

Etude de la migration du trichloréthylène dans une colonne de sable : comparaison entre des résultats numériques et expérimentaux

Annelise Emonet, Michel A. Bues, Constantin Oltean, Olivier Bour, Hafid
Baroudi, Pierre Le Thiez

► To cite this version:

Annelise Emonet, Michel A. Bues, Constantin Oltean, Olivier Bour, Hafid Baroudi, et al.. Etude de la migration du trichloréthylène dans une colonne de sable : comparaison entre des résultats numériques et expérimentaux. 1. Rencontre Nationale de la Recherche sur les Sites et Sols Pollués: Bilans et Perspectives, Dec 2002, Paris, France. ineris-00972360

HAL Id: ineris-00972360

<https://hal-ineris.archives-ouvertes.fr/ineris-00972360>

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.

Étude de la migration du Trichloroéthylène dans une colonne de sable. Comparaison entre des résultats numériques et expérimentaux.

Annelise EMONET⁽¹⁾, Michel A. Buès⁽¹⁾, Constantin Oltean⁽¹⁾, Olivier Bour⁽²⁾, Hafid Baroudi⁽²⁾, Pierre Le Thiez⁽³⁾

(1) LAEGO – ENSG – INPL, Rue du Doyen Marcel Roubault – BP 40, 54501 VANDOEUVRE-lès-NANCY CEDEX E-Mail : Annelise.Emonet@ensg.inpl-nancy.fr

(2) INERIS, Direction des Risques Chroniques, DESP, Parc Technologique Alata, BP 2, 60550 Verneuil-en-Halatte

(3) IFP, Projet Eaux et Sols Pollués, 1-4 Rue du Bois Préau, 92500 Rueil-Malmaison

RÉSUMÉ

Les solvants chlorés et les hydrocarbures, couramment utilisés dans les activités industrielles, agricoles, militaires ou domestiques, constituent des risques de pollution, à court et long termes, majeurs pour les sols et les eaux souterraines. Le comportement des solvants chlorés dans les sols dépend à la fois des propriétés physiques et chimiques des polluants mais également de celles du milieu poreux considéré (saturation en eau, teneur en matière organique...). La réactivité d'un polluant varie en fonction de la phase – liquide organique, dissoute ou volatile – et de l'état – libre, piégé ou adsorbé – dans lequel il se trouve dans son environnement. Malgré les nombreuses études réalisées sur ces phénomènes, seules quelques unes se sont focalisées sur le comportement de ces polluants dans la zone non saturée et sur l'évolution de leurs concentrations, quelle que soit leur forme, au cours de l'écoulement. Ainsi, nous nous sommes intéressés à la migration d'un solvant chloré (le Trichloroéthylène) dans un milieu poreux homogène à saturation en eau variable.

Suite à des simulations numériques avec un code de calcul (SIMUSCOPP), nous avons mis au point et réalisé un dispositif expérimental en 2 dimensions permettant de suivre la migration d'un polluant dans un milieu poreux homogène à différentes saturations en eau. Les objectifs de cet article sont de : (i) analyser les expériences de caractérisation des milieux poreux utilisés, (ii) présenter le dispositif expérimental et le protocole associé et (iii) comparer les résultats numériques et expérimentaux.

1. PROBLÉMATIQUE

Les solvants chlorés comptent parmi les polluants les plus répandus dans les sols et les eaux souterraines. Le Trichloroéthylène (TCE) est un DNAPL (Dense Non Aqueous Phase Liquids) [1]. Son utilisation industrielle fréquente en tant que dégraissant le rend responsable de nombreux cas de pollution et justifie une étude spécifique sur son comportement. Dans un milieu poreux, il peut être présent sous sa forme organique, volatile ou dissoute dans l'eau. Chaque forme constitue un risque de pollution à plus ou moins long terme. Nous écarterons dans cette contribution les phénomènes d'adsorption afin de nous focaliser sur les processus de volatilisation et dissolution et ainsi d'en améliorer la compréhension. In fine, ce travail devrait nous permettre de prédire son évolution spatiale et temporelle dans le milieu poreux et nous aidera à préciser la (les) technique(s) de dépollution adéquate(s).

