

Transport d'un agent de contraste IRM dans un milieu poreux traversé par un macropore : courbes de percée, imagerie par résonance magnétique et comparaison à des simulations numériques

S. Batany^a, P.-E. Peyneau^b, P. Faure^c, L. Lassabatère^d, P. Dangla^e

a. IFSTTAR, GERS, EE, F-44340 Bouguenais, France — sbatany@gmail.com

b. IFSTTAR, GERS, EE, F-44340 Bouguenais, France — pierre-emmanuel.peyneau@ifsttar.fr

c. Université Paris-Est, Laboratoire Navier, F-77455 Marne-la-Vallée, France —
pamela.faure@ifsttar.fr

d. Université de Lyon, UMR 5023 LEHNA, Université Lyon 1, École Nationale des Travaux Publics de l'État, Centre National de la Recherche Scientifique, 3 rue Maurice Audin, 69518 Vaulx-en-Velin, France — laurent.lassabatere@entpe.fr

e. Université Paris-Est, Laboratoire Navier, F-77455 Marne-la-Vallée, France —
patrick.dangla@ifsttar.fr

Résumé :

Dans cette étude, nous analysons de manière détaillée le couplage entre écoulement et transfert de masse dans un milieu poreux comprenant un macropore individuel entouré d'une matrice poreuse constituée de billes de verre collées entre elles. Nous avons commencé par procéder à des expériences de percée classiques en injectant de l'acide gadopentétique (Gd-DTPA), soluté dont nous avons vérifié qu'il n'était pas réactif dans le milieu poreux utilisé, à différents débits. Cette substance paramagnétique est contrastante en imagerie par résonance magnétique (IRM) et nous avons exploité cette propriété pour imager le transfert du Gd-DTPA au sein du milieu poreux hétérogène. L'allure générale des courbes de percée obtenues dépend peu du débit d'injection mais la valeur maximale atteinte y est néanmoins sensible. À débit suffisamment élevé, il y a peu d'échange de matière entre le macropore et la matrice poreuse environnante. En revanche, lorsque le débit diminue, on constate que la valeur maximale atteinte par les courbes de percée diminue et les images obtenues par IRM montrent l'existence d'un échange de soluté entre le macropore et la matrice poreuse. Pour finir, nous avons comparé les courbes de percée mesurées et l'évolution temporelle du champ de concentration en Gd-DTPA obtenue par IRM avec un modèle effectif de transport adapté à la géométrie du milieu poreux hétérogène considéré.

Abstract :

This work is devoted to the study of the interplay between water flow and mass transfer in a porous medium comprising a macropore surrounded by a porous matrix made of glass beads glued together. We

performed breakthrough experiments with a non-reactive solute, Gd-DTPA, at different flow rates. Gd-DTPA is a paramagnetic solute commonly used as a contrasting agent in magnetic resonance imaging (MRI) and we used this property to image the transfer of Gd-DTPA within the porous medium itself. The general shape of the breakthrough curves is not very much affected by the value of the flow rate. However, the maximum value reached by the breakthrough curves does depend on the flow rate. When the flow rate is large enough, the mass transfer between the macropore and the porous matrix is small. But when the flow rate is sufficiently small, MRI images demonstrate that some solute is transported between the macropore and the surrounding porous matrix. Finally, we have compared the experimental breakthrough curves and the time evolution of the concentration field of Gd-DTPA obtained by MRI with an effective transport model adapted to the cylindrical geometry of the system herein considered.

Mots clés : milieu poreux hétérogène, transport de solutés, écoulement préférentiel, courbe de percée, IRM, simulation numérique.

1 Introduction

Les sols présentent fréquemment des zones d'écoulement préférentiel qui favorisent le transfert rapide de différentes substances véhiculées par l'eau. Ces zones peuvent en particulier être liées à l'existence d'hétérogénéités structurales comme des macropores, c'est-à-dire des pores ayant un diamètre et une longueur plus importants que ceux de la matrice poreuse environnante. Les macropores peuvent résulter de l'activité biologique qui règne au sein des sols (passage de vers de terre, pourrissement de racines) ou bien de différents processus physiques (fissures liées à des cycles gel-dégel ou à du retrait-gonflement), et on sait depuis longtemps qu'ils sont susceptibles d'exercer une influence notable mais difficile à quantifier sur le transfert de contaminants dans les sols [1].

