

Approche méthodologique de la modélisation du transport des HAP dans les sols et les eaux

Olivier Bour, Claire Rollin, Hafid Baroudi, Michel Garcia, Annelise Emonet, Michel A. Bues, Pierre Le Thiez, T. Blondel, Jackie Schwartz, Férid Ben Slimane, et al.

▶ **To cite this version:**

Olivier Bour, Claire Rollin, Hafid Baroudi, Michel Garcia, Annelise Emonet, et al.. Approche méthodologique de la modélisation du transport des HAP dans les sols et les eaux. 1. Rencontre Nationale de la Recherche sur les Sites et Sols Pollués : Bilans et Perspectives, Dec 2002, Paris, France. ineris-00972359

HAL Id: ineris-00972359
https://ineris.hal.science/ineris-00972359

Submitted on 3 Apr 2014

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.

Approche Méthodologique de la modélisation du transport des HAP dans les sols et les eaux

O. Bour, C. Rollin, H. Baroudi (1) ; M. Garcia (2) ; A. L. Emonet, M. Bues (3) ; P. Le Thiez (4) ; T. Blondel (5) ; J. Schwartz (6) ; F. Benslimane (7) ; D. Guyonnet (8).

(1) INERIS, Parc technologique Alata – B.P. 2, 60550 Verneuil-en-Halatte
Olivier.bour@ineris.fr
(2) FSS International r&d, 1956, avenue Roger Salengro, 92370 Chaville
(3) LAEGO, ENSG, Rue du Doyen Marcel Roubault, B.P. 40, 54501 Vandoeuvre-les-Nancy Cedex
(4) IFP, 1 et 4, avenue de Bois-Préau, 92852 Rueil-Malmaison Cedex
(5) Cabinet Conseil Bondel, Le parc technologique de Lyon, 12 allée Joliot Curie, Bât. B2, 69791 Saint Priest Cedex.
(6) ANTEA, 3 avenue C. Guillemin, BP 6119, 45061 Orléans Cedex 2
(7) ICF Environnement, 14 à 30 rue Alexandre, Bât. C, 92635 Gennevilliers Cedex
(8) BRGM, 3 avenue C. Guillemin, BP 6009, 45060 Orléans Cedex 2

Afin de préciser le cadre d'utilisation de codes de transport de polluants dans les sols et les eaux, un programme d'intercomparaison de méthodes et de codes a été mis en œuvre avec la collaboration de huit équipes appartenant à des instituts de recherche ou des bureaux d'études. Parmi les types de polluants étudiés, les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) ont fait l'objet de simulations par deux groupes de travail. Le premier groupe, composé de cinq équipes, s'est intéressé à leur comportement en phase dissoute à partir d'un cas réel de pollution. Disposant des même données d'étude, chaque équipe avait pour mission de concevoir un modèle conceptuel (description géologique, définition de la source, paramètres d'écoulement et de transport) et de simuler la pollution de la nappe avec le code de son choix. Les résultats obtenus montrent des différences significatives qui trouvent leur explication dans les paramètres des modèles conceptuels adoptés plus que dans les simulateurs choisis. Cet exercice a confirmé l'importance des paramètres suivants qui sont souvent incertains mais justifieraient d'être mieux appréciés lors de diagnostics : paramètres hydrodynamiques (détermination du champ de vitesse), coefficient de partition (pour chaque horizon géologique), temps de demi-vie du ou des polluants, extension de la source de pollution.
Le second groupe a étudié les écoulements en phase libre (phase liquide non aqueuse) sur un cas théorique inspiré d'un cas réel de déversement massif de naphtalène. La modélisation a été conduite par trois équipes avec trois codes polyphasiques différents (SIMUSCOPP, TOUGH/T2VOC, UTCHEM). Cet exercice comprend le suivi du déversement et de la migration du naphtalène sous formes liquide et dissoute sur une distance de 300 m et une durée de 10 ans. Le naphtalène révèle un comportement d'hydrocarbure " lourd " avec une phase huile (partiellement miscible) qui tend à descendre à travers la nappe. Ce comportement a été reproduit par chacune des équipes, de manière plus ou moins complète en fonction des possibilités de modélisation offertes par les codes. Les résultats obtenus permettent de vérifier la cohérence des différentes approches polyphasiques entre elles. Bien que plus complexe (paramètres plus nombreux, difficulté numérique accrue), l'approche polyphasique se justifie pour mieux comprendre et déterminer la répartition spatiale de HAP en profondeur dans une nappe.

