

Étude du Comportement des Solvants Chlorés dans les Milieux Souterrains

28 Octobre 1998

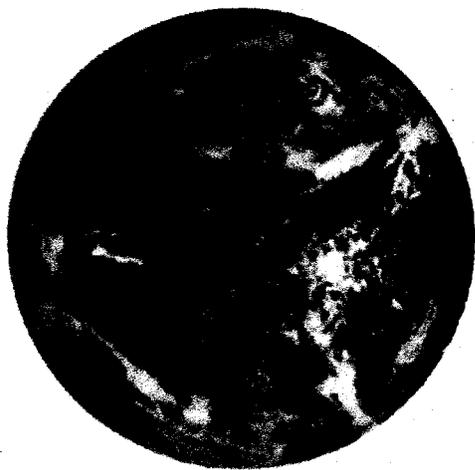


Photo CNES

Ont contribué à la rédaction:

Muntzer P.
Razakarisoa O.
Schäfer G.
Jellali S.
Van Dorpe F.
Le Thiez P.
Josef R.
Come J.M.

**Institut Franco-Allemand de Recherche
sur l'Environnement (IFARE)**
23, rue du Loess - BP 20
67037 STRASBOURG Cedex
Tél: 03 88 10 67 97 Fax: 03 88 10 67 95

Agence de l'Eau Rhin - Meuse
«LeLongeau» - Route de Lessy
Rozéreuilles - BP 19
57161 MOULINS-LES-METZ
Tél: 03 87 34 47 00 Fax: 03 87 60 49 85

ETUDE DU COMPORTEMENT DES SOLVANTS CHLORÉS DANS LE MILIEU SOUTERRAIN

RESUME

La convention entre l'Agence de l'Eau Rhin-Meuse et l'Institut Franco-Allemand de Recherche sur l'Environnement (IFARE, Directeur Lothaire ZILLIOX, DR CNRS) de l'université Louis Pasteur et du CNRS a pour objet de mieux connaître le comportement des solvants chlorés dans le milieu souterrain, et à cet effet de recourir à des essais de simulation physique et numérique conduits au laboratoire et sur l'outil de terrain SCERES (Site Contrôlé Expérimental de Recherche pour la Réhabilitation des Eaux et des Sols, bassin enterré construit en béton armé de 25m x 12m x 3m).

Le bassin expérimental localisé au Campus du CNRS à Strasbourg - Cronembourg reproduit un aquifère contrôlé dans un volume de 900 m³. Dans sa configuration actuelle, il est rempli d'un milieu bicouche : un sable principal ($K \sim 8 \times 10^{-4}$ m/s) qui repose sur une couche de sable plus perméable ($K \sim 6 \times 10^{-3}$ m/s) assurant un drainage au fond. Les milieux poreux sont homogènes et isotropes, et ont été introduits dans le bassin par couches successives de 25 cm d'épaisseur et compactées à l'aide d'une plaque vibrante (densité moyenne après mesures par gamma-densimétrie : 1,56; $d_{50} = 0,4$ mm; $d_{60}/d_{10} = 2,1$)

Ce travail est motivé par le fait que les cas de contamination des eaux souterraines par solvants chlorés sont à l'heure actuelle de plus en plus souvent détectés tant en Alsace que dans d'autres grands aquifères en France et des pays industrialisés. Ceux-ci peuvent être dus au fait que nous héritons aujourd'hui des conséquences de nombreuses infiltrations dans le milieu souterrain mais aussi que les contrôles et analyses sont devenus stricts et réguliers. La nocivité et la toxicité de ces produits sont importantes, et surtout, contrairement aux produits pétroliers, ils ne sont pas décelables dans l'eau au goût et à l'odeur à des teneurs déjà dangereuses. Ils sont lentement biodégradables et peu solubles ce qui explique leur persistance prolongée.

Cette problématique demande un effort de longue haleine tant au niveau de la recherche que de la mise en œuvre des procédés et des méthodologies d'intervention. Elle a conduit l'équipe de la Zafa 2 (Zone-Atelier Franco-Allemande) de l'IFARE, sollicitée et soutenue par l'Agence de l'Eau Rhin-Meuse dans le cadre du programme d'étude Inter-Agences, à élaborer ce projet de recherche (première phase : 1996-1998) portant sur les mécanismes de propagation/ transfert de solvants chlorés en système aquifère, en vue d'acquérir de nouvelles connaissances fondamentales et des compétences pratiques sur ce problème.