Les écoulements préférentiels qui ont pu être observés sur le terrain ou même sur des colonnes de sol non remaniées peuvent être dus à l'action conjointe de différentes hétérogénéités dont la contribution individuelle est difficile à apprécier. Afin de bien comprendre le rôle joué par un macropore individuel, différentes approches ont été utilisées. Un certain nombre de milieux poreux modèles (comme des empilements granulaires comportant un macropore artificiel) ont notamment été conçus pour étudier cette problématique [2]. La présente étude se situe dans cette veine.

Dans ce qui suit, nous allons commencer par présenter le milieu poreux hétérogène modèle construit pour mener cette étude, les courbes de percée obtenues ainsi que les images acquises par IRM. Nous présenterons ensuite le modèle de transport effectif que nous avons utilisé pour simuler le transport au sein du milieu poreux hétérogène et nous comparerons les sorties numériques obtenues avec les résultats expérimentaux.

2 Expériences réalisées

2.1 Milieu poreux

Le milieu poreux hétérogène modèle utilisé dans le cadre de cette étude a été construit de la façon suivante : (i) une tige cylindrique en Téflon de $d_{\text{macro}} = 3.0$ mm de diamètre a été placée au niveau de l'axe d'une colonne de $d_{\text{col}} = 5.0$ cm de diamètre et de $L_{\text{col}} = 14.5$ cm de long ; (ii) un mélange

de billes de verre (dont le diamètre était uniformément distribué entre 0.4 et 0.8 mm de diamètre) et de résine époxy (Araldite) a ensuite été versé dans la colonne autour de la tige en Téflon; (iii) enfin, cette tige a été retirée une fois le mélange billes-colle légèrement consolidé, mais avant la prise totale de la colle. L'emplacement libéré par la tige forme un macropore d'environ $V_{\text{macro}} = 1.5$ mL tandis que les billes de verre collées qui l'entourent constituent un milieu poreux de porosité égale à $\phi = 36\%$ et dont le volume poral vaut approximativement $V_0 = 102$ mL. Ce milieu poreux présente l'avantage d'être consolidé, ce qui prévient tout effondrement du macropore.

2.2 Courbes de percée

L'acide gadopentétique (Gd-DTPA) a été choisi comme soluté pour procéder à des expériences de percée. Il s'agit d'un agent de contraste fréquemment utilisé en IRM dans le domaine médical. Nous avons vérifié (par suivi cinétique et mesure d'isothermes d'adsorption), que cette substance était bien non réactive vis-à-vis du milieu poreux synthétique que nous avons construit. Nous avons ensuite procédé à des injections de 5 mL de solution traçante contenant du Gd-DTPA concentré à 1.0×10^{-3} mol.L⁻¹ à différents débits Q (0.05, 0.10, 0.50, 1.0 et 2.0 mL.min⁻¹) en collectant les éluats en sortie de colonne à l'aide d'une pompe péristaltique (Ismatec ISM834A) et d'un système de chromatographie liquide basse pression muni d'un collecteur de fractions (GE Healthcare ÄKTAprime). Compte tenu de la section de la colonne, les vitesses de Darcy testées correspondantes sont 2.5×10^{-3} , 5.1×10^{-3} , 2.5×10^{-2} , 5.1×10^{-2} et 1.0×10^{-1} cm.min⁻¹. La concentration totale en élément gadolinium dans les fractions collectées en sortie de colonne a été mesurée par spectrométrie de masse (Varian 820-MS). La conductivité électrique en sortie de colonne était également mesurée en continu.

