, D., 2007. The effect of detachment on
394 biofilm structure and activity: the oscillating pattern of biofilm accumulation. *Water Science*
395 *and Technology*, 55(8-9): 429-436.
- 396 Lewandowski, Z., Beyenal, H. and Stookey, D., 2004. Reproducibility of biofilm processes
397 and the meaning of steady state in biofilm reactors. *Water Science and Technology*, 49(11-
398 12): 359-364.

- 399 Li, Y.H. and Gregory, S., 1974. Diffusion of ions in sea-water and in deep-sea sediments.
400 *Geochimica Et Cosmochimica Acta*, 38(5): 703-714.
- 401 Lim, K.T. and Aziz, K., 1995. Matrix-fracture transfer shape factors for dual-porosity
402 simulators. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 13(3-4): 169-178.
- 403 Marazioti, C., Kornaros, M. and Lyberatos, G., 2003. Kinetic modeling of a mixed culture of
404 *Pseudomonas denitrificans* and *Bacillus subtilis* under aerobic and anoxic operating
405 conditions. *Water Research*, 37(6): 1239-1251.
- 406 Mohee, R., Unmar, G.D., Mudhoo, A. and Khadoo, P., 2008. Biodegradability of
407 biodegradable/degradable plastic materials under aerobic and anaerobic conditions. *Waste
408 Management*, 28(9): 1624-1629.
- 409 Neretnieks, I., 2002. A stochastic multi-channel model for solute transport - analysis of tracer
410 tests in fractured rock. *Journal of Contaminant Hydrology*, 55(3-4): 175-211.
- 411 Noetinger, B. and Estebenet, T., 2000. Up-scaling of double porosity fractured media using
412 continuous-time random walks methods. *Transport in Porous Media*, 39(3): 315-337.
- 413 Roubinet, D., H.-H. Liu, J.-R. de Dreuzy, 2010a. A new particle-tracking approach to
414 simulating transport in heterogeneous fractured porous media. *Water Resources Research*, in
415 revision.
- 416 Roubinet, D., J.R. de Dreuzy, and P. Davy, 2010b. Connectivity-consistent mapping method
417 for 2-D discrete fracture networks. *Water Resour. Res.*, in press.
- 418 Shah, A.A., Hasan, F., Hameed, A. and Ahmed, S., 2008. Biological degradation of plastics:
419 A comprehensive review. *Biotechnology Advances*, 26(3): 246-265.

- 420 Sinke, A.J.C., Dury, O. and Zobrist, J., 1998. Effects of a fluctuating water table: column
421 study on redox dynamics and fate of some organic pollutants. *Journal of Contaminant*
422 *Hydrology*, 33(1-2): 231-246.
- 423 Spalding, R.F. and Exner, M.E., 1993. Occurrence of nitrates in groundwater - A review.
424 *Journal of Environmental Quality*, 22(3): 392-402.
- 425 Stoodley, P., Debeer, D. and Lewandowski, Z., 1994. Liquid flow in biofilm systems. *Applied*
426 *and Environmental Microbiology*, 60(8): 2711-2716.
- 427 Sturman, P.J., Stewart, P.S., Cunningham, A.B., Bouwer, E.J. and Wolfram, J.H., 1995.
428 Engineering scale-up of in-situ bioremediation processes - A review. *Journal of Contaminant*
429 *Hydrology*, 19(3): 171-203.
- 430 Tarits, C. et al., 2006. Oxido-reduction sequence related to flux variations of groundwater
431 from a fractured basement aquifer (Ploemeur area, France). *Applied Geochemistry*, 21(1): 29-
432 47.
- 433 Thullner, M., Zeyer, J. and Kinzelbach, W., 2002. Influence of microbial growth on hydraulic
434 properties of pore networks. *Transport in Porous Media*, 49(1): 99-122.
- 435 Tompkins, J.A., Smith, S.R., Cartmell, E. and Wheater, H.S., 2001. In-situ bioremediation is a
436 viable option for denitrification of Chalk groundwaters. *Quarterly Journal of Engineering*
437 *Geology and Hydrogeology*, 34: 111-125.
- 438 Vongunten, U. and Zobrist, J., 1993. Biogeochemical changes in groundwater-infiltration
439 systems - Column studies. *Geochimica Et Cosmochimica Acta*, 57(16): 3895-3906.

6. Discussion

6.1. Le modèle double-porosité discret versus les modèles continus classiques

Les modèles continus classiques basés sur le concept de double-porosité sont les plus largement utilisés de par leur simplicité de représentation et leur capacité à intégrer les informations acquises par les données de terrain. Cependant, l'homogénéisation du réseau de fractures qui les caractérise peut être une étape critique pour la représentation des milieux poreux fracturés. La présence de fractures sur une large gamme d'échelles d'observation et l'hétérogénéité de leurs propriétés géométriques et hydrauliques remettent en question l'existence d'un volume élémentaire représentatif du milieu fracturé. Même lorsque ce volume représentatif existe, sa taille n'est généralement pas adaptée à la discrétisation du milieu par blocs. De plus, l'étape d'homogénéisation du réseau de fractures implique la perte des informations relatives à la géométrie et à la dynamique hydraulique des fractures. Ces dernières propriétés étant des paramètres clés des échanges entre les fractures et la matrice, leur homogénéisation remet en question la qualité de représentation de l'ampleur et de la dynamique des échanges.

Les modèles double-porosité discrets sont plus adaptés à la problématique des milieux poreux fracturés en combinant une représentation discrète du réseau de fractures au concept de double milieu. Les informations clés relatives au réseau de fractures sont conservées et la représentation des échanges entre les fractures et la matrice garde les avantages du concept de double milieu. Ces modèles sont alors capables de conserver l'hétérogénéité du réseau de fractures et de prendre en compte l'effet des propriétés physiques et géométriques des blocs matriciels sur les échanges. Ils considèrent généralement que la taille et la forme du bloc sont les principaux paramètres limitant la capacité d'échange.

Cependant, cette dernière considération correspond à un des régimes possibles des échanges. Nous avons montré dans ce manuscrit que la capacité d'échange est aussi fortement influencée par les propriétés de la fracture avec une dépendance au nombre de Péclet reliant l'advection dans la fracture à la diffusion dans la matrice. Cette dépendance est essentielle pour reproduire et comprendre le comportement des sites et doit être intégrée dans une nouvelle génération de modèles. La valeur du coefficient d'échange varie alors en fonction de la proportion de la zone matricielle utilisée et est dépendant des propriétés géométriques et physiques de la fracture et de la matrice.