L'originalité du projet de recherche de la Zafa 2 réside dans la conception et la mise en œuvre de l'outil expérimental SCERES. La démarche scientifique suivie par la Zafa 2 pour appréhender de façon fiable les processus encore mal connus (migration des fluides non miscibles eau, huile et air en milieu poreux, quantification du transfert dans la phase gazeuse, simulation numérique de l'écoulement polyphasique..), dans l'optique d'une prévention active, consiste à mener des expérimentations sur le bassin SCERES en interaction

permanente avec des expériences conduites sur modèles physiques de laboratoire, et complétés par l'utilisation et la validation de modèles mathématiques. Les expériences envisagées nécessitent la mise en place et l'adaptation de dispositifs de sécurité adéquats et exigés pour la manipulation de solvants chlorés.

La nécessité de programmer des recherches sur SCERES est dictée par :

- le besoin de travailler en situation réelle sur un domaine parfaitement contrôlé en évitant ainsi des coûts très élevés d'investigations sur un " champ accidentel " qui ne répondent le plus souvent que très partiellement aux objectifs fixés par manque de références
- la mise au point de procédés et de modèles transposables sur le terrain. Il est possible en effet d'appliquer des débits adaptés et de disposer d'un espace suffisant pour que les moyens d'intervention réels puissent être utilisés
- la bonne prise en compte de la grandeur de la frange capillaire pour s'affranchir des limites de la taille des modèles physiques de laboratoire, afin que les phénomènes rencontrés soient proches de la réalité
- l'impossibilité d'une représentation unique et universelle du réel ; aussi, c'est par une approche graduée mettant en œuvre des sables naturels sur un site expérimental contrôlé et adapté que les techniques et moyens de dépollution peuvent être mis au point grâce à une meilleure compréhension des mécanismes de base
- l'accès à un véritable banc d'essai de pollution par hydrocarbures et solvants chlorés pour mettre au point et orienter des techniques de décontamination in situ des eaux et des sols.

Les travaux objet de la présente convention portent sur la configuration actuelle du bassin SCERES (milieu bicouche, zone non saturée d'épaisseur 2m, épaisseur de nappe 1m), et visent à aborder pendant la première phase **1996 - 1998** les aspects concernant *la caractérisation de la source de pollution et des paramètres de transfert, le transfert en zone non saturée et dans la nappe et l'évaluation des techniques de reconnaissance*. Des analyses bibliographiques sont proposées pour chacun de ces aspects. Afin d'assurer une sécurité maximale, diverses installations ont été mises en place au laboratoire de la ZAF 2 de l'IFARE. Une partie du laboratoire a été aménagée en local d'étude des solvants chlorés. Ce local fermé et climatisé contient une sorbonne basse permettant d'effectuer, dans les normes de sécurité, tous les essais effectués en colonnes de milieu poreux

Une source de pollution par le trichloroéthylène (TCE, déversement de **8,9** litres) a été créée le **04/11/1997** dans le système aquifère de SCERES. Les caractéristiques de mise en place et de mise en œuvre de cette source ont été conçues et élaborées en apportant le plus grand soin aux précautions nécessaires pour minimiser les phénomènes de volatilisation.

Des prélèvements de milieu poreux sont effectués depuis la surface à l'aide d'une sonde de prélèvement non destructif pour déterminer la configuration du corps d'imprégnation et quantifier les saturations résiduelles. Pour suivre et mesurer le TCE sous forme dissoute à l'aval du corps d'imprégnation, les prélèvements d'eau dans la nappe sont effectués soit à l'aide des capteurs d'eau déjà en place dans le bassin SCERES, soit au moyen de nouvelles cannes spécifiques installées depuis la surface. Les prélèvements d'échantillons de gaz sont réalisés à partir de cannes fixes ou mobiles implantées à proximité de la source et selon les quatre directions. Des dispositifs de mesures de saturation en eau (sondes TDR) sont mis en

place. L'installation d'une station météorologique est également envisagée pour contrôler et mesurer les variations de température et les paramètres liés aux précipitations.

