

# SOMMAIRE

SOMMAIRE .....	1
CONTEXTE ET OBJECTIFS .....	2
CHAPITRE 1.ANALYSE BIBLIOGRAPHIQUE .....	6
CHAPITRE 2.COMPLEMENTS D'ACQUISITION DE PARAMETRES EN LABORATOIRE .....	10
CHAPITRE 3.EXPERIMENTATIONS SUR LA PLATE FORME EXPERIMENTALE SCERES .....	33
CHAPITRE 4.INVESTIGATIONS SUR SITE REEL .....	159
CONCLUSION GENERALE .....	212
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES .....	216
ANNEXES .....	225
TABLE DES MATIERES .....	236
LISTE DES FIGURES .....	239
LISTE DES TABLEAUX .....	244

## CONTEXTE ET OBJECTIFS

Le présent rapport objet de la convention (n° 99/928/07/589) entre l'Agence de l'Eau Rhin-Meuse (AERM) et l'Institut Franco-Allemand de Recherche sur l'Environnement (IFARE) de l'Institut de Mécanique des Fluides et des Solides (IMFS, UMR 7507 ULP-CNRS) portant sur le comportement des solvants chlorés en milieu souterrain constitue la finalisation de l'approfondissement et l'extension des travaux déjà réalisés dans le cadre de la première convention Inter-Agences/ULP-IFARE n° 96/928/07/566. Les résultats de la première phase (1996-1998) de la convention ont été consignés dans le rapport définitif soumis à l'AERM le 28 octobre 1998. Les travaux de recherche réalisés sur SCERES\* pendant cette première phase, mettant l'accent sur la nécessaire interaction entre la modélisation numérique et l'expérimentation en laboratoire ont déjà abouti à

- la détermination des saturations résiduelles du trichloroéthylène (TCE) en zone non saturée et dans l'aquifère saturé. Ces données ont servi pour la modélisation numérique de l'écoulement triphasique eau-TCE-air. Les différentes étapes d'étude de la migration du polluant ont conduit à la connaissance de l'évolution du domaine contenant le TCE en phase (géométrie, répartition, tarissement)
- la quantification du transfert du TCE en zone non saturée (géométrie du domaine contaminé par les vapeurs, cinétique, répartition des teneurs). Sur ce plan, l'écoulement de la nappe apporte une augmentation non négligeable des concentrations grâce au transfert existant entre l'eau de la nappe chargée en traces dissoutes et l'air du sol situé au dessus de la frange capillaire
- l'évaluation de l'impact de la dissolution des vapeurs de TCE sur la contamination de la nappe avec la mise en évidence d'une extension transitoire du panache, occasionnée par l'infiltration des précipitations se chargeant de vapeurs du polluant
- l'établissement d'un bilan de masse qui fait apparaître l'importance des fuites de vapeurs de TCE de la zone non saturée vers l'atmosphère (70 % de la quantité déversée).

Cette expérimentation de base déjà menée avec le TCE sur SCERES a mis en relief comment un bassin expérimental contrôlé de grandes dimensions constitue un atout primordial dans la simulation et la compréhension des pollutions. Pour contribuer à l'amélioration des connaissances dans l'étude du comportement des solvants chlorés en milieu souterrain, la démarche scientifique poursuivie par les chercheurs de l'IMFS/IFARE se fonde sur le maintien des recherches conduites en laboratoire et sur la plateforme expérimentale SCERES, et effectuées par une hiérarchisation des processus. L'échelle intermédiaire entre le laboratoire et le site réel est une étape indispensable requis pour une meilleure compréhension des mécanismes dans la confrontation des approches de laboratoire et de terrain. L'acquisition des données en situation réelle mais dans des conditions contrôlées à cette échelle intermédiaire est assurée grâce à SCERES. En accord avec l'AERM et ad vu des acquis sur SCERES et de la problématique des cas de pollution d'aquifères par solvants chlorés, dans la démarche proposée pour la poursuite de cette convention, l'IMFS/IFARE s'est fixé initialement comme objectifs la détermination quantitative du/de

- rôle des flux d'eau (précipitations, fluctuations de nappe) et de la frange capillaire sur le transfert de polluant en zone non saturée et dans la nappe
- la présence d'un mélange de solvants chlorés en système aquifère (effet de synergie et dissolution sélective)
- l'influence de la couverture du sol (hétérogénéité de surface) sur les flux en solvants chlorés partant vers l'atmosphère.

Un volet parallèle a porté sur des travaux d'investigations sur un site industriel alsacien contaminé par solvants chlorés avec mise en œuvre du modèle SIMUSCOPP, et des techniques d'acquisition de données par les interventions de partenaires allemands (VEGAS – Université de Stuttgart).