1. INTRODUCTION

La réalisation d'une étude détaillée des risques de transfert de la pollution dans les sols et les eaux nécessite de se préoccuper du devenir de la source de pollution. Des modèles numériques sont souvent employés pour décrire la migration et le transport des polluants et pour prédire l'évolution de la pollution. Le choix des modèles et de leur mise en œuvre dépend fortement de l'importance et de la qualité des données du diagnostic. Connaître les limites d'application d'une approche de modélisation est également souhaitable pour améliorer le processus de prise de décision.

Le programme de recherche TRANSPOL a été conduit de manière à apporter des éléments de décision concernant la modélisation de différents groupes de polluants aux comportements similaires (HAP, métaux, hydrocarbures). Les HAP ont un comportement particulier dû à leur forte affinité pour la matière organique, leur faible solubilité et leur densité dans le cas de pollutions massives. Ce comportement justifie de s'intéresser au transport des composés solubles par les nappes mais également aux écoulements en phase liquide propre plus dense que l'eau. Ces deux approches complémentaires ont été développées pour le cas du naphtalène. La raison de ce choix se trouve dans l'utilisation fréquente du naphtalène comme traceur d'une pollution par des HAP du fait de sa plus forte solubilité et de sa faible capacité d'adsorption (mobilité accrue).

2. MODELISATION DU COMPORTEMENT EN PHASE NON AQUEUSE DU NAPHTALENE

2.1. Caractéristiques du cahier des charges de la modélisation

Le cahier des charges [1] proposé aux trois équipes participantes (INERIS, INERIS-LAEGO-IFP, FSS) est inspiré de l'article de Panday & al.[2]. Il traite le cas d'un déversement accidentel de pétrole brut. A la suite d'une rupture de pipeline, un volume total d'huile de 105 m^3 s'est infiltré à travers une section de 169 m^2 pendant une durée de 6,9 jours. Cette infiltration s'est produite à 2 m de profondeur, dans la zone non saturée de 4,5 m d'épaisseur d'un aquifère d'une puissance totale de 22,5 m (cf Figure 1). Au droit de la pollution, la nappe a un gradient moyen de 0,0026. Les propriétés du sol, composé de sable riche en quartz, sont décrites dans l'article. Il n'en est pas de même du produit déversé qui consistait à l'origine en une huile brute. Les caractéristiques particulières du naphtalène, proposées dans le cahier des charges, sont reproduites dans le tableau 1.

Paramètres	Naphtalène
Viscosité dynamique (Pa.s)	$7,3\ 10^{-4}$
Masse volumique (kg/m^3)	1145
Coefficient de diffusion dans l'eau (m^2/s)	$7,18\ 10^{-10}$
Coefficient de diffusion dans l'air (m^2/s)	$7,06\ 10^{-6}$
Coefficient de diffusion dans l'huile (m^2/s)	$1,3\ 10^{-9}$
Tension interfaciale entre l'air et l'huile (N/m)	0,0312
Tension interfaciale entre l'huile et l'eau (N/m)	0,0361
Tension interfaciale entre l'air et l'eau (N/m)	0,072
Solubilité (g/m^3)	35

Tableau 1 - Paramètres physico-chimiques du naphtalène utilisés

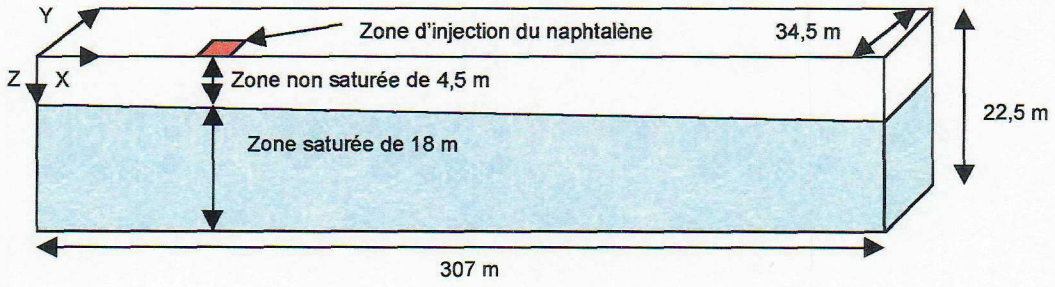


Figure 1 - Domaine à modéliser

Pour favoriser la comparaison des résultats, un maillage commun a été proposé aux trois équipes. Par raison de symétrie du problème, seule la moitié du domaine est modélisée.