Deux des courbes de percée mesurées après injection de Gd-DTPA dans la colonne sont visibles sur la Figure 1. La quasi-totalité du soluté a percolé lorsque le volume injecté atteint 30 % du volume poral de la colonne. L'influence du débit se manifeste à travers la modification de la valeur maximale atteinte par la courbe de percée, modification qui intervient autour d'une valeur seuil de la vitesse de Darcy comprise entre 5.1×10^{-3} et 2.5×10^{-2} cm.min⁻¹. Globalement, ces courbes de percée montrent que le soluté passe essentiellement dans le macropore. L'allure globale des courbes de percée du Gd-DTPA reste la même quel que soit le débit injecté, contrairement à ce qu'on peut observer dans le cas du bromure de potassium [4]. La Figure 1 montre également la façon dont deux modèles classiques (le modèle de convection-dispersion – CDE – et le modèle mobile-immobile standard – MIM) ajustent les données expérimentales : on constate que le modèle MIM standard ajuste correctement les courbes de percée mesurées.

2.3 Imagerie par résonance magnétique

Nous avons également imagé la progression du Gd-DTPA dans la colonne pour trois vitesses de Darcy distinctes ($q_1 = 5.1 \times 10^{-2}$ cm.min⁻¹, $q_2 = 5.1 \times 10^{-3}$ cm.min⁻¹ et $q_3 = 2.5 \times 10^{-3}$ cm.min⁻¹) afin de visualiser la progression du soluté en fonction du débit à l'intérieur même de la colonne. Le dispositif que nous avons utilisé pour mener à bien ces expériences est un imageur ¹H bas champ (0.5 T) vertical installé au laboratoire Navier, à Noisy-le-Grand (Bruker 24/80 DBX). Les données acquises sont toutes pondérées en temps de relaxation longitudinal T_1 . Enfin, les images que nous allons présenter ont été obtenues en soustrayant une image de référence acquise avant l'entrée du soluté dans la colonne aux images brutes obtenues au cours de l'expérience de percée.

Pour le débit le plus élevé ($q_1 = 5.1 \times 10^{-2}$ cm.min⁻¹), les images témoignent du passage rapide du