6.2. Problème inverse

6.2.1. Signature de l'échange fracture-matrice

Le coefficient d'échange étant dépendant de divers paramètres géométriques et physiques des structures géologiques, plusieurs types de sollicitations du milieu doivent être utilisés pour le caractériser. La mise en évidence de la signature de l'échange dans de nouveaux types de tests de réaction du milieu permettrait d'améliorer la détermination du coefficient d'échange pour un site donné. Il serait particulièrement intéressant d'étudier quel est l'utilité des informations apportées par des essais push-pull sur un site à comparer des informations apportées par les classiques tests hydrauliques et/ou tests de traçage. Les essais push-pull consistent en l'injection et au pompage sur un unique puits permettant une meilleure maîtrise du domaine investigué et de l'origine des flux et/ou solutés récupérés lors du pompage. Des informations complémentaires sur les échanges peuvent aussi être obtenues par l'analyse de gaz émis par la roche. Pour exemple, le radon étant un gaz émis par la roche, sa concentration est caractéristique du rapport entre la surface de contact fracture-matrice et le volume de la matrice. Il s'agit alors d'évaluer l'intérêt des informations apporté par ces nouveaux types de tests et de vérifier que ces informations sont complémentaires de celles fournies par les tests classiques.

6.2.2. Discussion sur les structures identifiées

Lors de la caractérisation d'un site au comportement double-porosité, les paramètres identifiés sont relatifs aux structures impliquant des temps de réaction du milieu différents. Globalement, les paramètres obtenus correspondent à une description du milieu initial par deux structures, l'une fortement perméable et l'autre faiblement perméable. Cependant, la composition de ces structures dépend de la géologie du site, des tests de caractérisation appliqués et du concept de modélisation qui leur sont liés. Les fractures fortement contributives seront clairement prises en compte dans la structure fortement perméable et la roche saine dans la structure faiblement perméable. Par contre, pour des éléments tels que les fractures connectées au réseau mais peu contributives, les bras morts ou les zones d'altération de la roche, il est plus difficile de savoir s'ils seront caractérisés par les temps courts ou les temps longs de réaction. Le choix d'une compréhension du site en considérant que la porosité secondaire est composée seulement des fractures dominantes permet d'intégrer les informations obtenues sur le site par observations directes. Cependant, la porosité primaire contenant alors toutes les autres structures du milieu, la compréhension de la réaction de la

structure faiblement perméable est plus difficile car elle est représentative d'un plus grand nombre de processus physiques. Différents choix de conception du milieu pouvant aboutir à une bonne compréhension du site, la condition principale est de conserver une cohérence d'interprétation lors de l'utilisation de plusieurs types de données pour caractériser le site et ses réactions ainsi qu'une cohérence entre la caractérisation du milieu et le modèle conceptuel choisi.

6.3. Perspectives

Au cours de cette thèse, plusieurs méthodes analytiques et numériques ont été mises en œuvre pour évaluer les impacts des structures géologiques sur les échanges de l'échelle de la fracture à l'échelle du réseau de fractures.

La première méthode présentée permet d'évaluer les effets des propriétés physiques de la matrice sur les échanges fracture-matrice par le développement d'une solution analytique considérant la diffusion 2D dans la matrice. Une première exploitation consistera à évaluer pour quelle gamme de paramètres la diffusion longitudinale dans la matrice impacte les échanges entre une fracture unique et la matrice infinie environnante. Si cette étude met en évidence que l'hypothèse de diffusion 1D dans la matrice n'est pas valide pour des études de sites qui l'ont supposée, la diffusion longitudinale dans la matrice pourra être identifiée comme l'un des processus contribuant aux échanges et donc à la surestimation du coefficient de diffusion effectif. Une seconde exploitation, nécessitant le développement d'une nouvelle solution analytique ou l'intégration de la solution précédente dans un modèle hybride, consistera à définir l'impact des propriétés physiques de la matrice à l'échelle du réseau de fractures. La diffusion 2D dans la matrice laissant plus de possibilités d'atteindre une fracture voisine par diffusion dans le bloc matriciel, la prise en compte de ce processus risque de révéler d'autant plus l'effet de l'organisation du réseau de fractures sur les échanges et donc sur le comportement du milieu.

La seconde méthode d'évaluation de l'impact des structures a révélé la dépendance des échanges aux propriétés géométriques et physiques des fractures et de la matrice et à l'organisation du réseau de fractures. Une exploitation plus approfondie est nécessaire pour mettre en évidence les différents régimes d'influence de ces paramètres en identifiant les gammes de valeurs impliquant la dominance de l'influence d'un des paramètres et les gammes de valeurs impliquant un effet combiné des paramètres. La détermination de ces régimes pour plusieurs types de réseaux de fractures caractéristiques permettra, pour une étude de site

donnée, d'évaluer quelles sont les structures clés pour l'échange et de choisir un concept de modélisation adapté. Une étude plus approfondie est nécessaire pour identifier les types de sollicitations et les réactions associés pouvant être révélateurs des structures clés pour le comportement du site.

A partir du constat de dépendance précédent, une méthode numérique d'évaluation du temps de diffusion moyen en fonction des paramètres clés cités précédemment a été mise en œuvre et des résultats préliminaires d'application à des réseaux simples ont été obtenus. En déterminant la relation entre le temps de diffusion moyen et le coefficient d'échange, les effets mis en évidence pourront être intégrés au coefficient d'échange. L'étape suivante consistera à mettre en évidence un comportement type du coefficient d'échange suivant les caractéristiques du milieu et à identifier des lois descriptives de ce coefficient pour des réseaux complexes. Il faudra ensuite définir comment les paramètres de ces lois comportementales du coefficient d'échange pourront être identifiés à partir des informations accessibles pour un site d'étude.

Enfin, l'application des résultats obtenus à la compréhension du processus de dénitrification montre que les concepts mis en évidence ne se limitent pas à la problématique des échanges entre les fractures et la matrice. La dépendance entre les propriétés des structures et leurs interactions mis en évidence dans le cas particulier des milieux poreux fracturés peut être pertinente pour de nombreux systèmes de caractéristiques semblables.