L'écoulement du polluant est régi par des paramètres physiques et chimiques qui lui sont propres mais également par les caractéristiques du milieu poreux (pressions capillaires, conductivité hydraulique, porosité effective...). En outre, son comportement varie en fonction de sa répartition spatiale : dans la zone non saturée (saturation en eau irréductible), il se volatilise au contact de l'air alors que dans la zone saturée, il se dissout dans l'eau.

Différentes études réalisées depuis les années 1980 [2-6] se sont intéressées aux transferts de masse lors de la dissolution des NAPL dans l'eau. D'autres travaux [7-10] ont porté sur les phénomènes de volatilisation des NAPL et plus spécifiquement sur les mouvements des vapeurs [7] ainsi que sur l'influence d'une infiltration d'eau sur leur dissolution [9,10]. L'originalité de notre approche réside dans la mise au point d'un dispositif expérimental en deux dimensions permettant l'étude d'un NAPL au cours de sa migration verticale dans un milieu poreux homogène à saturation en eau variable (zone non saturée, frange capillaire et zone saturée) à partir de résultats de simulations numériques.

2. SIMULATIONS ET CARACTÉRISATION DES MILIEUX POREUX

2.1. Simulations avec SIMUSCOPP

Le logiciel SIMUSCOPP, développé par l'Institut Français du Pétrole, porte sur la SIMULATION des Sites Contaminés par des Produits Pétroliers. Il permet de résoudre les équations de transport sous diverses conditions en vitesses de fluides, pressions et concentrations d'espèces chimiques lors d'écoulements multiphasiques. La prise en compte éventuelle des transferts de masse entre espèces chimiques peut être envisagée. Il est alors possible de suivre l'évolution des composés organiques dans chaque phase (*e.g.* pour le TCE : TCE liquide organique, vapeurs et TCE dissous dans l'eau). Cependant, l'utilisation d'un tel logiciel nécessite une bonne connaissance des propriétés caractérisant le milieu poreux (conductivité hydraulique, porosité effective, pressions capillaires et perméabilités relatives pour chaque couple de fluide). Ainsi, nous avons été amenés à conduire des expériences de détermination de ces propriétés.

Afin de dimensionner un dispositif expérimental permettant d'étudier le comportement d'un polluant organique dans un milieu poreux à saturation en eau variable, une étude numérique a été réalisée avec SIMUSCOPP, en l'utilisant selon une configuration multiphasique et multicomposant. A l'issue de travail, les caractéristiques optimales pour notre dispositif expérimental ont été choisies. Le modèle numérique représentant ce dispositif, une colonne de 20 cm de diamètre interne et de 100 cm de hauteur, est discrétisé en 400 éléments de dimensions 0,5 cm selon l'axe des X (rayon) et de 1 cm selon l'axe de Z (hauteur). Ce maillage est constitué d'éléments réguliers dans un système de coordonnées radiales. Initialement, une zone non saturée située entre 0 et 0,5 m de profondeur, une frange capillaire de 0,3 m et une zone saturée comprise entre 0,8 et 1 m ont été imposées.

Par la suite, une injection de TCE a été simulée dans un milieu poreux représentant un sable. Deux cents millilitres de TCE sont introduits pendant 2 heures, dans la partie

supérieure du modèle. La zone d'injection ($1,5 * 1 \text{ cm}^2$, i.e. 3 mailles dans la direction X et 1 maille dans la direction Z) est située 5 cm sous la limite supérieure du modèle. L'évolution du TCE sous toutes ses formes (liquide organique, volatile, dissoute) est suivie sur un jour. Les simulations numériques effectuées intègrent les caractéristiques des expériences réalisées sur le dispositif expérimental mis au point. Les résultats numériques et expérimentaux sont comparés dans le paragraphe 4.

