
Développement de méthodes numériques et analyse mathématique de modèles pour le transport réactif

Nicolas Bouillard CEA (French Nuclear Agency) / MTMS / Saclay (PhD)

Robert EYMARD, university of Marne la Vallée ; **Raphaèle HERBIN**, university of Marseille / CMI (advisor) ; **Philippe MONTARNAL**, CEA / DEN / MTMS (CEA supervisor)



Contexte / Motivation

- Résolution de problèmes de **transport réactif** pour le stockage des déchets. (**chimie aussi complète que possible**)
 - échelle de temps longues (chp proche 10^5 ans, chp lointain 10^6 ans).
- Plateforme ALLIANCES développée par CEA, ANDRA, EDF.
 - **Couplage** et intégration **de codes**.
- **Améliorer les algorithmes de couplage (tps CPU)**.
 - Contrôler le nb d'itérations (nb it \nearrow fortement quand $\Delta t \nearrow$) et les couplages fort (precipitation dissolution).
 - Contrôler le coût de la chimie. (le - d'appel possible).
 - Avoir des méthodes aisément //.
- **Comprendre** le comportement de ces algos (**cas simples**).

Plan

1. Présentation du problème couplé.
 - Description EDP + ODE + Equ Alge.
 - Discrétisation \Rightarrow système non linéaire.
2. Méthodes de résolution
 - Point fixe, **gradient conjugué non linéaire** et Newton.
 - Comparaison sur un cas de lixiviation (1D espace).
3. Etude d'un cas simplifié.
 - Description du modèle.
 - Résultats mathématiques.
 - Comparaison des méthodes sur ce cas simple (en cours).

1.1. Modélisation

- Équations de transport des espèces chimiques (Steefel & Lasaga 94)

- Conservation de la masse:

$$\partial_t(\Phi c_i) - \nabla \cdot (\vec{J}_{disp,i} + \vec{J}_{diff,i} + \vec{J}_{conv,i}) = r_i(c_1, \dots, c_n)$$

- Différents flux sont couplés à l'hydraulique

$$(div(\overline{\overline{K}} \nabla h) = 0, \text{ incompressible, saturé) via la loi de Darcy } (\vec{u} = -\overline{\overline{K}} \nabla h)$$

- Équations de la chimie : système d'équations algebro-différentielles

- Équilibre (Alg)
- Cinétique (ODE)

1.1. Modélisation

- Concept d'**espèces composantes**: $(\nu_{ij}^x, \nu_{kj}^p, \nu_{lj}^s$: coefficients stoechiométriques)

$$T_j = \left(c_j + \sum_i \nu_{ij}^x x_i \right) + \left(\sum_k \nu_{kj}^p p_k + \sum_l \nu_{lj}^s s_l \right) = C_j + F_j$$

- $T = (\dots, T_j, \dots)$, C, F : variables principales (T totale, C totale dissoute, F totale fixée).
- $\partial_t T_j - L(C_j) = 0$ et $C_j = \Psi(T)$. (saturé, porosité cste, équilibre locale, transport indpt de l'espèce composante)

1.2. Discrétisation, formulation

- Pour les résultats numériques présentés: volumes finis sur maillage admissible
 - Schéma en temps : ordre 1.
 - Partie convective : schéma amont.
- Chimie en implicite.

Schéma amont: diffusif mais dans nos applications, on est plutôt à Péclet faible. A priori, suffisant dans un premier temps.

- ALLIANCES utilise CAST3M: autres choix possibles de discrétisation (EFMH, VF...).

1.2. Discrétisation, formulation

A chaque pas de temps, on est amené à résoudre un **système non linéaire** $R(x) = 0$ avec $R : \mathbb{R}^p \rightarrow \mathbb{R}^p$.

- x est l'inconnue discrète.
- $p = \text{nb de mailles} \times \text{nb d'espèces chimiques composantes}$.
- $J_R(x)$ matrice jacobienne de R en x .
- **Un calcul de $R(x)$ correspond à un appel de différents codes (1 TRA + 1 Ψ).**

Plusieurs choix pour x : C , T ou F (Yeh, Tripathi 89). A priori, le choix $x = F$ est défavorisé (chimie pas dérivable par rapport à cette variable, problème pour le calcul de la jacobienne).