Les travaux réalisés sur le bassin expérimental SCERES en interaction avec les essais de laboratoire ont permis d'étudier le comportement des trois formes de pollution du solvant chloré (TCE en phase piégée dans le sable, TCE dissous dans l'eau et vapeurs de TCE).

Concernant **la caractérisation de la source et des paramètres de transfert**, les études menées en collaboration avec le LEPT-ENSAM de Bordeaux ont permis de mettre en relief la vitesse des échanges eau - TCE, la durée de mise en équilibre en milieu homogène et l'absence de cheminement préférentiel. Au laboratoire de la ZAF 2, les essais effectués en réacteurs fermés ont montré que la concentration d'équilibre du TCE dans l'eau n'est pas influencée de manière significative par la température. Les essais de détermination de saturations résiduelles du polluant en zone non saturée et dans l'aquifère saturée, sur modèles physiques de laboratoire, ont servi pour la modélisation numérique de l'écoulement triphasique eau-TCE-air et la connaissance du volume optimal du polluant, utile dans le dimensionnement de l'expérimentation menée sur SCERES. 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, mode de tarissement).

Sur le plan du **transfert en zone non saturée et dans la nappe**, les efforts qui ont porté sur les protocoles de prélèvement d'échantillons de gaz représentatifs et les techniques de quantification analytique du TCE dans la phase gazeuse ont abouti à une meilleure appréhension de la propagation des vapeurs du polluant. Les principaux résultats obtenus ont permis de :

- quantifier le transfert du TCE en zone non saturée (géométrie du domaine contaminé par les vapeurs, cinétique, répartition des teneurs). Sur ce plan, la progression des vapeurs de **TCE** et l'allure des profils obtenus font apparaître un fort gradient de concentration en profondeur (densité des vapeurs), et une symétrie des teneurs dans les quatre sens transversaux surtout à proximité de la source avec une accentuation dans le sens de l'écoulement lorsqu'on s'éloigne de la source. 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
- évaluer l'impact de la dissolution des vapeurs de TCE sur la contamination de la nappe avec la mise en évidence d'une dispersion transversale déformée et d'une extension du panache occasionnées par l'infiltration des précipitations chargées par **les** vapeurs du polluant. En effet, des augmentations significatives de concentrations dans l'eau ont été enregistrées à 4m et 10m en aval durant plusieurs jours. Ce phénomène est favorisé par l'existence d'une quantité importante de TCE sous forme vapeur dans la zone non saturée. Cette infiltration de pluies chargées en vapeurs de TCE a entraîné l'apparition d'une pollution importante sur des points latéraux situés à 1.5m de l'axe. La seule dispersion du polluant au cours de son transport dans le milieu ne peut expliquer cette situation en contradiction apparente avec l'hypothèse d'un milieu homogène peu dispersif.

Du point de vue de **l'évaluation des techniques de reconnaissance**, un fort besoin de développement et d'innovation des techniques d'investigation de sites contaminés par des solvants chlorés subsiste à l'heure actuelle pour une meilleure identification du foyer de pollution qui facilitera l'application des procédés de remédiation. A ce titre, certains

fournisseurs et utilisateurs de dispositifs de mesures in-situ, incités par l'Agence de l'eau Rhin-Meuse, ont mis à la disposition des chercheurs de la ZIFA 2 de l'IFARE les matériels d'investigation en vue d'une évaluation et d'une validation sur SCERES de méthodes de détection et d'analyse rapides (sondes "goresorber", réactifs Draeger, Photovac avec détecteur PID, moniteur multigaz utilisant la spectrophotoacoustique infra rouge, CPG portable, spectrophotomètre infra rouge à transformée de Fourier). Les études de comparaison de performance de modèles numériques polyphasiques utilisés sur site par les laboratoires et les bureaux d'études ont pu être testées (Codes Marthe, Simuscopp, Swanflow).