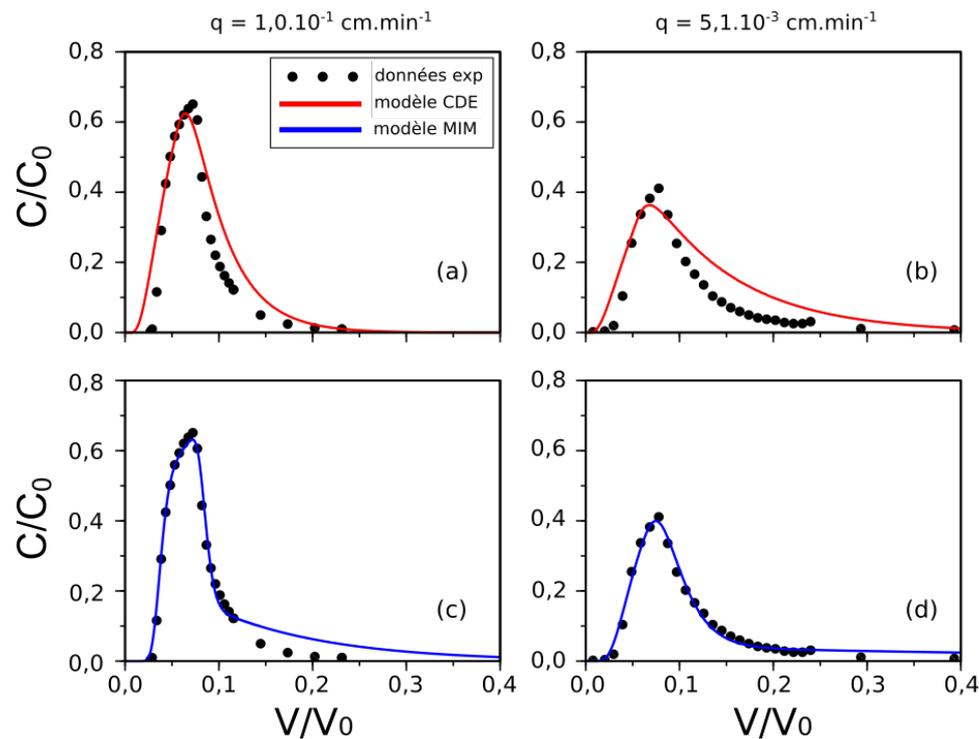


FIGURE 1 – Courbes de percée expérimentales et ajustements CDE et MIM standard après injection de Gd-DTPA dans la colonne hétérogène à deux vitesses de Darcy différentes, $1.0 \times 10^{-1} \text{ cm.min}^{-1}$ et $5.1 \times 10^{-3} \text{ cm.min}^{-1}$.

soluté à travers le macropore (*cf.* Figure 2). On observe également que le soluté se déplace latéralement depuis le macropore dans la matrice poreuse (visible en particulier pour un nombre de volumes de pore $V/V_0 = 0.16$).

Pour des débits plus faibles ($q_2 = 5.1 \times 10^{-3} \text{ cm.min}^{-1}$ et $q_3 = 2.5 \times 10^{-3} \text{ cm.min}^{-1}$), on constate également dans les deux cas la progression rapide du soluté dans le macropore, ainsi qu'un transfert latéral bien visible depuis le macropore vers la matrice poreuse (Figure 3). La zone de la matrice poreuse dans laquelle on détecte la présence de Gd-DTPA paraît visuellement plus étendue pour le débit le plus faible. On peut tout de même noter que cette zone n'est pas visible tout le long du macropore, peut-être à cause d'hétérogénéités locales de la porosité au voisinage de l'interface entre le macropore et la matrice poreuse. En tout état de cause, les images montrent que le transfert vers la matrice poreuse est d'autant plus marqué que le débit d'injection est faible. Les images témoignent également du fait que ce transfert a lieu perpendiculairement à la direction principale de l'écoulement, ce qui suggère que ce n'est pas un processus de transport advectif qui en est responsable, mais plutôt la diffusion moléculaire. Ces observations nous ont conduits à considérer qu'au niveau de la matrice poreuse, la diffusion moléculaire joue un rôle plus important que l'advection et donc à simuler le transport dans le milieu poreux que nous avons étudié à l'aide d'un modèle de type mobile-immobile (MIM) adapté à la géométrie du système ici considéré.

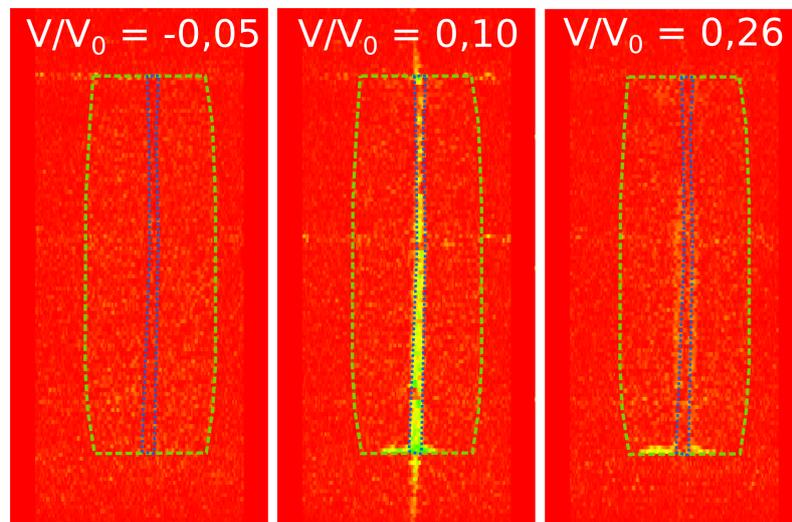


FIGURE 2 – Progression du Gd-DTPA dans la colonne (en jaune sur les images) lorsque la vitesse de Darcy vaut $q_1 = 5.1 \times 10^{-2} \text{ cm.min}^{-1}$.