1.2. Discrétisation, formulation

Pour $x = C$ (concentration totale dissoute)

$$R(x) = x - \Psi(b + L \cdot x)$$

- b vecteur dépendant des CL et des valeurs au pas de temps précédents.
- Ψ opérateur de chimie (non linéaire, code de chimie).
- L matrice de transport (linéaire, code de transport).

Les performances dépendent du choix de x et du cas.

- Couplage et transport écrit en Python ; chimie: chess (C++) ; solveurs (PETSC via Numerical Platon).

2.1. Méthodes numériques

- PF souvent utilisé par les industriels, ([Yeh & Tripathi 89](#), [Alliances](#)), inclus les méthodes de splitting, ([Carrayrou](#)).
- Free Jacobian Newton Krylov methods.
Aspects théoriques [Brown and Saad 90](#) ; Applications [Hammond 2003](#) qui implique souvent du calcul parralèle.
- Gradient conjugué non linéaire.
[Sun and Zhang,2001](#) preuve de convergence globale sous des hypothèses pas trop restrictives. Optimisation sans contrainte. Algorithme avec un pas ayant une formule explicite.
Systèmes non linéaire: [Daim et al. 2002](#) pour le couplage de codes géomécaniques et réservoirs.

2.1. Point Fixe, GCNL et Newton

$\{x_1, r_1\}$ où $r_1 = -R(x_1)$. Boucle jusqu'à ce que $|r_k|_2/|r_1|_2 < 10^{-6}$.

■ Preconditionnement:

■ Linéaire: $\hat{r}_k = Pr_k$.

■ Non linéaire: $\hat{r}_k = P(r_k)$.

■ Calcul de la direction de descente d_k :

■ $d_k = -\hat{r}_k$ (Point Fixe) ou $J_R(x_k)d_k = -\hat{r}_k$ (Newton).

■ $d_k = -\hat{r}_k + \beta_k d_{k-1}$ (Gradient conjugué non linéaire).

■ Calcul du pas $\overline{\alpha}_k$:

■ $\overline{\alpha}_k = I$ (Newton non relaxé et Point Fixe)

■ $\overline{\alpha}_k = \hat{r}_k^t d_k / d_k^t y_k$ (GCNL) avec $y_k \simeq J_R(x_k)d_k$.

■ $x_{k+1} = x_k + \overline{\alpha}_k d_k$ et $r_{k+1} = -R(x_{k+1})$.

2.1. Méthodes numériques

- Calcul de dérivés dans une direction effectué par **différences finies**. (couplage)
- **Opération dans une itération**

| | PF | GC | vrai Newton | JFNK |
|--------------------------------------|----|----|-------------|----------------|
| calcul de résidu (1Ψ) | 1 | 1 | 1 | 1 |
| calcul de dérivés (1Ψ) | 0 | 1 | M | nb it internes |
| préconditionnement | 1 | 1 | 1 | 1 |

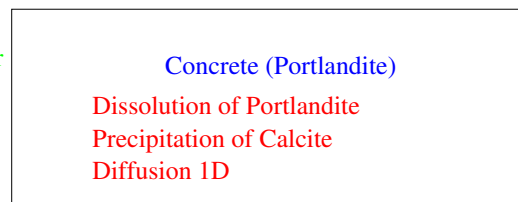
- M nb d'espèces composantes ($\simeq 20$ pour des cas réalistes).
Fort impact sur le coût calcul.
- Coût CPU total: GC prometteur puisqu'une itération ne coûte pas trop cher(sous réserve de ne pas trop itérer)