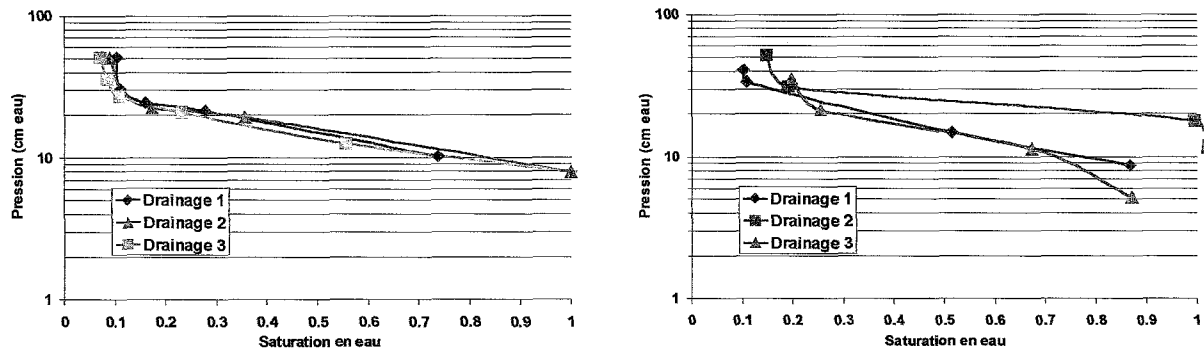
2.2. Caractérisation des milieux poreux

Deux sables ont été étudiés, l'un de rivière recueilli sur les bords de la Moselle et l'autre, dénommé K6, provient d'une sablière située à proximité du Rhin. Tous les deux, sont composés essentiellement de quartz. Les principales valeurs obtenues au cours de ces essais de caractérisation sont reportées dans le Tableau 1.

	Diamètre moyen des grains (mm)	Conductivité hydraulique (m/s)
Sable de la Moselle	0.55	$1.32 \cdot 10^{-4}$
Sable K6	0.57	$1.18 \cdot 10^{-3}$

Tableau 1 – Caractéristiques des sables étudiés

Les courbes de pression capillaire – saturation (courbe de rétention) pour chaque couple de fluides doivent être également connues afin de les intégrer dans le fichier d'entrée de SIMUSCOPP. Une détermination expérimentale de la courbe de rétention pour le couple de fluides gaz – eau a été réalisée (Figure 1 a et b) [11, 12].



(a) Sable de la Moselle

(b) Sable K6

Figure 1 – Pression capillaire en fonction de la saturation en eau

Ces résultats expérimentaux nous ont permis une estimation des paramètres du modèle de Van Genuchten (Tableau 2),

	m	n	$\alpha \text{ [m}^{-1}\text{]}$	$S_{eau} = [1 + (\alpha h)^n]^m$
Sable de la Moselle	0.68	3.16	0.092	
Sable K6	0.68	3.15	0.08	

Tableau 2 – Paramètres de Van Genuchten pour les deux sables

et, par conséquent, une détermination des perméabilités relatives pour tous les couples de fluides dans le système à trois fluides considéré (gaz, eau, TCE) [13, 14]. Les sables ainsi caractérisés constituent les milieux poreux utilisés dans le dispositif expérimental présenté dans le paragraphe suivant.

3. PRÉSENTATION DU DISPOSITIF ET DU PROTOCOLE EXPÉRIMENTAL

Le dispositif expérimental réalisé est une colonne en verre de 20 cm de diamètre et 1 m de hauteur. Cette colonne est équipée de 3 capteurs de pressions et d'une sonde de température. Dix-huit prises de prélèvements sont aménagées sur ses bords afin de permettre un échantillonnage de gaz et d'eau à l'aide de seringues. La durée d'échantillonnage sur l'ensemble des prises de prélèvement est d'environ une demi-heure. Les temps indiqués dans la Figure 2 correspondent au premier prélèvement d'une série. La taille des aiguilles permet de prélever à une distance de 5 cm par rapport à la paroi intérieure de la colonne.

La colonne est progressivement remplie par de l'eau (tranches de 6 cm) et par du sable (fraction de 800 g) et subit des sollicitations entre chaque couche (martèlement sur les parois). Une fois remplie, la colonne est dessaturée par le bas jusqu'à atteindre et maintenir un niveau d'eau d'une vingtaine de centimètres. Le milieu comporte alors une zone saturée de 20 cm à la base, une frange capillaire d'environ 30 cm et une zone non saturée de 50 cm. Après stabilisation, du TCE (200 mL/h pendant 2h) est injecté par le sommet, sous la surface du sable afin d'éviter des pertes par volatilisation vers l'extérieur. Des prélèvements de gaz (100 µL) et d'eau (250 µL) sont alors effectués régulièrement permettant ainsi de suivre le comportement du polluant dans sa phase volatile et dissoute. Ces échantillons, mélangés à du Méthanol, sont analysés par un chromatographe en phase gazeuse muni d'un détecteur à ionisation de flamme. Le gaz vecteur est l'azote et le débit dans la colonne chromatographique est fixé à 5 mL/min. La méthode mise en oeuvre fonctionne avec une température constante de la colonne (isotherme 90°C). Quant aux températures de l'injecteur et du détecteur, elles sont fixées respectivement à 200 et 250°C.