7. Conclusion

Le travail de recherche présenté dans ce manuscrit vise à la mise en évidence des effets des structures caractéristiques des milieux poreux fracturés sur les échanges entre les fractures et la matrice. Plus précisément, l'objectif principal est d'identifier les propriétés géométriques et physiques des structures géologiques impactant les échanges de fluides et de solutés entre les zones caractérisées par des temps de réponse différents. Les méthodes développées durant cette thèse consistent en une solution analytique pour évaluer les effets des propriétés physiques de la matrice à l'échelle du bloc matriciel et en des concepts de modélisation numérique pour évaluer les effets de l'organisation du réseau de fractures, de la distribution des blocs matriciels et des propriétés géométriques et physiques des fractures sur les échanges de fluides et de solutés. L'exploitation d'une partie de ces méthodes a mis en évidence que les transferts de la fracture à la matrice sont influencés par les propriétés de la fracture, les propriétés de la matrice et l'organisation du réseau de fractures. Plusieurs régimes des échanges ont été identifiés avec la dominance de l'effet d'une des structures dans les cas extrêmes et une combinaison des effets dans les cas intermédiaires. Finalement, un modèle double-porosité discret est proposé avec pour innovation principale l'intégration des effets précédemment mis en évidence dans l'expression du coefficient d'échange.

L'application des résultats obtenus à la problématique de dénitrification montre que les concepts développés sont généralisables à des études autres que les écoulements de fluides et le transport de solutés à condition que les structures soient assimilables aux systèmes fractures-matrice de par leurs structures et leur dynamique de comportement.

Les perspectives principales de ce travail consistent en l'application des méthodes développées sur des réseaux hétérogènes et en la détermination de lois de comportement du coefficient d'échange en fonction du type de réseaux. Cette étape est essentielle pour corrélérer les réactions du milieu à la nouvelle définition du coefficient d'échange présenté afin de le caractériser sur le milieu naturel.

8. Annexes

8.1. Evaluation de l'effet des propriétés de la fracture sur la diffusion dans la matrice

Evaluation de l'effet des propriétés géométriques et hydrauliques de la fracture sur les échanges

Cette annexe est dédiée à déterminer l'expression de la profondeur de pénétration dans la matrice par diffusion en fonction des paramètres du milieu pour une fracture unique avec une matrice infinie. La solution analytique de *Tang et al.* [1981] décrit l'évolution des concentrations pour un système fracture unique et matrice infinie. La fracture est représentée le long de la direction z avec une ouverture $2b$ et une vitesse de fluide u et la matrice est définie par le coefficient de diffusion D et la porosité ϕ . Les solutés se déplacent par advection dans la fracture et par diffusion 1D (perpendiculairement à la fracture) dans la matrice. Pour une injection continue C_0 à la position $z=0$ uniformément répartie sur l'épaisseur de la fracture, les concentrations $C_f(z, t)$ dans la fracture et $C_m(x, t)$ dans la matrice s'expriment comme

$$C_f(z, t) = C_0 \operatorname{erfc} \left(\frac{\phi \sqrt{D} \tau}{2b \sqrt{(t-\tau)}} \right), \quad 0 \leq z \leq +\infty \quad (21)$$

$$C_m(x, t) = C_0 \operatorname{erfc} \left(\frac{x-b+B\sqrt{D}}{2\sqrt{D(t-\tau)}} \right), \quad b \leq x \leq +\infty \quad (22)$$

avec τ le temps d'advection dans la fracture ($\tau = \frac{z}{u}$) et $B = \frac{\phi \sqrt{D}}{b} \tau$. On peut en déduire $p_f(z, t)$ la probabilité de présence des solutés dans la fracture

$$p_f(z, t) = \frac{\partial_t C_f(z, t)}{C_0} = \frac{H(t-\tau)B}{2\sqrt{\pi}(t-\tau)^{3/2}} \exp \left[-\frac{B^2}{4(t-\tau)} \right] \quad (23)$$

et $p_m(x, t)$ la probabilité de présence dans la matrice

$$p_m(x, t) = \frac{\partial_t C_m(x, t)}{C_0} = \frac{x-b+B\sqrt{D}}{2\sqrt{D}(t-\tau)^{3/2}} \exp \left[-\left(\frac{x-b+B\sqrt{D}}{2\sqrt{D}(t-\tau)} \right)^2 \right]. \quad (24)$$

Nous définissons $\langle x^2 \rangle$ la moyenne du carré de la position dans la matrice tel que

$$\langle x^2 \rangle = \frac{I_1}{I_2} \quad (25)$$

avec $I_1 = \int_b^\infty x^2 p_m(x, t) dx$ et $I_2 = \int_b^\infty p_m(x, t) dx$.

Evaluation de I_1

En posant $u = \frac{x-b+B\sqrt{D}}{2\sqrt{D(t-\tau)}}$, I_1 s'exprime comme

$$I_1 = \int_b^{\infty} x^2 p_m(x, t) dx = \frac{2\sqrt{D}}{\sqrt{\pi(t-\tau)}} \int_{\alpha}^{\infty} u [2u\sqrt{D(t-\tau)} + b - B\sqrt{D}]^2 \exp(-u^2) du$$

avec $\alpha = \frac{B}{2\sqrt{(t-\tau)}}$.

Sachant que $\int (ax^3 + bx^2 + cx) e^{-x^2} dx = \frac{\sqrt{\pi}b}{4} \operatorname{erfc}(x) - \frac{e^{-x^2}}{2} (ax^2 + a + bx + c)$,

$$I_1 = 2D(b - B\sqrt{D}) \operatorname{erfc}(\alpha) + \left[\frac{4D^{3/2}}{\sqrt{\pi}} \sqrt{(t-\tau)} + \frac{\sqrt{D}b^2}{\sqrt{\pi(t-\tau)}} \right] e^{-\alpha^2}. \quad (26)$$

Evaluation de I_2

Comme précédemment, en posant $u = \frac{x-b+B\sqrt{D}}{2\sqrt{D(t-\tau)}}$ et $\alpha = \frac{B}{2\sqrt{(t-\tau)}}$, on obtient

$$I_2 = \int_b^{\infty} p_m(x, t) dx = \frac{2\sqrt{D}}{\sqrt{\pi(t-\tau)}} \int_{\alpha}^{\infty} u \exp(-u^2) du$$

et donc

$$I_2 = \frac{\sqrt{D}}{\sqrt{\pi(t-\tau)}} e^{-\alpha^2} \quad (27)$$

Evaluation de $\langle x^2 \rangle$

Nous notons t_{diff} le temps de diffusion nécessaire pour atteindre la position x ou encore pour parcourir la distance $x-b$, notée x' . Avec les notations précédentes, à savoir t le temps total et τ le temps d'advection dans la fracture, le temps de diffusion est défini comme $t_{diff} = t - \tau$.