Après le suivi des trois formes possibles du solvant chloré dans le système aquifère de SCERES, le bilan de masse de l'expérimentation faisant intervenir 5 termes (la masse de TCE en phase dans le corps d'imprégnation, celle du TCE recueillie au déversoir aval à la sortie du site, celle dissoute dans SCERES, celle existant sous forme vapeur, et celle correspondant aux pertes vers l'atmosphère depuis la surface du sol) a mis en évidence l'importance des pertes de TCE sous forme vapeur vers l'atmosphère (70% de la quantité initialement déversée). Ainsi, pour une pollution principalement située dans la zone non saturée, l'essentiel du mouvement du polluant se déroule sous forme vapeur.

L'expérimentation grandeur nature menée sur SCERES, dans le cadre de cette première convention, a mis en relief comment un bassin expérimental contrôlé de grandes dimensions constitue un atout primordial dans la simulation et la compréhension des pollutions réelles dont la représentation unique et universelle n'existe pas. C'est par cette approche graduée mettant en œuvre un site contrôlé et adapté que les moyens de prévention et les techniques de dépollution peuvent être mis au point grâce à une meilleure compréhension des mécanismes de base.

SOMMAIRE

LISTE DES FIGURES LISTES DES TABLEAUX

INTRODUCTION	1
1- CARACTÉRISATION DE LA SOURCE ET DES PARAMÈTRES DE TRANSFERT .4	
1.1 -ANALYSE BIBLIOGRAPHIQUE	4
1.2 - TRAVAUX EXPÉRIMENTAUX AU LABORATOIRE	9
1.2.1 - Etude par gammamétrie de la dissolution de TCE.....	9
1.2.1.1 - Dispositif expérimental	9
1.2.1.2 - Résultats.....	10
1.2.2 -Détermination de la solubilité de TCE	13
1.2.2.1 - Protocole expérimental	13
1.2.2.2 - Résultats et discussions	14
1.2.3- Détermination des saturations résiduelles en TCE du sable H2F	15
1.2.3.1- En milieu non saturé en eau	15
1.2.3.2 - En milieu saturé en eau	18
1.2.4- Transfert de trichloroéthylène dans l'eau souterraine	19
1.2.5- Rétenion du trichloroéthylène par le sable H2F (en milieu saturé)	25
1.2.6- Détermination des perméabilités relatives du TCE.....	26
1.3- SIMULATION NUMÉRIQUE DE L'INFILTRATION DE TCE	28
1.3.1 Mise en oeuvre du modèle SIMUSCOPP	28
1.3.2- Mise en oeuvre du modèle SWANFLOW	31
2- TRANSFERT EN ZONE NON SATURÉE ET DANS LA NAPPE	38
2.1- ANALYSE BIBLIOGRAPHIQUE	38
2.2- COMPORTEMENT D'UN CORPS D'IMPRÉGNATION DE TCE SUR SCERES	41
2.2.1 -Optimisation du système de déversement	41
2.2.2- Détermination de la quantité à déverser	42
2.2.3- Mise en place de la source de pollution le 04/11/97	43
2.2.4- Suivi du corps d'imprégnation.....	44
2.2.5- Suivi des gaz en zone non saturée	44
2.2.6- Suivi des traces dissoutes dans l'eau	46
2.2.7- Evolution du bilan de masse	50
2.3 -SIMULATION NUMÉRIQUE DU TRANSFERT DES VAPEURS DE TCE DANS LA ZONE NON SATURÉE À L'AIDE DU MODÈLE SIMUSCOPP	53
2.4- INFLUENCE DES FLUX D'EAU VERTICAUX SUR LA DISSOLUTION DES VAPEURS DE TCE	56
2.4.1 -Expérimentation en laboratoire sur colonnes de milieux poreux.....	56
2.4.1.1- Effet de la concentration initiale en vapeur de TCE.....	59
2.4.1.2- Effet du débit d'infiltration	60
2.4.1.3- Effet du volume d'eau infiltrée.....	62
2.4.1.4- Evaluation du TCE dissous dans l'eau irréductible	62
2.4.2- Etude sur SCERES	63
3- EVALUATION DES TECHNIQUES DE RECONNAISSANCE	71
3.1- ANALYSE BIBLIOGRAPHIQUE	71
3.2 -QUALIFICATION D'OUTILS D'INVESTIGATION	74
3.2.1 -Intervenants avec matériels de mesure in situ	74
3.2.1.1- IRH Environnement -Nancy Vandoeuvre :	74
3.2.1.2- Autochim	74

3.2.1.3- W.L. Gore et associates GmbH (GORE) _PUTZBRUNN. Allemagne	75
3.2.1.4 BRGM : Département Analyse et Caractérisation minérale	75
3.2.2- <i>Intervenants avec des modèles de simulation numérique</i>	75
3.2.3- <i>Expérimentation à VEGAS _Stuttgart</i>	76
3.2.4- <i>Apport de Burgéap</i>	77
4- CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES	79
5- ANNEXES	82

N.B : Ce document fait référence à divers annexes (13) qui sont consultables auprès de l'Agence de l'Eau Rhin _Meuse.

