

26 Dissolution réactive et convective : classification des effets des réactions chimiques

V. Loodts, C. Thomas, L. Rongy & A. De Wit

Unité de Chimie Physique Non Linéaire, Service de Chimie Physique et Biologie Théorique, Faculté des Sciences, Université libre de Bruxelles (ULB), CP231, 1050 Bruxelles, Belgique.
vloodts@ulb.ac.be

Nous considérons un système à deux phases, initialement stable, où l'interface est perpendiculaire au champ de gravité. Lorsqu'une de ces deux phases se dissout dans l'autre et augmente la densité de la solution hôte, une stratification instable de densité peut être créée dans le champ de gravité. Une instabilité convective se développe et la solution plus dense coule sous forme de doigts dans le fluide moins dense. Ce phénomène de dissolution convective est largement étudié à cause de sa pertinence pour la séquestration du CO_2 [1]. Dans ce type d'application, le CO_2 est stocké dans les sous-sols où il peut se dissoudre dans des solutions aqueuses ou des mélanges d'hydrocarbures, augmentant de ce fait leur densité. Il est important d'étudier l'effet des réactions chimiques sur la dissolution convective car le CO_2 dissous est susceptible de réagir avec des minéraux dans le site de stockage [2]. Des études ont montré qu'une réaction entre le CO_2 et la phase solide de la matrice poreuse ralentit la croissance de l'instabilité car la réaction consomme le CO_2 à l'origine de la stratification instable de densité [3]. Qu'en est-il dans le cas plus général de réactions où toutes les espèces sont en solution ?

Dans ce contexte, nous étudions l'effet d'une réaction $A+B \rightarrow C$ sur la dissolution convective à l'aide d'équations réaction-diffusion-convection [4]. Nous couplons ces équations à l'équation de Darcy pour le champ de vitesse dans un milieu poreux. Pour calculer la densité de la phase hôte, nous utilisons une équation d'état linéaire en les concentrations. Afin de réduire le nombre de paramètres du modèle, nous supposons que le réactif B et le produit C diffusent à la même vitesse. Nous proposons une classification générique des profils de densité réaction-diffusion. Nous utilisons une analyse de stabilité linéaire avec une approximation de quasi-stationnarité (QSSA) pour analyser la stabilité de ces profils par rapport à l'instabilité convective induite par une stratification instable de densité. Notre but est de comparer la stabilité des profils réactifs avec celle du profil non réactif afin de caractériser l'effet des réactions sur la dissolution convective.

Si le cas non réactif est instable [1], nous montrons que les réactions peuvent avoir un effet déstabilisant quand le produit C est suffisamment lourd pour compenser la consommation du réactif A. En revanche, si C n'est pas suffisamment lourd, l'instabilité peut croître plus lentement que dans le cas non réactif [4]. En particulier, il existe des profils de densité avec un minimum où, localement, du fluide moins dense est situé au-dessus de fluide plus dense. Ce minimum agit comme une barrière stabilisatrice qui freine le développement des doigts dans le reste de la solution [5]. Nous illustrons le cas déstabilisant par un exemple expérimental impliquant du CO_2 et une solution aqueuse de NaOH [4]. Cette étude fonde un cadre théorique général pour comprendre et prédire l'effet des réactions chimiques sur la dissolution convective, notamment en vue de sélectionner des sites de stockage pour le CO_2 . Pour d'autres applications, cette analyse montre qu'il est possible d'adapter les caractéristiques de l'instabilité convective en sélectionnant des réactifs chimiques appropriés.

Références

1. Loodts, V., Rongy, L., De Wit, A., Chaos 24, 043120 (2014).
2. Jun, Y.-S., Giammar, D. E., Werth, C. J., Environ. Sci. Technol. 47, 3 8 (2013).
3. Andres, J. T. H., Cardoso, S. S. S., Phys. Rev. E 83, 046312 (2011).
4. Loodts, V., Thomas, C., Rongy, L., De Wit, A., Phys. Rev. Lett. 113, 114501 (2014).
5. Budroni, M. A. et al., J. Phys. Chem. Lett. 5, 875 881 (2014).