En utilisant les expressions (25), (26) et (27), la moyenne du carré de la distance parcourue dans la matrice est

$$\langle x'^2 \rangle = 4D(t - \tau) + 2\sqrt{\pi D(t - \tau)}(b - B\sqrt{D})e^{\alpha^2} \operatorname{erfc}(\alpha).$$

En considérant l'approximation suivante de la fonction erfc

$$\operatorname{erfc}(\alpha) \approx \begin{cases} 1 - \frac{2}{\sqrt{\pi}} \alpha e^{-\alpha^2}, & \alpha \ll 1 \\ \frac{e^{-\alpha^2}}{\sqrt{\pi}\alpha}, & \alpha \gg 1 \end{cases}$$

on peut approximer $\langle x'^2 \rangle$ comme

$$\langle x'^2 \rangle \approx \begin{cases} 4Dt_{diff} + 2\sqrt{\pi D}(b - B\sqrt{D})\sqrt{t_{diff}} \left[\exp\left(\frac{B^2}{4t_{diff}}\right) - \frac{B}{\sqrt{\pi t_{diff}}} \right], & \frac{B}{2\sqrt{t_{diff}}} \ll 1 \\ \frac{4b\sqrt{D}}{B} t_{diff}, & \frac{B}{2\sqrt{t_{diff}}} \gg 1 \end{cases}$$

En approximant $\exp\left(\frac{B^2}{4t_{diff}}\right)$ par 1 pour $\frac{B}{2\sqrt{t_{diff}}} \ll 1$ et en négligeant le terme $\frac{B}{\sqrt{\pi t_{diff}}}$

$$\langle x'^2 \rangle \approx \begin{cases} 4Dt_{diff} + 2\sqrt{\pi D t_{diff}} \left(b - \frac{\phi D \tau}{b} \right), & \frac{\phi \sqrt{D} \tau}{2b\sqrt{t_{diff}}} \ll 1 \\ \frac{4b^2}{\phi \tau} t_{diff}, & \frac{\phi \sqrt{D} \tau}{2b\sqrt{t_{diff}}} \gg 1 \end{cases}$$

En ne considérant que les temps longs de diffusion ($\sqrt{t_{diff}} \gg \frac{\phi \sqrt{D} \tau}{2b}$) et en supposant que b est négligeable devant le terme $\frac{\phi D \tau}{b}$

$$\langle x'^2 \rangle \approx 4Dt_{diff} \left(1 - \frac{\sqrt{\pi} \phi \sqrt{D}}{2} \frac{z}{ub \sqrt{t_{diff}}} \right). \quad (28)$$

8.2. Une méthode de discrétisation des milieux poreux fracturés par des éléments 1D

Une méthode pour l'évaluation des échanges de fluides entre les fractures et la matrice

La discrétisation d'un milieu poreux fracturé par des éléments 1D permet de déterminer explicitement l'échange de fluides entre les fractures et la matrice pour un coût numérique faible à comparer des discrétisations par des maillages composés d'éléments 2D. La méthode consiste à représenter respectivement les fractures et la matrice par des "éléments fractures" et des "éléments matrice" définis par leur transmissivité, leur ouverture et leur coefficient d'emménagement. Plus précisément, la matrice est discrétisée par une grille d'éléments 1D aux propriétés équivalentes au milieu poreux initial. Dans la présente annexe, nous établissons l'équivalence de représentation du milieu poreux entre la discrétisation classique par des mailles 2D et la nouvelle discrétisation par des éléments 1D pour une résolution numérique par la méthode des différences finies. Cette démonstration est établie à titre d'exemples et la discrétisation de la matrice par des éléments 1D pourrait être appliquée à d'autres configurations et méthodes de résolution.

L'équation de l'écoulement dans une nappe captive s'exprime comme

$$\operatorname{div}(\bar{K}\nabla h) = S_s \partial_t h + q \quad (29)$$

avec h la charge hydraulique (m), \bar{K} le tenseur de perméabilités du fluide dans le milieu (m/s), S_s le coefficient d'emménagement spécifique (m^{-1}) et q le débit source (positif pour un prélèvement et négatif pour un ajout de flux, m^2/s). La résolution numérique de cette équation nécessite la définition d'une discrétisation de l'inconnue à déterminer et des propriétés caractérisant le milieu. Ce choix de représentation du milieu est un point clé de la modélisation car il est caractéristique d'une certaine conception du milieu et il impacte fortement sur la qualité et l'efficacité de la résolution.

La Figure 34b illustre le maillage utilisé pour la discrétisation en éléments 1D par comparaison à celui utilisé pour la classique discrétisation en éléments 2D (Figure 34a). Dans les deux cas, les points noirs représentent la position des inconnues (charge hydraulique h). Les propriétés du milieu sont décrites par une perméabilité (K_p) et un coefficient d'emménagement (S_p) par maille 2D (carré noir) de taille Δx sur Δy (Figure 34a) ou par une transmissivité (T_f) et un coefficient d'emménagement (S_f) par maille 1D (segment rouge)

d'épaisseur o_f (Figure 34b). Les mailles 1D sont régulièrement espacées par les distances Δx et Δy .

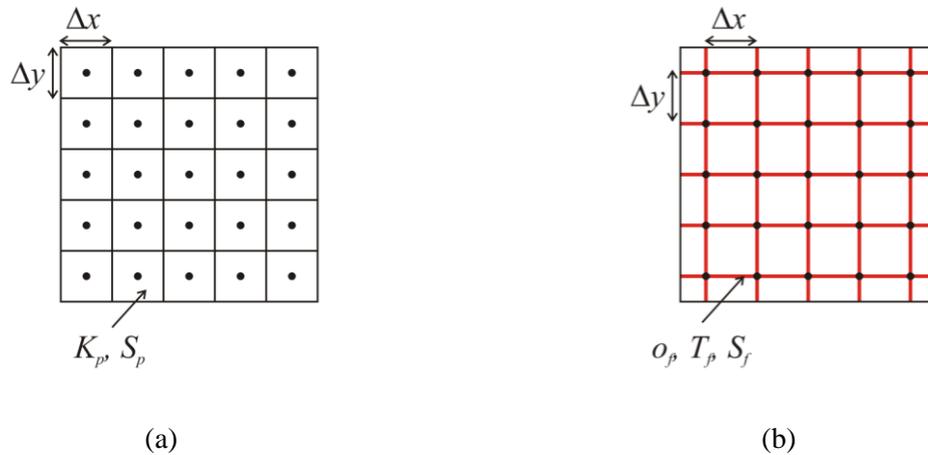


Figure 34 – Maillages de la zone matricielle.