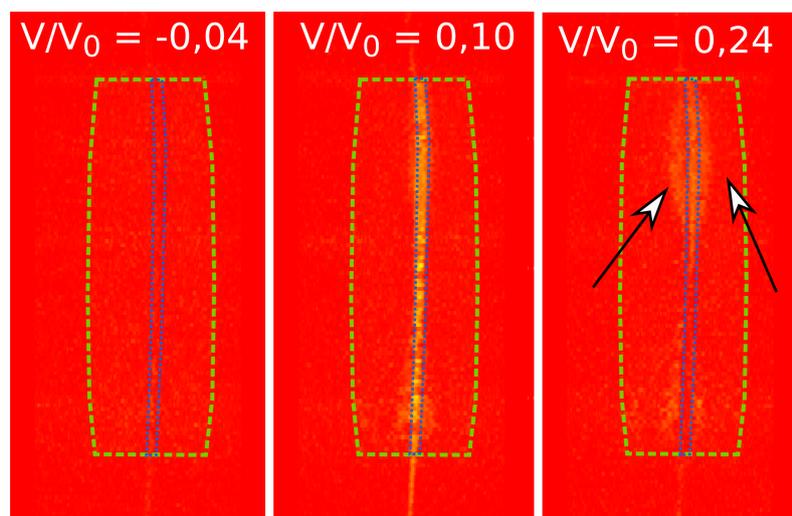


FIGURE 3 – Progression du Gd-DTPA dans la colonne (en jaune sur les images) lorsque la vitesse de Darcy vaut $q_3 = 2.5 \times 10^{-3} \text{ cm.min}^{-1}$. Les flèches indiquent la présence de l'élément gadolinium dans la matrice poreuse, à proximité du macropore.

3 Simulations numériques

3.1 Modèle

Van Genuchten, Tang et Guennelon ont proposé il y a quelques années un modèle de type MIM pour modéliser le transport de soluté à travers un macropore cylindrique de rayon $r_{\text{macro}} = d_{\text{macro}}/2$ entouré d'une matrice poreuse occupant l'espace délimité par un cylindre creux de rayon interne r_{macro} et de rayon externe $r_{\text{col}} = d_{\text{col}}/2$ [3]. Dans ce modèle, la diffusion radiale dans la matrice poreuse est explicitement prise en compte. La première équation du modèle s'écrit :

$$\theta_{\text{m}} \frac{\partial C_{\text{m}}}{\partial t} + \theta_{\text{im}} \frac{\partial C_{\text{im}}}{\partial t} = \theta_{\text{m}} D_{\text{m}} \frac{\partial^2 C_{\text{m}}}{\partial z^2} - q \frac{\partial C_{\text{m}}}{\partial z}$$

À la différence du modèle mobile-immobile classique, le champ de concentration C_{im} dans la zone immobile n'est pas dans ce cas un champ de base du modèle, mais est défini comme une moyenne spatiale :

$$C_{\text{im}}(z, t) = \frac{2}{r_{\text{col}}^2 - r_{\text{macro}}^2} \int_{r_{\text{macro}}}^{r_{\text{col}}} r C_a(z, r, t) dr$$

C_a est la concentration locale en soluté dans la matrice poreuse. Le transport de soluté dans cette partie du système est modélisé à l'aide d'une équation de diffusion exprimée en coordonnées cylindriques (coefficient de diffusion moléculaire noté D_0), avec une condition de Dirichlet au niveau de l'interface entre le macropore et la matrice poreuse et une condition de Neumann à la limite externe de la matrice poreuse :

$$\frac{\partial C_a}{\partial t} = \frac{D_0}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial C_a}{\partial r} \right) \quad r_{\text{macro}} \leq r \leq r_{\text{col}}$$

$$C_a(z, r_{\text{macro}}, t) = C_{\text{m}}(z, t) \quad , \quad \frac{\partial C_a}{\partial r}(z, r_{\text{col}}, t) = 0$$