4. ESSAIS ET COMPARAISON DES RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX ET NUMÉRIQUES

Un essai a été mené sur chaque sable. Les résultats expérimentaux sont comparés aux résultats numériques obtenus avec SIMUSCOPP en intégrant les caractéristiques des deux sables.

4.1. Évolution des vapeurs de TCE au cours de l'expérience

Sur la Figure 2, les résultats expérimentaux et numériques peuvent être suivis en fonction du temps, pendant et après l'injection de TCE. Les temps indiqués correspondent pour les expériences au temps du 1^{er} prélèvement de chaque série alors que pour les simulations, il s'agit de l'état du modèle à l'instant considéré.

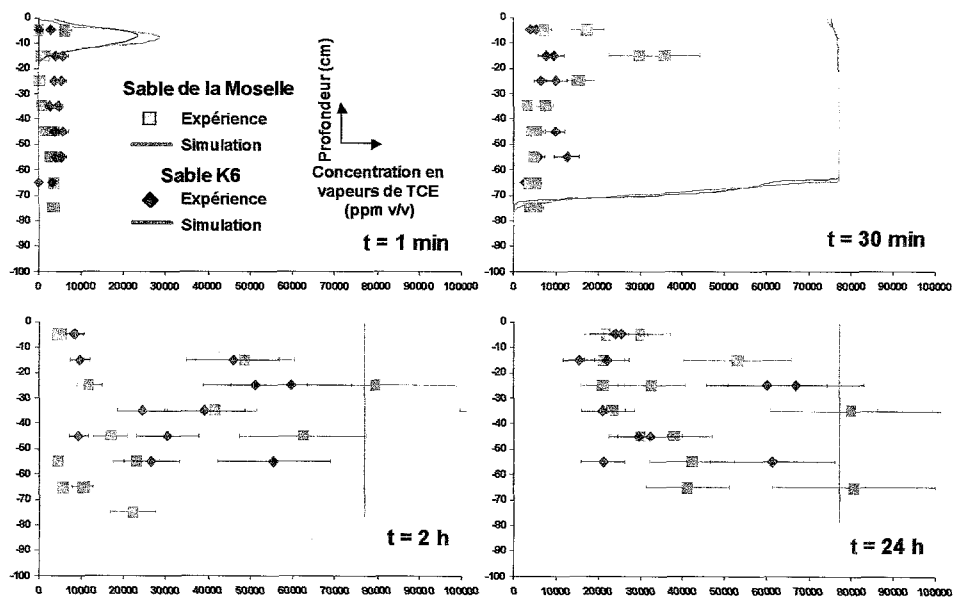


Figure 2 – Évolution des concentrations calculées et expérimentales en vapeurs de TCE

Remarquons tout d'abord que les simulations effectuées aussi bien pour le sable de la Moselle que pour le sable K6 sont pratiquement identiques et que les concentrations en vapeurs atteignent très rapidement (après une heure) une valeur maximale. Cette concentration maximale perdure jusqu'à la fin de l'expérience. En ce qui concerne les résultats expérimentaux, notons que :

- (i) Globalement, les valeurs obtenues au cours de l'expérience avec le sable K6 sont plus faibles que celles de l'expérience avec le sable de la Moselle.
- (ii) L'expérience 1 met en évidence une augmentation des concentrations au sommet de la colonne. Ces concentrations relativement fortes auraient tendance à se déplacer vers le bas de la colonne au cours de l'expérience (de t = 30 min à t = 2 h). Ce comportement est

similaire à celui obtenu lors des simulations, avec un léger retard. En effet, cette augmentation des concentrations calculées est visible dès le début de l'injection de TCE et jusqu'à $t = 30$ min, alors que pour les valeurs expérimentales ce phénomène se produit à partir de $t = 30$ min.