La discrétisation de la matrice peut être faite par (a) des éléments 2D ou (b) des éléments 1D. Les mailles 2D sont caractérisées par leur taille (Δx et Δy), leur perméabilité (K_p) et leur coefficient d'emmagasinement (S_p) et les éléments 1D sont caractérisés par leur ouverture (o_p), leur transmissivité (T_p) et leur coefficient d'emmagasinement (S_f) et espacées par les distances Δx et Δy verticalement et horizontalement respectivement.

Le principe des différences finies intégrées consiste à mailler le domaine en polygones de même dimension que le milieu étudié et à vérifier l'intégrale de l'équation (29) sur chacun de ces polygones. Classiquement, les polygones d'intégration correspondent aux mailles de discrétisation des propriétés des milieux mais des définitions différentes peuvent être choisies pour ces deux types de maillages. Dans la Figure 35, le polygone d'intégration est représenté par un carré bleu délimité par les points A, B, A' et B' autour de la $i^{\text{ème}}$ inconnue. La Figure 35a représente le cas classique où le maillage des propriétés du milieu (carrés noirs) se superpose au maillage d'intégration (carré bleu) alors que la Figure 35b montre le cas où le maillage des propriétés du milieu par des éléments 1D (segments rouges) est différent du maillage d'intégration (carré bleu).

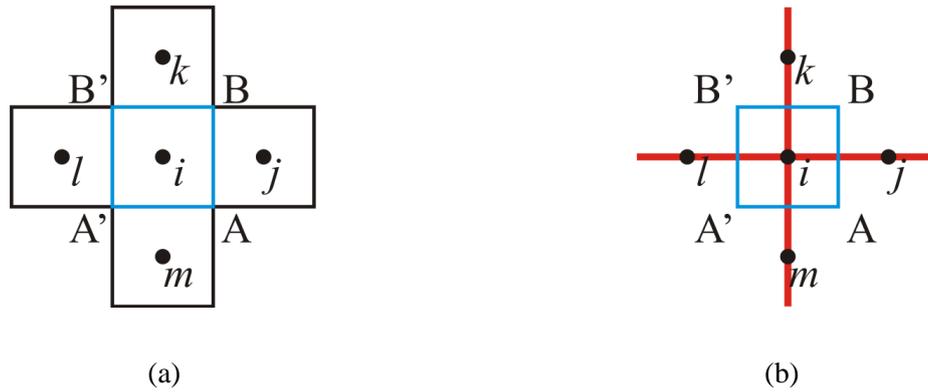


Figure 35 – Définition du domaine d'intégration pour la méthode des différences finies intégrées. L'intégration est faite autour de la $i^{\text{ème}}$ inconnue et le domaine d'intégration est représenté par un carré bleu défini par les points A, B, A' et B'. Ce domaine contient (a) la maille de discrétisation contenant l'inconnu i pour une discrétisation du milieu par des mailles 2D et (b) les demi-éléments de discrétisation reliant le point i à ses voisins (les points j, k, l et m) pour une discrétisation du milieu par des éléments 1D.

En intégrant le terme de droite de l'équation (29) sur le carré $ABA'B'$ (noté D_i) et en considérant un milieu anisotrope avec x et y les directions principales d'anisotropie, on obtient la relation suivante

$$\begin{aligned} \int_{D_i} \text{div}(\bar{K}\nabla h) dD_i &= \int_{\Gamma_i} (K_x \partial_x h n_x + K_y \partial_y h n_y) d\Gamma_i \\ &= \int_{AB} K_x \partial_x h dy + \int_{BB'} K_y \partial_y h dx + \int_{B'A'} K_x \partial_x h dy + \int_{A'A} K_y \partial_y h dx \end{aligned}$$

avec Γ_i le contour du polygone D_i et n_x et n_y les normales extérieures à Γ_i dans les directions x et y respectivement. La discrétisation des dérivées par la méthode des différences finies est explicitée par l'équation suivante pour le premier terme de la somme précédemment obtenue avec H_i la $i^{\text{ème}}$ valeur discrétisée de la charge h

$$\int_{AB} K_x \partial_x h dy = \int_{AB} K_x \frac{H_j - H_i}{\Delta y} dy = \frac{H_j - H_i}{\Delta y} K_e.$$

K_e est un terme de perméabilité équivalente dont la définition dépend de la discrétisation choisie pour représenter les propriétés du milieu et est défini tel que

$$K_e = \int_{AB} K_x dy = \begin{cases} K_{ij} \Delta y, & \text{maille 2D} \\ T_{ij}, & \text{élément 1D} \end{cases}$$

avec K_{ij} la perméabilité moyenne entre les mailles i et j (évaluée généralement par la moyenne harmonique des perméabilités des deux mailles) et T_{ij} la transmissivité de l'élément 1D reliant les nœuds i et j .

L'intégration de la partie droite de l'équation (29) et la discrétisation de la charge sur le $i^{\text{ème}}$ volume permettent de déterminer les équivalences de représentation pour le coefficient d'emmagasinement

$$\int_{D_i} S_s \partial_t h \, dD_i = \int_{\Delta y} \int_{\Delta x} S_s \partial_t h \, dx \, dy = \partial_t H_i \int_{\Delta y} \int_{\Delta x} S_s \, dx \, dy = \partial_t H_i S_e$$

avec S_e le coefficient d'emmagasinement équivalent, dépendant de la représentation du milieu choisie, et exprimé comme

$$S_e = \begin{cases} S_i \Delta x \Delta y, & \text{maille 2D} \\ \frac{\Delta x}{2} (S_{ij} o_{ij} + S_{il} o_{il}) + \frac{\Delta y}{2} (S_{ik} o_{ik} + S_{im} o_{im}), & \text{élément 1D} \end{cases}$$

où S_i est le coefficient d'emmagasinement de la $i^{\text{ème}}$ maille 2D de taille Δx sur Δy et S_{ij} est le coefficient d'emmagasinement de l'élément 1D reliant les points i et j d'ouverture o_{ij} avec un espacement vertical et horizontal Δx et Δy respectivement entre les éléments.

En considérant un milieu avec un coefficient d'emmagasinement spatialement homogène, l'équivalence entre une discrétisation par mailles 2D et éléments 1D correspond aux deux conditions suivantes

$$\begin{cases} T_{ij} = K_{ij} \Delta y \\ S_f o_f (\Delta x + \Delta y) = S_i \Delta x \Delta y \end{cases}$$

Dans le cas simple d'un milieu poreux homogène de perméabilité K , de coefficient d'emmagasinement S et de taille L , la discrétisation par des éléments 1D peut être faite par une grille régulière de N éléments 1D dans chaque direction définis par leur transmissivité T_f et leur coefficient d'emmagasinement S_f tels que

$$\begin{cases} T_f = \Delta K \\ S_f o_f = \frac{\Delta}{2} S \end{cases}$$

avec $\Delta = L/N$. En considérant la loi cubique pour lier la transmissivité de la fracture à son ouverture, on obtient les définitions suivantes

$$\begin{cases} o_f = \sqrt[3]{K \Delta} \\ S_f = \frac{S \Delta}{2 \sqrt[3]{K \Delta}} \end{cases}$$

qui permettent de discrétiser un milieu poreux homogène par des éléments 1D.