Depuis le 26/09/2001, l'IMFS/IFARE est impliqué dans le programme de R&D « MACAOH » (Modélisation, Atténuation, caractérisation dans les Aquifères des Organo Halogénés) en partenariat avec le BURGEAP, l'IFP et l'IMFT -Toulouse, soutenu par l'ADEME. Ce nouveau contrat avec l'ADEME qui comprend également des travaux faisant partie de la convention de l'IMFS/IFARE avec l'AERM, a entraîné

\* SCERES (Site Contrôlé Expérimental de Recherche pour la réhabilitation des Eaux et des Sols), bassin enterré et instrumenté de dimensions 25m x 12m x 3m, construit en béton armé et reconstituant un aquifère alluvial.

l'application de l'article 3 de la convention inter-Agences qui prévoit la possibilité de modification du délai de réalisation de l'étude. Les actions dans ce cadre, et en interaction avec le projet **MACAOH** prennent en compte des travaux mettant en œuvre les traceurs bisolubles pour qualifier et quantifier une zone source contenant un polluant résiduel en place.

Ainsi, ce rapport fournit des résultats étendus et consolidés et comprend donc quatre chapitres :

### **1- Complément de bibliographie concernant la technique du traceur bisoluble**

### **2- Compléments d'acquisition de paramètres en laboratoire**

Ils ont porté sur :

- la quantification du transfert des traces dissoutes de TCE ou du mélange TCE+PCE vers la matrice solide avec la détermination du coefficient de distribution entre les deux phases
- la détermination des saturations résiduelles du PCE en fonction de la saturation en eau d'une part, et de l'effet de la température sur sa solubilité dans l'eau d'autre part
- la détermination des solubilités effectives de différents mélanges TCE+PCE
- les essais de propagation de traceur bisoluble pour la quantification du polluant résiduel et la détermination d'une cinétique de partage.

### **3- Expérimentations sur SCERES**

Pour mieux valoriser les acquis de l'expérience de base réalisé en novembre 1997 sur SCERES, deux types de modélisation numérique ont été effectués :

- le transport des traces dissoutes à l'aide de MODFLOW-MT3D
- la propagation des vapeurs de TCE dans la zone non saturée à l'aide de VAPOURT (code développé par C. A. Mendoza de l'Université de Waterloo – Canada et mis à disposition à l'IMFS/IFARE).

Cet essai de base sur SCERES nous a ouvert un horizon de recherche concernant l'échange entre la phase liquide et la phase gazeuse et le rôle de la frange capillaire dans la régulation du flux des vapeurs du polluant. Pour cela, deux essais complémentaires utilisant le TCE ont été réalisés en juin et octobre 1999. Leur nécessité a été dictée dans le but d'atteindre les objectifs suivants :

- combler le manque bibliographique concernant les mécanismes de transfert de TCE sous forme vapeur de la zone non saturée vers la nappe à travers la frange capillaire
- suivre le passage du contaminant à travers la frange capillaire, et déterminer le rôle de cette dernière dans la régulation du flux de pollution vers la nappe
- vérifier l'applicabilité de solutions analytiques proposées dans la littérature pour l'évaluation du risque de pollution de la nappe à partir des vapeurs de la zone non saturée (flux et masses)
- comparer la pollution de la nappe induite par l'entraînement des vapeurs sous l'effet des précipitations par rapport à celle provoquée par leur simple contact avec la nappe d'eau en écoulement
- quantifier expérimentalement le flux de vapeurs de TCE quittant la zone non saturée vers l'atmosphère et le comparer à celui de la méthode semi-empirique utilisée dans l'essai de base sur SCERES.

Ces expérimentations complémentaires ont fourni des acquis métrologiques qui sont valorisés dans les expériences ultérieures, en particulier dans la frange capillaire.

Trois essais mettant en œuvre le mélange TCE+PCE dans trois configurations distinctes de la source de pollution ont été conduits pour quantifier les échanges entre zone non saturée (ZNS) et zone saturée (ZS) via la frange capillaire, ainsi que les transferts dans les compartiments du système aquifère et dans l'atmosphère avec la détermination de l'influence d'une fluctuation du niveau de la nappe ou des précipitations. Le cas d'une source de TCE+PCE localisée en ZS (mai 2001) et celui d'une source de TCE+PCE limitée en ZNS (février 2002) ont été abordés dans SCERES en structure bicouche. Celui d'une source de TCE+PCE mise en place en ZNS+ZS avec présence supplémentaire d'un milieu de faible perméabilité en surface de SCERES (décembre 2003) a pour objectif de caractériser le rôle de cette couche superficielle peu perméable sur les transferts.

Ces essais utilisant le mélange sont en partie accompagnés d'une modélisation numérique par SIMUSCOPP et ont donné lieu à l'intervention d'une équipe de l'INERIS pour la mesure des transferts vers l'atmosphère en vue de valider un dispositif de mesure in-situ des **flux** sortants.