(iii) A la fin de l'expérience (i.e. $t = 24$ h), les mesures expérimentales encadrent les résultats numériques. Cependant, il est difficile d'affirmer que, comme pour les simulations, un état d'équilibre est atteint. Néanmoins, on remarque une bonne adéquation entre les deux expériences à des profondeurs identiques. On peut alors supposer que : soit l'état d'équilibre mis en évidence par les simulations n'est pas encore atteint par les expériences, soit il ne se produit pas aux mêmes seuils de concentration.

4.2. Évolution du TCE dissous au cours de l'expérience

La Figure 3 illustre l'évolution de la concentration en TCE dissous tant pour les simulations que pour les expériences.

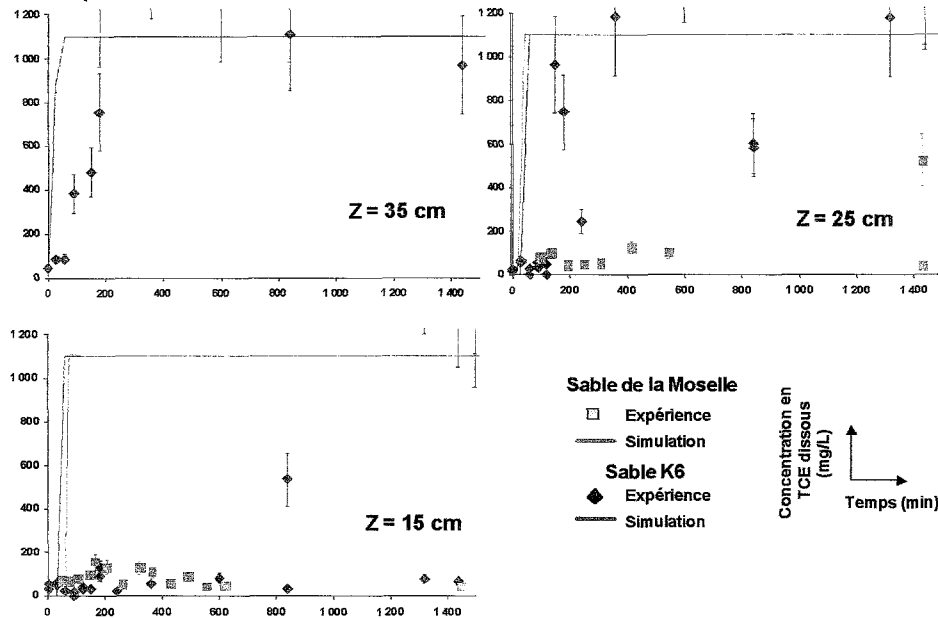


Figure 3 – Évolution des concentrations en TCE dissous au cours du temps

Les résultats numériques sont similaires quel que soit le sable considéré. La concentration maximale en TCE dissous – égale à sa solubilité (1 100 mg/L) – est atteinte très rapidement dans toute la zone non saturée et demeure constante durant toute l'expérience.

Quant aux résultats expérimentaux, ils montrent la difficulté de mener une étude, même en laboratoire, sur ce type de produit. Les mesures expérimentales supérieures à la solubilité peuvent être dues : soit à des analyses de TCE en phase dissoute mais également en phase liquide organique ; soit à des artefacts de mesure ou de prélèvement (incertitudes). Il convient de noter que les prélèvements d'eau à la côte $z = 35$ cm n'ont pas été possibles dans l'expérience 1, aussi seules les valeurs de l'essai 2 sont représentées. Pour les autres profondeurs, les concentrations mesurées au cours de l'expérience 2 sont plus fortes que celles de l'expérience 1 et s'approchent pour les côtes $z = 35$ cm et $z = 25$ cm des résultats numériques et, donc, de la concentration maximale. Pour la côte $z = 15$ cm, les valeurs des deux essais sont faibles sauf en fin d'expérience où les mesures de l'essai 2 s'apparentent aux concentrations simulées.

5. CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Après une caractérisation précise des milieux poreux considérés, un dispositif expérimental a été mis au point afin d'étudier la migration du Trichloroéthylène. Les premiers essais effectués sur ce dispositif sont comparés aux simulations numériques obtenues avec SIMUSCOPP. Ils nous conduisent aux conclusions suivantes :

- (i) L'utilisation du sable de la Moselle ou du sable K6 ne provoque pas de modification importante sur l'une ou l'autre phase du TCE.
- (ii) L'évolution des concentrations en vapeurs de TCE, au cours de ces expériences, semble suivre la tendance indiquée par les simulations, à savoir un développement des vapeurs par le sommet de la colonne et une propagation concomitante à la migration du TCE en phase vers le bas de la colonne. Il faut cependant noter l'existence d'un léger retard entre les phénomènes expérimentaux et leur traduction numérique.
- (iii) L'état d'équilibre correspondant à la saturation complète de la zone non saturée par les vapeurs de TCE ne semble pas nettement mis en évidence par ces expériences. D'autres expériences similaires devraient nous permettre de vérifier ou non l'existence d'un tel équilibre.
- (iv) En ce qui concerne le TCE dissous dans l'eau, les valeurs obtenues dans l'expérience 2 semblent suivre les résultats numériques et s'approcher d'un état d'équilibre – saturation quasi totale de la zone saturée – en fin d'expérience.

Références

- [1] PANKOW J.F. and CHERRY J.A. – Dense chlorinated solvents and other DNAPLs in groundwater: History, Behavior, and Remediation. Waterloo Press, Ontario, Canada, 260 p (1996).
- [2] MILLER C.T., POIRIER-McNEIL M.M. and MAYER A.S. – Dissolution of trapped non-aqueous phase liquids : mass transfer characteristics. Water Resources Research, vol 26, N°11 (1990), 2783-2796.
- [3] POWERS S.E., LOUREIRO C.O., ABRIOLA L.M. and WEBER W.J. – Theoretical study of the significance of non-equilibrium dissolution of non-aqueous phase liquids in subsurface systems. Water Resources Research, vol 27, N°4 (1991), 463-477.
- [4] POWERS S.E., ABRIOLA L.M. and WEBER W.J. – An experimental investigation of non-aqueous phase liquid dissolution in saturated subsurface systems : steady state mass transfer rates. Water Resources Research, vol. 28, N°10 (1992), 2691-2705.
- [5] GELLER J.T. and HUNT J.R. – Mass transfer from non-aqueous phase organic liquids in water-saturated porous media. Water Resources Research, vol 29, N°4 (1993), 833-845.
- [6] POWERS S.E., ABRIOLA L.M. and WEBER W.J. – An experimental investigation of non-aqueous phase liquid dissolution in saturated subsurface systems : transient mass transfer rates. Water Resources Research, vol. 30, N°2 (1994), 321-332.
- [7] SLEEP B.E. and SYKES J.F. – Modelling the transport of volatile organics in variably saturated media. Water Resources Research, vol 25, N°1 (1989), 81-92.
- [8] GRIFFOL J. and COHEN Y. – Contaminant migration in the unsaturated soil zone: the effect of rainfall and evapotranspiration. Journal of Contaminant Hydrology, vol 23 (1996), 185-211.
- [9] CHO H.J., JAFFE P.R. and SMITH J.A. - Simulating the volatilisation of solvents in unsaturated soils during laboratory and field infiltration experiments. Water Resources Research, vol 29, N°10 (1993), 3329-3342.
- [10] JELLALI S., MUNTZER P, RAZAKARISOA O. and SCHÄFER G. – Large scale experiment on transport of Trichloroethylene in a controlled aquifer. Transport in Porous Media. vol 44 (2001), 145-163.
- [11] EMONET A., BUÈS M.A., OLTEAN C., BOUR O. and LE THIEZ P. – Migration of Trichloroethylene in a homogeneous porous medium. 2D numerical study. XIV International Conference on Computational Methods in Water Resources, June 23-28, 2002, Delft, The Netherlands. (in Press)
- [12] EMONET A., BUÈS M.A. et OLTEAN C. – Migration du Trichloroéthylène dans un milieu poreux homogène. Étude numérique en 2D à partir de données expérimentales. Séminaire de l'École doctorale RP2E, 17 janvier 2002, sous presse.
- [13] 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.

[14] 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, p 618 – 624, 198.