9. Listes des figures et tableaux

Figure 1 - Essai de pompage sur le site Pocheon (Corée du Sud) caractérisé par une roche granitique du Précambrien [<i>Hamm and Bidaux, 1996</i>].	4
Figure 2 - Essai de traçage sur le site de Kamaishi (Japon) caractérisé par une roche calcaire du Permien avec des intrusions de granite du Crétacé (modifié à partir de [<i>Dershowitz and Miller, 1995</i>]).	5
Figure 3 – Essai de traçage pour une fracture horizontale dans du marne de l'Ordovicien [<i>Novakowski and Lapcevic, 1994</i>].	6
Figure 4 – Prédiction des temps de restitution de l'uranium sur le site d'expérimentation du laboratoire national d'Oak Ridge (US) [<i>Rotter et al., 2008</i>].	7
Figure 5 – Représentation schématique du transport de solutés pour une injection constante C_0 à l'extrémité gauche de la fracture [<i>Neretnieks, 1980</i>].	8
Figure 6 – Etude de la zone non saturée du site du Yucca Mountain (US) caractérisé par une roche volcanique [<i>Wang and Narasimhan, 1985</i>].	9
Figure 7 – Comparaison des processus mis en jeu lors de l'injection de CO ₂ dans les milieux poreux et les milieux poreux fracturés [<i>Carneiro, 2009</i>].	10
Figure 8 – Etude du site granitique fracturé de Maheshwaram (Inde) [<i>Thangarajan, 2007</i>].	11
Figure 9 - Mise en évidence de la corrélation entre la diffusion dans la roche et son organisation poreuse [<i>Tidwell et al., 2000</i>].	15
Figure 10 – Evolution de la concentration restituée par volume pompé pour des solutés de caractéristiques différentes [<i>Becker and Shapiro, 2000</i>].	16
Figure 11 – Mise en évidence des effets gravitaires sur les transferts à l'échelle de la fracture [<i>Polak et al., 2003a</i>].	17
Figure 12 – Comparaison de la qualité de représentation de l'évolution de la pression dans la matrice pour un milieu stratifié [<i>Dykhuizen, 1990</i>].	24
Figure 13 – Prise en compte de l'hétérogénéité du bloc matriciel [<i>Kfoury et al., 2004</i>].	25
Figure 14 – Détermination numérique du coefficient d'échange [<i>Noetinger, 2010</i>].	26
Figure 15 - Estimation des caractéristiques du site de craie fracturé de Béthune (France) [<i>Moench, 1995</i>].	27

Figure 16 – Etude du site de roche volcanique fracturée du Nevada (US) [Moench, 1984]....	28
Figure 17 –Modèle expliquant la réponse du site de roches volcaniques du Yucca Mountain (US) à un essai de pompage [Young, 1992].	29
Figure 18 – Modèle conceptuel pour représenter les hétérogénéités de structures des milieux poreux fracturés [Andersson et al., 2004].	31
Figure 19 – Formalisme des modèles multi-porosité [Lagendijk et al., 2000].	32
Figure 20 – Représentation schématique du modèle double-porosité discret [Dershowitz and Miller, 1995].....	33
Figure 21 – Modélisation du site d’Aspo (Suisse) [Cvetkovic et al., 2004].....	38
Figure 22 – Effet d’échelle du coefficient de diffusion effectif [Zhou et al., 2007].....	39
Figure 23 – Représentation simplifiée du système fracture(s)-matrice.....	41
Figure 24 – Méthodologie pour l’évaluation du coefficient de diffusion effectif.	79
Figure 25 – Evolution du coefficient de diffusion effectif en fonction de la vitesse du fluide v pour un réseau de fractures parallèles.	81
Figure 26 - Evolution du coefficient de diffusion effectif en fonction de la taille du domaine L pour un réseau de fractures parallèles.	81
Figure 27 - Evolution du facteur d’échelle en fonction du nombre de Péclet P_e	84
Figure 28 – Discrétisation des milieux poreux fracturés par des éléments 1D.....	109
Figure 29 - Evolution du temps de diffusion moyen en fonction des paramètres du domaine à partir de l’expression analytique (19).	113
Figure 30 - Evolution du temps de diffusion moyen en fonction des paramètres du domaine pour différentes tailles de bloc B	114
Figure 31 - Evolution du temps de diffusion moyen en fonction des paramètres du domaine pour différentes valeurs du coefficient de diffusion D_m	114
Figure 32 - Structures en tapis de Sierpinski avec différents niveaux de division.....	115
Figure 33 - Evolution du temps de diffusion moyen en fonction des paramètres du domaine pour des structures en tapis de Sierpinski.	116
Figure 34 – Maillages de la zone matricielle.	154

Figure 35 – Définition du domaine d'intégration pour la méthode des différences finies
intégrées. 155

Tableau 1 – Valeurs des coefficients d'échange suivant la dimensionnalité de la diffusion
[*Haggerty and Gorelick, 1995*]. 22