2.2. 2.2 Résultats des simulations

Si les trois simulateurs peuvent modéliser des écoulements polyphasiques et offrent des modèles de pression capillaire et de perméabilités relatives équivalents [3,4], les limitations de certains ont eu pour conséquence quelques adaptations du cas d'étude à simuler. Le code UTCHEM V9.3 est utilisé en 2D pour modéliser uniquement la zone saturée suivant une coupe verticale alignée sur la direction d'écoulement. La recharge pluviométrique et la diffusion dans l'air ne sont pas prises en compte. Les codes SIMUSCOPP et TOUGH2/T2VOC permettent une modélisation 3D complète du problème, à l'exception de la dispersion longitudinale pour le code TOUGH2/T2VOC. L'historique de la pollution est décomposé en trois étapes de simulation comme suit : 1) conditions initiales d'écoulement hydrostatique de la nappe libre avec recharge (pour SIMUSCOPP et TOUGH2/T2VOC), 2) injection du naphtalène pendant 6,9 jours dans la zone non saturée (zone saturée pour UTCHEM), 3) continuation de la migration du naphtalène pendant 10 ans. L'évolution générale du profil de saturation est comparable pour les 3 codes étudiés. Le naphtalène migre rapidement per descendum pour constituer une lentille aplatie de phase pure au mur de l'aquifère. Le volume de cette lentille décroît lentement au fur et à mesure de la dissolution du naphtalène.

L'évolution des concentrations en naphtalène dans la nappe est suivie sur quatre points d'observation A, B, C et D situés à des distances respectives de 50 m, 100 m, 150 m et 200 m de la source dans la direction d'écoulement. L'évolution typique des concentrations dans l'eau au cours du temps est illustrée à la figure 2 (résultats de SIMUSCOPP [5]). Le panache de polluant se développe préférentiellement au fond de la nappe où le naphtalène a aussi tendance à s'accumuler en phase liquide. Les concentrations y sont plus fortes et peuvent atteindre la valeur de solubilité même à des distances importantes.

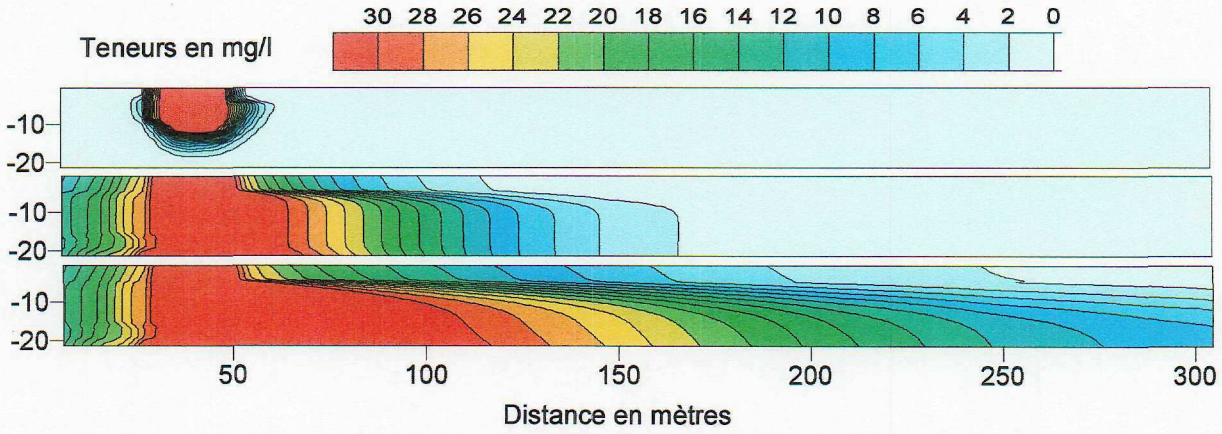


Figure 2 - Profil longitudinal de la teneur en naphtalène dissous dans la phase aqueuse à 10 jours, 2 ans et 8 ans, résultats provenant de la simulation par SIMUSCOPP

Ce phénomène est accentué par la recharge qui constitue un apport d'eau météorique en aval de la source de pollution lorsqu'elle est prise en compte comme ici dans SIMUSCOPP et TOUGH2/T2VOC. Si les trois codes réussissent à reproduire ce type de panache, les temps d'arrivée et les concentrations sur les points d'observation varient plus ou moins en fonction des codes (figure 3). Sur ces résultats encore intermédiaires, les différences s'expliquent en partie par des conditions d'écoulement différentes entre les modèles. Ces conditions déterminent le champ de vitesse et agissent donc de façon significative sur le transport comme cela a pu être aussi vérifié par le groupe de travail s'intéressant aux HAP solubles. SIMUSCOPP et TOUGH2/T2VOC traitent la nappe libre comme la superposition d'un écoulement régional (conditions de potentiel ou de flux en amont et en aval) et d'une

recharge. Ce couplage produit un gradient de charge qui varie avec des flux qui augmentent de l'amont vers l'aval dans le sens de l'écoulement.