2.1. Méthodes numériques

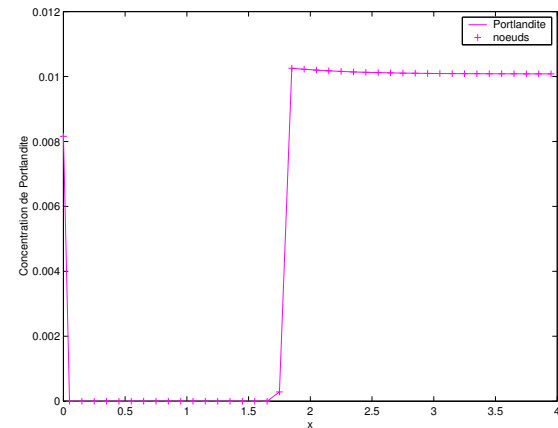
- $\beta_k = \max(0, \hat{r}_k^T (r_k - r_{k-1}) / \hat{r}_k^T r_k)$ (Polak Ribière)
- Préconditionnement:
 - PF celui du transport. (M SL de taille N)
 - Newton non mais résolution d'un SL. (1 SL de taille $N \times M$)
 - GC aucun, pas de préconditionneurs efficaces pour l'instant.
 - un choix possible: préconditionnement par le point fixe ou par le transport.
- JFNK pas testé.

2.2. Comparaison

Alkaline water
(Dirichlet)



Homogenous
Neumann
conditions



- Dissolution d'un minéral sous l'attaque d'une eau argileuse (on considère uniquement de la diffusion moléculaire avec une diffusion de pore notée d)
- Intéret et difficulté: suivre les fronts de précip-dissol.
- $\Delta t / \Delta t_0$ varie dans $[0.1, 10]$ avec $\Delta t_0 = \Delta x^2 / d$
- $M = 5, N = 40, p = 200$.

2.2. Comparaison

| Algorithms | CPU / it | CPU / it | CPU / it | 1 it |
|-------------------------|-------------|--------------|-------------|------|
| FP | 92 / 40.3 | 77.6 / 133.3 | 75.2 / 181 | 1 |
| CG-ND | 72.3 / 12.7 | 38.3 / 24.3 | 33.9 / 29.7 | 2.61 |
| Newton-ND | 91.8 / 2.72 | 29.2 / 3.3 | 19.7 / 3.1 | 15.1 |
| $\Delta t / \Delta t_0$ | 0.1:1 | 0.1:5 | 0.1 : 10 | |

■ Coût CPU: **PF > GC-ND > Newton-ND.**

■ À nuancer.

■ En pratique, $M \simeq 20$ donc plus de calcul de chimie.

■ Taille du système linéaire supérieure.

■ Travail sur le préconditionnement.

3.1. Modèle simplifié (cinétique)

- notations $x^+ = \max(0, x)$ et $x^- = \max(0, -x)$.
- W :minéral, U et V :espèces aqueuses.
- $W + \beta^- V \Leftrightarrow \alpha U + \beta^+ V$, réaction de précipitation-dissolution de constante K .
- on peut montrer que la cinétique de cette réaction est donnée par

$$r = \lambda(F(u, v)^+ - \text{sign}^+(w)F(u, v)^-)$$

avec u, v, w concentration en mol/L de solution et λ la constante de vitesse

$$F(u, v) = \frac{u^\alpha v^{\beta^+}}{K} - v^{\beta^-}$$

3.1. Modèle simplifié (transport)

- uniquement diffusion moléculaire, porosité constante, VER.
- pour $(x, t) \in Q_T = \Omega \times (0, T)$

$$u_t(x, t) - \Delta u(x, t) = -\alpha r ,$$

$$v_t(x, t) - \Delta v(x, t) = -\beta r ,$$

$$w_t(x, t) = r .$$

et: $r = \lambda(F(u, v)^+ - \text{sign}^+(w)F(u, v)^-)$

- difficulté: terme réactif pas continu ($\text{sign}()$), de signe inconnue; sort des cas de réaction diffusion de la littérature.
- ordre de la réaction $\max(\alpha + \beta^+, \beta^-)$.
- CL : Dirichlet inhomogène (trace de fn $H^1(Q_T)$).