10. Bibliographie

- Alboin, C., et al. (2002), A comparison of methods for calculating the matrix block source term in a double porosity model for contaminant transport, *Computational Geosciences*, 6(3-4), 523-543
- Andersson, P., et al. (2004), In situ tracer tests to determine retention properties of a block scale fracture network in granitic rock at the Aspö Hard Rock Laboratory, Sweden, *Journal of Contaminant Hydrology*, 70(3-4), 271-297, DOI: 10.1016/j.jconhyd.2003.09.009.
- Arbogast, T., et al. (1990), Derivation of the double porosity model of single-phase flow via homogenization theory, *SIAM J. Math. Anal.*, 21(4), 823-836
- Bai, M., et al. (1993), Multipositivity multipermeability approach to the simulation of naturally fractured reservoirs, *Water Resour. Res.*, 29(6), 1621-1633
- Barenblatt, G. I., et al. (1960), Basic concept in the theory of seepage of homogeneous liquids in fissured rocks, *J. Appl. Math.*, 24, 1286-1303
- Barr, D., et al. (2007), Pre-development fracture modelling in the Clair field, west of Shetland, in *Fractured Reservoirs*, edited by L. Lonergan, Jolly, R. J. H., Rawnsley, K. and Sanderson, D. J., pp. 205-225, Geological Society, London.
- Bear (1979), *Hydraulics of Groudwater*.
- Becker, M. W., and A. M. Shapiro (2000), Tracer transport in fractured crystalline rock: Evidence of nondiffusive breakthrough tailing, *Water Resour. Res.*, 36(7), 1677-1686
- Belani, A. K. (1988), Estimation of matrix block size distribution in naturally fractured reservoirs, Department of Petroleum Engineering of Stanford University.
- Berg, S. S., and E. Oian (2007), Hierarchical approach for simulating fluid flow in normal fault zones, *Petroleum Geoscience*, 13(1), 25-35
- Birgersson, L., and I. Neretnieks (1990), Diffusion in the matrix of granitic rock - Field-test in the Stripa mine, *Water Resour. Res.*, 26(11), 2833-2842
- Carneiro, J. F. (2009), Numerical simulations on the influence of matrix diffusion to carbon sequestration in double porosity fissured aquifers, *International Journal of Greenhouse Gas Control*, 3(4), 431-443, DOI: 10.1016/j.ijggc.2009.02.006.
- Carrera, J., et al. (1998), On matrix diffusion: formulations, solution methods and qualitative effects, *Hydrogeology Journal*, 6(1), 178-190
- Casabianca, D., et al. (2007), The Marchar Oil Field : waterflooding a fractured chalk reservoir, in *Fractured Reservoirs*, edited by L. Lonergan, Jolly, R. J. H., Rawnsley, K. and Sanderson, D. J., pp. 171-191, Geological Society, London.
- Chou, Y. T., et al. (1996), Analysis of mean square penetration depth in grain boundary diffusion, *Metallurgical and Materials Transactions a-Physical Metallurgy and Materials Science*, 27(11), 3473-3477
- Crank, J. (1979), *The Mathematics of Diffusion*.
- Cvetkovic, V., et al. (2004), Stochastic simulation of radionuclide migration in discretely fractured rock near the Äspö Hard Rock Laboratory, *Water Resour. Res.*, 40, DOI: 10.1029/2003WR002655.

- Davy, P., et al. (2006), Flow in multiscale fractal fracture networks, *Geological Society, London, Special Publications*, 261(1), 31-45, DOI: 10.1144/gsl.sp.2006.261.01.03.
- Dershowitz, W., and I. Miller (1995), Dual-porosity fracture flow and transport, *Geophys. Res. Lett.*, 22(11), 1441-1444
- Dykhuizen, R. C. (1990), A new coupling term for dual-porosity models, *Water Resour. Res.*, 26(2), 351-356
- Fung, et al. (1991), *Simulation of block-to-block processes in naturally fractured reservoirs*, Society of Petroleum Engineers, Richardson, TX, Etats-Unis.
- Gardiner, C. (2009), *Stochastic Methods*, Springer.
- Gautam, P. S., and K. K. Mohanty (2004), Matrix-fracture transfer through countercurrent imbibition in presence of fracture fluid flow, *Transp. Porous Media*, 55(3), 309-337
- Grisak, G. E., and J. F. Pickens (1980), Solute Transport Through Fractured Media 1. The Effect of Matrix Diffusion, *Water Resour. Res.*, 16
- Gwo, J. P., et al. (2005), Modeling field-scale multiple tracer injection at a low-level waste disposal site in fractured rocks: Effect of multiscale heterogeneity and source term uncertainty on conceptual understanding of mass transfer processes, *Journal of Contaminant Hydrology*, 77(1-2), 91-118, DOI: 10.1016/j.jconhyd.2004.12.002.
- Haggerty, R., and S. M. Gorelick (1995), Multiple-rate mass-transfer for modeling diffusion and surface-reactions in media with pore-scale heterogeneity, *Water Resour. Res.*, 31(10), 2383-2400
- Haggerty, R., et al. (2000), On the late-time behavior of tracer test breakthrough curves, *Water Resour. Res.*, 36(12), 3467-3479
- Hamm, S. Y., and P. Bidaux (1996), Dual-porosity fractal models for transient flow analysis in fissured rocks, *Water Resour. Res.*, 32(9), 2733-2745
- Harvey, C., and S. M. Gorelick (2000), Rate-limited mass transfer or macrodispersion: Which dominates plume evolution at the Macrodispersion Experiment (MADE) site?, *Water Resour. Res.*, 36(3), 637
- Jelmert, T. A. (1995), The effect of a distributed block length function on double porosity transitions during linear flow, *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 12(4), 277-293
- Jorgensen, P. R., et al. (2004), Modeling of non-reactive solute transport in fractured clayey till during variable flow rate and time, *Journal of Contaminant Hydrology*, 68(3-4), 193-216, DOI: 10.1016/s0169-7722(03)00146-3.
- Karimi-Fard, M., et al. (2006), Generation of coarse-scale continuum flow models from detailed fracture characterizations, *Water Resour. Res.*, 42(10), DOI: 10.1029/2006WR005015.
- Kazemi, H., et al. (1969), Interpretation of interference tests in naturally fractured reservoirs with uniform fracture distribution, *Society of Petroleum Engineers Journal*, 9(4), 463-&
- Kazemi, H., et al. (1976), Numerical-simulation of water-oil flow in naturally fractured reservoirs, *Society of Petroleum Engineers Journal*, 16(6), 317-326
- Kfoury, M., et al. (2004), Matrix-fracture exchange in a fractured porous medium: stochastic upscaling, *Comptes Rendus Mecanique*, 332(8), 679-686