Il s'avère que les courbes de percée issues de ce modèle de transport peuvent être calculées analytiquement. La solution exacte s'exprime à l'aide de fonctions spéciales mais van Genuchten *et coll.* ont trouvé une expression approchée dont ils considèrent qu'elle constitue une bonne approximation de la solution exacte (*cf.* Eq. 95 de la référence [3]). Cette expression permet de calculer la courbe de percée prédite par le modèle pour le système considéré. Avec nos notations, en considérant que l'eau s'écoule entièrement à travers le macropore (on peut montrer qu'il s'agit là d'une approximation raisonnable [4]), on obtient l'équation suivante pour la courbe de percée lorsqu'un volume de solution traçante V_{inj} est injecté au début de l'expérience :

$$c(v) = c_{\text{step}}(v) - c_{\text{step}}(v - V_{\text{inj}}/V_0)$$

Dans cette équation, v est le nombre de volumes de pores $V(t)/V_0$. Quant à c_{step} , cette fonction s'écrit de la manière suivante :

$$c_{\text{step}}(v) = H \left(v - \frac{\pi d_{\text{macro}}^2 L_{\text{col}}}{4Q} \right) \exp \left(-\frac{\pi \phi D_0 L_{\text{col}}}{Q} \right) \operatorname{erfc} \left[\frac{1}{2} \pi \phi L_{\text{col}} d_{\text{macro}} \left(\frac{D_0}{Q V_0 v - \frac{\pi d_{\text{macro}}^2 L_{\text{col}}}{4Q}} \right)^{1/2} \right]$$

Ces deux équations permettent donc de calculer avec une bonne approximation les courbes de percée prédites par le modèle effectif de transport.

Enfin, ce modèle peut également être résolu numériquement (nous avons procédé par différences finies), afin de calculer l'évolution temporelle du champ de concentration dans le système { macropore + matrice

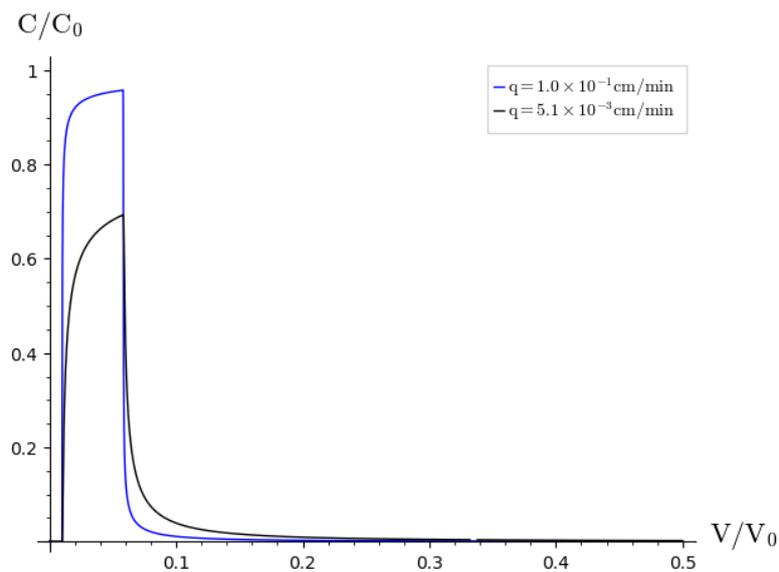


FIGURE 4 – Courbes de percée calculées à partir du modèle présenté dans [3], pour deux vitesses de Darcy distinctes, $1.0 \times 10^{-1} \text{ cm}\cdot\text{min}^{-1}$ et $5.1 \times 10^{-3} \text{ cm}\cdot\text{min}^{-1}$.

poreuse} à des fins de comparaison avec les résultats obtenus par IRM.

3.2 Comparaison simulations/expériences

Les courbes de percée modélisées à l'aide des deux équations précédentes sont représentées sur la Figure 4. On peut constater qu'elles reproduisent à grands traits les courbes expérimentales présentées sur la Figure 1. Même si l'accord entre résultats expérimentaux et numériques n'est pas parfait, soulignons que les courbes représentées sur la Figure 4 ont été calculées sans aucun ajustement de paramètre et en négligeant la dispersion hydrodynamique. Enfin, les courbes calculées témoignent également du fait que pour notre système, la valeur maximale atteinte par la courbe de percée est sensiblement affectée par la vitesse de Darcy en-deçà de $1.0 \times 10^{-1} \text{ cm}\cdot\text{min}^{-1}$, ce qui est cohérent avec nos observations expérimentales.