3.1. Littérature

1. Réaction diffusion (dynamique des populations...) [Hilhorst, van der Hout, Peletier 96](#), [Bothe Hilhorst 03](#)... Termes réactifs souvent plus régulier (C^1). (transformation de Legendre, fn de Lyapunov, difficiles à appliquer).
2. Diffusion & convection & dissolution & precipitation [van Duijn, Pop 04](#). Modélisation à l'échelle du pore, réaction se produit uniquement à la surface du grain. (existence & unicité). Poursuivi par V. Devigne.
3.
 - à l'échelle du VER, beaucoup de travaux, [Eymard et al. 99](#), [Pousin 00](#) (1 esp aqueuse, 1 esp minérale).
 - Pas d'étude mathématique avec des réactions d'ordre $\neq 1$ avec plus de 1 esp aqu.

3.2. Résultats mathématiques

- Pb discret (VF centré, implicite, maillage admissible):
 - Existence de solutions discrètes.
 - Estimations (compacité pour $\lambda < +\infty$)
- Pb continu:
 - Caractérisation des solutions faibles.
 - Existence de solutions faibles (convergence d'une sous suite de solutions discrètes).
 - Unicité (F lipschitzienne).
- Validation numérique du schéma:
 - Calcul d'une solution analytique formelle ($\lambda \rightarrow +\infty$, 1D espace).
 - Comparaison à la solution numérique pour λ grand.

3.3. Comparaison des méthodes

■ Intérêt:

| | Newton | GCNL | PF |
|--------------------|----------------------|------|-------------------|
| cinétique | | | |
| $\lambda < \infty$ | jacobienne exacte | | pb non symétrique |
| thermo | | | |
| $\lambda = \infty$ | jacobienne approchée | | pb “symétrique” |

- ■ Cas où GCNL marche. (symétrique vs pas symétrique)
- Tester des préconditionneurs sur un cas où plus de choses peuvent être dites.
- BiCGStab non linéaire pour cas non symétrique (à faire).

3.3. Comparaison des méthodes

■ $\lambda < \infty$:

$$\text{mat jacobienne} = \begin{bmatrix} TRA & 0 & \alpha I_N \\ 0 & TRA & \beta I_N \\ D_1(\lambda, \Delta t, l) & D_2(\lambda, \Delta t, l) & I \end{bmatrix}$$

avec $D1$ et $D2$ diagonale monotone en $\lambda, \Delta t$.

■ $\lambda = \infty$:

$$\text{mat jacob} = \begin{bmatrix} TRA - I_N & 0 \\ 0 & TRA - I_N \end{bmatrix} \nabla \Psi + \begin{bmatrix} I_N & 0 \\ 0 & I_N \end{bmatrix},$$

avec $\nabla \Psi$ matrice bloc avec blocs diagonaux: $\begin{bmatrix} P_{11} & P_{12} \\ P_{21} & P_{22} \end{bmatrix}$

3.3. Comparaison des méthodes

- premiers résultats:

| | Newton | GCNL | PF |
|--------------------|----------------------|----------------|----------|
| cinétique | cvg en 2 it | - | 3 it |
| $\lambda < \infty$ | jacobienne exacte | non symétrique | |
| thermo | en cours | en cours | en cours |
| $\lambda = \infty$ | jacobienne approchée | symétrique | |

- PF prec par le linéarisé.
- cinétique: Newton cvg bien pour $Fourier = 50$.
- thermo: $Fourier = 10$
- BiCG: à faire

Conclusion - perspective

- Couplage:
 - maquetage 1D espace avec chimie externe:
Temps CPU: Newton < GCNL < PF sur les cas étudiés.
 - maquetage 2D espace avec chimie externe:
En cours: Newton vs GCNL avec une Ψ plus importante.
- Étude de problèmes simplifiés
 - Étude mathématique du pb à 3 espèces. OK
 - Étude numérique du pb à 3 espèces. En cours
 - BiCG pour cas non symétrique.
 - Étude de système non linéaire modèle:(pb de Bratu)

$$\Delta u + \lambda e^u = 0 \Omega \subset \mathbb{R}^2, u = 0 \partial\Omega$$