- Kolditz, O., and C. Clauser (1998), Numerical simulation of flow and heat transfer in fractured crystalline rocks: Application to the Hot Dry Rock site in Rosemanowes (UK), *Geothermics*, 27(1), 1-23
- Kolditz, O., et al. (1998), Coupled groundwater flow and transport .1. Verification of variable density flow and transport models, *Advances in Water Resources*, 21(1), 27-46
- Lagendijk, V. R., et al. (2000), Contaminant transport modeling in multi-porosity fractured systems using a multi-continuum approach, *Geoecology and Computers*, 497-502
- Lee, S. H., et al. (2001), Hierarchical modeling of flow in naturally fractured formations with multiple length scales, *Water Resour. Res.*, 37(3), 443-455
- Liu, C. T., and H. D. Yeh (2003), Radionuclide transport in a multiple and parallel fractured system, *Nucl. Technol.*, 143(3), 322-334
- Liu, H. H., et al. (2006), An interpretation of potential scale dependence of the effective matrix diffusion coefficient, *Journal of Contaminant Hydrology*, 90(1-2), 41-57, DOI: 10.1016/j.jconhyd.2006.09.006.
- Long, J. C. S., et al. (1982), Porous media equivalents for networks of discontinuous fractures, *Water Resour. Res.*, 18(3), 645-658
- Maloszewski, P., and A. Zuber (1993), Tracer experiments in fractured rocks - Matrix diffusion and the validity of models, *Water Resour. Res.*, 29(8), 2723-2735
- Martin, V., et al. (2005), Modeling fractures and barriers as interfaces for flow in porous media, *Siam Journal on Scientific Computing*, 26(5), 1667-1691, DOI: 10.1137/s1064827503429363.
- Matthai, S. K. (2003), Fluid flow and (reactive) transport in fractured and faulted rock, *J. Geochem. Explor.*, 78-9, 179-182, DOI: 10.1016/s0375-6742(03)00094-3.
- Matthai, S. K., and M. Belayneh (2004), Fluid flow partitioning between fractures and a permeable rock matrix, *Geophys. Res. Lett.*, 31(7), 5, DOI: 10.1029/2003gl019027.
- Meigs, L. C., and R. L. Beauheim (2001), Tracer tests in a fractured dolomite 1. Experimental design and observed tracer recoveries, *Water Resour. Res.*, 37(5), 1113-1128
- Moench, A. F. (1984), Double-porosity models for a fissured groundwater reservoir with fracture skin, *Water Resour. Res.*, 20(7), 831-846
- Moench, A. F. (1995), Convergent Radial Dispersion in a Double-Porosity Aquifer with Fracture Skin: Analytical Solution and Application to a Field Experiment in Fractured Chalk, *Water Resour. Res.*, 31(8), 1823-1835, DOI: 10.1029/95wr01275.
- Murphy, H. D., et al. (1981), Energy extraction from fractured geothermal-reservoirs in low-permeability crystalline rock, *Journal of Geophysical Research*, 86(NB8), 7145-7158
- Neretnieks, I. (1980), Diffusion in the rock matrix - An important factor in radionuclide retardation, *Journal of Geophysical Research*, 85(NB8), 4379-4397
- Neretnieks, I. (2002), A stochastic multi-channel model for solute transport - analysis of tracer tests in fractured rock, *Journal of Contaminant Hydrology*, 55(3-4), 175-211
- Neuman, S. P. (2005), Trends, prospects and challenges in quantifying flow and transport through fractured rocks, *Hydrogeology Journal*, 13(1), 124-147, DOI: 10.1007/s10040-004-0397-2.

Noetinger, B., and T. Estebenet (2000), Up-scaling of double porosity fractured media using continuous-time random walks methods, *Transp. Porous Media*, 39

- Tang, D. H., et al. (1981), Contaminant Transport in Fractured Porous Media: Analytical Solution for a Single Fracture, *Water Resour. Res.*, 17
- Thangarajan, M. (Ed.) (2007), *Groundwater - Resource Evaluation, Augmentation, Contamination, Restoration, Modeling and Management*, Springer.
- Tidwell, V. C., et al. (2000), Effects of spatially heterogeneous porosity on matrix diffusion as investigated by X-ray absorption imaging, *Journal of Contaminant Hydrology*, 42(2-4), 285-302
- Tsang, Y. W., and C. F. Tsang (2001), A particle-tracking method for advective transport in fractures with diffusion into finite matrix blocks, *Water Resour. Res.*, 37(3), 831-835
- Uleberg, K., and J. Kleppe (1996), Dual Porosity, Dual Permeability Formulation for Fractured Reservoir Simulation
- Wallach, R., and J. Y. Parlange (1998), Modeling transport in a single crack by the dual-porosity concept with a boundary layer at the interface, *Journal of Contaminant Hydrology*, 34(1-2), 121-138
- Wang, H., et al. (2004), A model coupling discrete and continuum fracture domains for groundwater flow in fractured media, *Journal of Hydraulic Research*, 42, 45-52
- Wang, J. S. Y., and T. N. Narasimhan (1985), Hydrologic mechanisms governing fluid-flow in a partially saturated, fractured, porous-medium, *Water Resour. Res.*, 21(12), 1861-1874
- Warren, J. E., P. J. Root, and M. Aime (1963), The Behavior of Naturally Fractured Reservoirs, *Society of Petroleum Engineers Journal*, September, 245-255
- Wu, Y. S., et al. (2004), A physically based approach for modeling multiphase fracture-matrix interaction in fractured porous media, *Advances in Water Resources*, 27(9), 875-887, DOI: 10.1016/j.advwatres.2004.07.002.
- Young, R. (1992), Pressure transients in a double-porosity medium, *Water Resour. Res.*, 28(5), 1261-1270
- Zhan, H. B., et al. (2009), Analytical solution of two-dimensional solute transport in an aquifer-aquitard system, *Journal of Contaminant Hydrology*, 107(3-4), 162-174, DOI: 10.1016/j.jconhyd.2009.04.010.
- Zhang, D. X., and Q. J. Kang (2004), Pore scale simulation of solute transport in fractured porous media, *Geophys. Res. Lett.*, 31(12), 5, DOI: 10.1029/2004GL019886.
- Zhou, Q. (2005), Software Management Report for i-THOUGH2-TRAT, Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley.
- Zhou, Q. L., et al. (2006), Evidence of multi-process matrix diffusion in a single fracture from a field tracer test, *Transp. Porous Media*, 63(3), 473-487, DOI: 10.1007/s11242-005-1123-9.
- Zhou, Q. L., et al. (2007), Field-scale effective matrix diffusion coefficient for fractured rock: Results from literature survey, *Journal of Contaminant Hydrology*, 93(1-4), 161-187
- Zimmerman, R. W., et al. (1990), Absorption of water into porous blocks of various shapes and sizes, *Water Resour. Res.*, 26(11), 2797-2806
- Zimmerman, R. W., et al. (1993), A numerical dual-porosity model with semianalytical treatment of fracture matrix flow, *Water Resour. Res.*, 29(7), 2127-2137
- Zuber, A., and J. Motyka (1994), Matrix porosity as the most important parameter of fissured rocks for solute transport at large scales, *Journal of Hydrology*, 158(1-2), 19-46

Zyvoloski, G. A., et al. (2008), Generalized dual porosity: A numerical method for representing spatially variable sub-grid scale processes, *Advances in Water Resources*, 31(3), 535-544