Les travaux réalisés sur SCERES portant sur les traceurs bisolubles font suite à une première étude menée par Anjou Recherche et IFP pour le compte de l'Agence de l'Eau Seine-Normandie en 1999. L'étude qui a été menée en laboratoire conclut que la technique du traceur bisoluble paraît prometteuse pour quantifier la présence de polluants non miscibles dans les nappes phréatiques, et suggère la réalisation d'une phase pilote dans SCERES.

L'aptitude de cette méthode à localiser et quantifier une pollution par TCE de faible saturation résiduelle a donc été testée sur SCERES, à l'aide des traceurs isopropanol et 4-méthyl 2-pentanol, par laquelle deux essais ont été mis en œuvre :

- un essai exploratoire qui tient compte des Cléments nouveaux tirés des résultats des tests en laboratoire menés à l'IMFS/IFARE et de la simulation numérique (octobre 2000). Cet essai exploratoire permet de dégager une méthodologie s'appuyant sur des mesures aux puits d'injection et de pompage ainsi qu'en des points intermédiaires;
- un essai de validation bénéficiant des leçons et des gains méthodologiques tirés de l'essai exploratoire (avril 2003).

#### 4- Investigations sur site réel

Un travail d'acquisition de données sur un site industriel Alsacien et d'équipements complémentaires a été réalisé. Pour compléter les données disponibles, plusieurs séries de mesures de niveaux piézométriques et d'analyses d'eau (prélèvements locaux et globaux) ont été effectuées par le BURGEAP et l'université de Stuttgart/VEGAS, et des mesures de vitesses avec pompage sont réalisées par Anjou Recherche et VEGAS. Ces données ont été déterminées en vue d'une approche numérique permettant la construction d'un modèle hydrodynamique pour l'aquifère afin de reproduire l'écoulement de la nappe, et d'une simulation du transport des traces dissoutes afin d'étudier l'évolution du panache de pollution. Le code MODFLOW est utilisé pour résoudre l'équation de diffusivité. Les simulations du transport advectif-dispersif des traces dissoutes du polluant ont été réalisées avec MT3DMS. L'étude plus fine de la source en considérant le transfert par dissolution du polluant et l'épuisement non uniforme de la phase organique au droit de la source a été abordée au moyen du modèle SIMUSCOPP de l'IFP dont une version a été mise en œuvre par l'IMFS/IFARE. Des intercomparaisons des résultats des calculs effectués par ces codes numériques sont proposées.

Les chercheurs qui ont été particulièrement impliqués dans les travaux menés dans le cadre de cette convention sont :

- ✓ Pour l'Institut de Mécanique des Fluides et des Solides de Strasbourg, UMR 7507 ULP-CNRS
  - Hocine BENREMITA, Doctorant, bourse IFARE-EGIDE (1998-2001)
  - Daniel BERTHAULT, DEA et Dipl. ENGEES (Février à Septembre 1999)
  - Marie BLANCHARD, DEA et Dipl. ENGEES (Février à Septembre 1999)
  - Martine BOHY, Doctorante et post-doc, bourse IFARE-EGIDE et Région Alsace (2000-2004)
  - Lotfi DRIDI, Doctorant, bourse IFARE-EGIDE (1997-2000)
  - Pascal FRIEDMANN, Technicien CNRS (depuis septembre 2003)
  - Salah JELLALI, Doctorant, bourse IFARE-EGIDE (1997-2000)
  - Paul MUNTZER, IR CNRS (jusqu'en décembre 2003)
  - Christiane OTT, Technicienne CNRS (jusqu'en juillet 2002)
  - Ingrid POLLET, Doctorante, bourse Région Alsace (2001-2004)
  - Olivier RAZAKARISOA, IR CNRS
  - Gerhard SCHÄFER, MC ULP
- ✓ Pour Anjou Recherche
  - Gilles BARATTO, Ingénieur
- ✓ Pour BURGEAP
  - Julien BINDER, Technicien
  - Fadi MERHEB, Chef de projet, Directeur Agence de Strasbourg

- Dominique POLY, Ingénieur
- Vincent WANTZ, Hydrogéologue

✓ Pour l'Institut Français du Pétrole

- Pierre LE THIEZ, Ingénieur Chef de projet

✓ Pour l'INERIS

- **A. JODART**, Technicien à la direction des risques du sol et du sous sol
- Laure MALHERBE, Ingénieur à l'unité modélisation et analyse économique pour la gestion des risques
- Zbigniew POKRYSZKA, Responsable de l'unité évaluation des risques liés aux émissions de gaz

✓ Collaborateurs VEGAS de l'Institut für Wasserbau de l'université de Stuttgart

- Baldur BARCZEWSKI, Directeur scientifique de VEGAS
- Katrin BATEREAU, Doctorante
- Martin MULLER, Doctorant