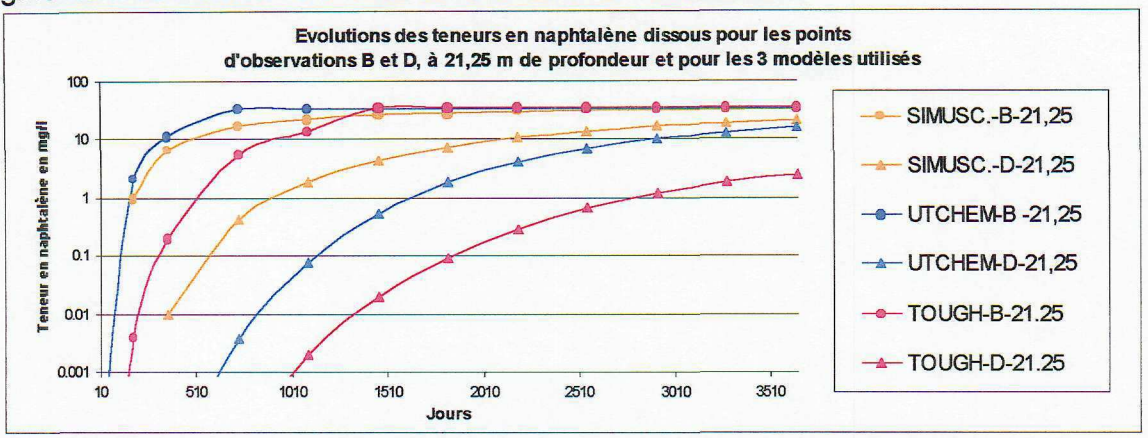


Figure 3 - Courbes de restitution des concentrations en naphtalène dissous simulées dans l'eau en fond de nappe par SIMUSCOPP, UTCHEM et TOUGH2/T2VOC

Les conditions aux limites doivent être choisies pour reproduire la cote et le gradient de nappe voulus à l'endroit de la source de pollution. En faisant l'hypothèse d'une nappe captive sans recharge, UTCHEM tend à surestimer les concentrations dans les parties supérieures de l'aquifère. Tous ces aspects sont en cours de vérification et des améliorations sont attendues sur les modèles.

3. MODELISATION DU COMPORTEMENT EN PHASE DISSOUTE DU NAPHTALENE

3.1. Cas réel et hypothèses retenues

Un exercice d'intercomparaison [6] des résultats de modélisation a été conduit à partir des données provenant du diagnostic d'un site de cokerie où une géologie relativement complexe a été reconnue (cf figure 4). Une nappe libre localement contaminée est présente dans les formations superficielles surmontant la nappe régionale de la craie. La pollution rencontrée sur le site est localisée essentiellement dans les terrains superficiels ainsi que dans la nappe superficielle des graves. Les données fournies aux participants comprennent les teneurs en HAP au droit des points d'observation de la qualité de la nappe des graves et de la nappe de la craie ainsi que la synthèse de la reconnaissance des sols. Des gammes de paramètres ont été proposées aux participants. Ces valeurs sont celles typiquement disponibles dans le cadre d'une évaluation détaillée des risques de transfert vers les eaux souterraines.