Le modèle effectif de transport de van Genuchten *et coll.* peut également être résolu numériquement afin de calculer l'évolution temporelle du champ de concentration en soluté au sein de la colonne hétérogène. Le champ de concentration calculé au sein de la colonne lorsque la vitesse de Darcy est égale à $q_3 = 2.5 \times 10^{-3} \text{ cm}\cdot\text{min}^{-1}$ est représenté sur la Figure 5 pour différents nombres de volumes de pore. Comme dans le cas des courbes de percée, le modèle de transport reproduit dans les grandes lignes les images obtenues par IRM visibles sur la Figure 3.

Références

- [1] K. Beven, P. Germann, Macropores and water flow in soils revisited, *Water Resources Research*, 49(6) (2013), 3071-3092.
- [2] Y. Li, M. Ghodrati, Preferential transport of solute through soil columns containing constructed macropores. *Soil Science Society of America Journal*, 61(5) (1997), 1308-1317.

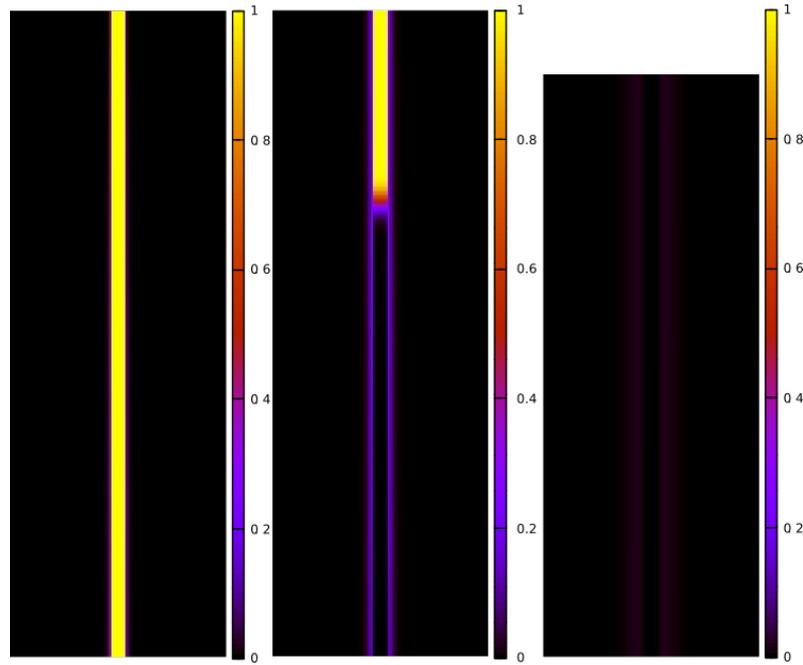


FIGURE 5 – Simulation numérique de la progression du Gd-DTPA dans la colonne lorsque la vitesse de Darcy vaut $q_3 = 2.5 \times 10^{-3} \text{ cm.min}^{-1}$. La figure de gauche correspond à $V(t)/V_0 = 0.02$, celle du milieu à $V(t)/V_0 = 0.06$ et celle de droite à $V(t)/V_0 = 0.24$.

- [3] M. T. van Genuchten, D. H. Tang, R. Guennelon, Some exact solutions for solute transport through soils containing large cylindrical macropores, *Water Resources Research*, 20(3) (1984), 335-346.
- [4] S. Batany, P.-E. Peyneau, L. Lassabatère, B. Béchet, P. Faure, P. Dangla, Interplay between molecular diffusion and advection during solute transport in macroporous media, *Vadose Zone Journal* (in press), doi :10.2136/vzj2018.08.0151.