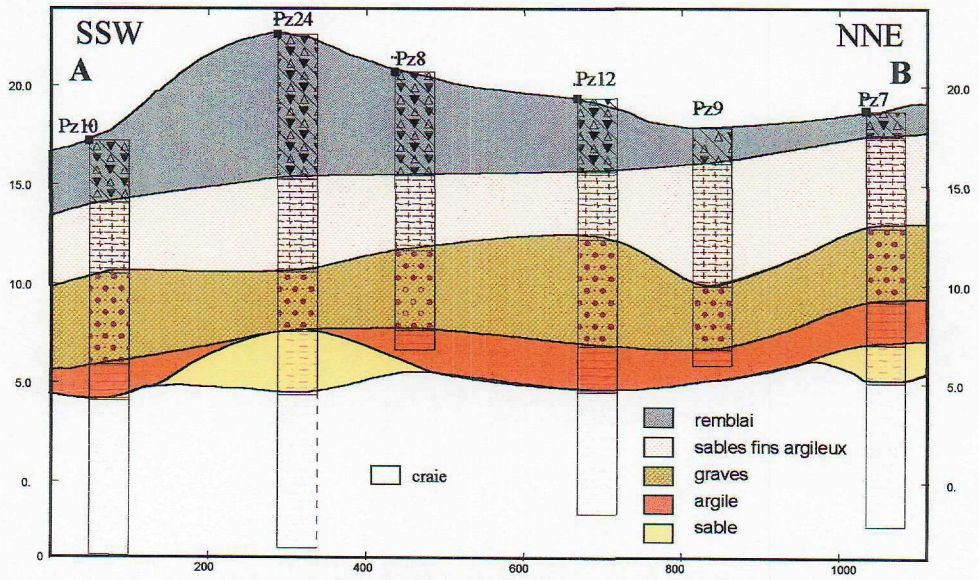


Figure 4 - Géologie du cas réel étudié

La présence d'une nappe superficielle constituant un vecteur de la pollution et une source secondaire séparée de l'aquifère cible de la pollution par un niveau d'argile a nécessité de mettre en œuvre une approche par un modèle multicouche par chacune des équipes. Le tableau 2 ci-dessous récapitule les différences des approches réalisées par les cinq équipes participantes (INERIS, BRGM, FSS-TAUW, ANTEA, CNRSSP) pour les quatre codes utilisés (MODFLOW/MT3D, MISP, MARTHE V5.4, FEFLOW V4.7).

Paramètres du modèle		Amplitude de variation
Surface de la source considérée		0,5 ha – 2,4 ha
Coefficient de retard	graves	1,6 – 31,6
	argile	1,63 – 78
	craie	5,5 – 49,6
Perméabilité de l'argile en m/s		$5\ 10^{-8}$ – $1\ 10^{-9}$
Dispersivité longitudinale en m	graves	20 – 40
	argile	0,25 – 5
	craie	10 - 70

Tableau 2 - Amplitude de variation des principaux paramètres choisis par les participants

3.2. Résultats des simulations

Des variations de plusieurs ordres de grandeur sont observées pour la prévision à long terme des teneurs en naphtalène dans la nappe de la craie (cf figure 5).

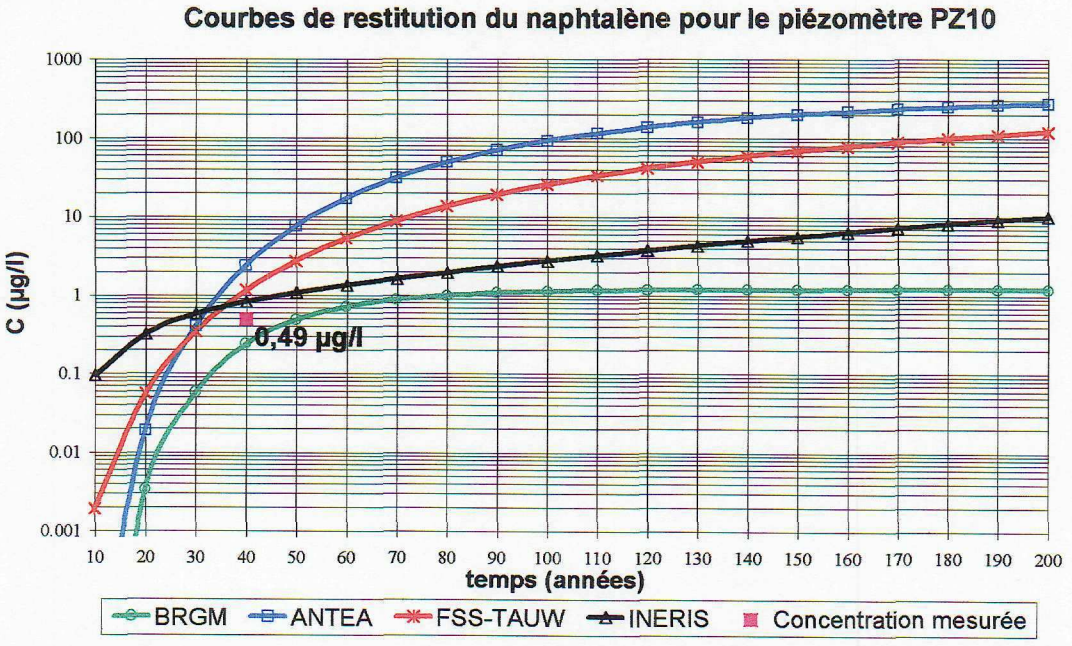


Figure 5 - Simulation de la concentration en naphtalène d'un piézomètre de la craie

Les choix des participants concernant la perméabilité et la dispersivité de l'argile ainsi que les facteurs de retard sont particulièrement cruciaux et présentent des amplitudes de variation dépassant un ordre de grandeur. Cette amplitude de variation est plus faible pour la surface de la source choisie et les paramètres de dispersivité dans les niveaux des graves et de la craie. Le milieu anaérobie de la nappe de la craie n'a pas permis

l'intégration du facteur de biodégradation. Dans le but de réduire les incertitudes, des reconnaissances complémentaires de la perméabilité des argiles et des mesures en laboratoires du coefficient de partage ont été réalisées par la suite.

4. CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Les deux exercices d'intercomparaison des modélisations de transfert du naphtalène font apparaître une forte variabilité des résultats prédits par les différentes équipes tout en apportant des enseignements. Le comportement en phase non aqueuse du naphtalène est nettement à rapprocher de celui de mélanges lourds de HAP tel que la créosote. La phase pure non aqueuse migre verticalement *per descendum* jusqu'à rencontrer un contraste de perméabilité. Elle peut former dans le cas d'une pollution massive une source de pollution secondaire bien plus intense et durable que la pollution résiduelle en zone non saturée. Le comportement en phase aqueuse des HAP est fortement tributaire des champs de vitesse modélisés et des paramètres de transfert choisis et/ou mesurés. La faible solubilité des HAP induit des sources quasi-continue nécessitant des modélisations sur des périodes longues pour atteindre les pics ou paliers de concentration. L'appréciation de l'atténuation naturelle des HAP devient donc prioritaire dans ce cas et nécessite des mesures appropriées des facteurs de cette atténuation. Des travaux sont encore nécessaires pour cerner les relations existant entre le transfert du naphtalène et celui concernant les autres HAP. Une meilleure reconnaissance de ces paramètres ainsi qu'une représentation plus fidèle de la source de pollution sous ces différentes phases miscibles ou non miscibles constituent les voies de futures thématiques de recherche liées au transfert des HAP.

5. REMERCIEMENTS

Nous remercions l'ensemble des participants au programme TRANSPOL pour leur contribution à ce programme de recherche ainsi que le Ministère de l'Environnement et du Développement Durable pour le soutien financier accordé à celui-ci. Les études de sensibilité réalisées avec le code SIMUSCOPP ont pu été dépouillées grâce à l'aide de S. Floriat de l'École de Géologie de Nancy. Nous remercions également le professeur G. Pope de l'Université d'Austin au Texas pour avoir mis à disposition pour cette recherche le code UTCHEM V9.3.

6. REFERENCES

[1] Lebon V., Bour O. – TRANSPOL – Intercomparaison des méthodes et des modèles de migration de polluants dans les sols et les eaux. Proposition de cas-type 1(version 1.1) Rapport INERIS-SSE-99-21EP02/R04 du 19 avril 1999, 8 pages.

[2] Panday S., Wu Y.S., Huyakorn P. S., Wade S.C., Saleem Z.A. – A composite numerical model for assessing subsurface transport for oily wastes and chemical constituents. J. Contam. Hydrol., Vol. 25, 39-62.

[3] Van genuchten M.Th. – A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils. Soil Sci. Soc. Am. J., vol 44 (1980), 892 – 898.

[4] Parker J.C., Lenhard R.J. and Kuppusamy T. – A parametric model for constitutive properties governing multiphase flow in porous media. Water Resources Research, Vol 23, N°4, 618 – 624, 198.

[5] Emonet A., Floriat S. – Résultats pour le cas-type. Rapport LAEGO-ENSG LG.X1.INE.PSI.RPRE.02.0331.A de mai 2002, 26 pages.

[6] Rollin C., Baroudi H., Benslimane F. – Groundwater risk assessment for a polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAH) contaminated site ; benchmarking and validation of numerical transport models, 2001, Water Pollution IV, Wit Press, 47-55.