Introduction

La convention entre l'Agence de l'Eau Rhin-Meuse et l'Institut Franco-Allemand de Recherche sur l'Environnement (IFARE, Directeur Lothaire ZILL OX, DR CNRS) de l'université Louis Pasteur et du CNRS a pour objet de mieux connaître le comportement des solvants chlorés dans le milieu souterrain, et à cet effet de recourir à des essais de simulation sur l'outil de terrain SCERES (Site Contrôlé Expérimental de Recherche pour la Réhabilitation des Eaux et des Sols, bassin enterré construit en béton armé de 25m x 12m x 3m, et reconstituant un aquifère alluvial).

Ce travail est motivé par le fait que les cas de contamination des eaux souterraines par solvants chlorés sont à l'heure actuelle de plus en plus souvent détectés tant en Alsace que dans d'autres grands aquifères en France et des pays industrialisés. Ceux-ci peuvent être dus au fait que nous héritons aujourd'hui des conséquences de nombreuses infiltrations dans le milieu souterrain mais aussi que les contrôles et analyses sont devenus stricts et réguliers. La nocivité et la toxicité de ces produits sont importantes, et surtout, contrairement aux produits pétroliers, ils ne sont pas décelables dans l'eau au goût et à l'odeur à des teneurs déjà dangereuses. Ils sont lentement biodégradables et peu solubles ce qui explique leur persistance prolongée.

Cette problématique demande un effort de longue haleine tant au niveau de la recherche que de la mise en œuvre des procédés et des méthodologies d'intervention. Elle a conduit l'équipe de la ZAFA 2 (Zone-Atelier Franco-Allemande) de l'IFARE, sollicitée et soutenue par l'Agence de l'Eau Rhin-Meuse dans le cadre du programme d'étude Inter-Agences, à élaborer ce projet de recherche (première phase : 1996-1998) portant sur les mécanismes de propagation/ transfert de solvants chlorés en système aquifère, en vue d'acquérir de nouvelles connaissances fondamentales et des compétences pratiques sur ce problème.

L'originalité du projet de recherche de la ZAFA 2 réside dans la conception et la mise en œuvre de l'outil expérimental SCERES. La démarche scientifique suivie par la ZAFA 2 pour appréhender de façon fiable les processus encore mal connus (migration des fluides non miscibles eau, huile et air en milieu poreux, quantification du transfert dans la phase gazeuse, simulation numérique de l'écoulement polyphasique...), dans l'optique d'une prévention active, consiste à mener des expérimentations sur le bassin SCERES en interaction permanente avec des expériences conduites sur modèles physiques de laboratoire, et complétés par l'utilisation et la validation de modèles mathématiques. Les expériences envisagées nécessitent la mise en place et l'adaptation de dispositifs de sécurité adéquats et exigés pour la manipulation de solvants chlorés.

La nécessité de programmer des recherches sur SCERES est dictée par :

- le besoin de travailler en situation réelle sur un domaine parfaitement contrôlé en évitant ainsi des coûts très élevés d'investigations sur un " champ accidentel " qui ne répondent le plus souvent que très partiellement aux objectifs fixés par manque de références
- la mise au point de procédés et de modèles transposables sur le terrain. Il est possible en effet d'appliquer des débits adaptés et de disposer d'un espace suffisant pour que les moyens d'intervention réels puissent être utilisés

- la bonne prise en compte de la grandeur de la frange capillaire pour s'affranchir des limites de la taille des modèles physiques de laboratoire, afin que les phénomènes rencontrés soient proches de la réalité
- l'impossibilité d'une représentation unique et universelle du réel ; aussi, c'est par une approche graduée mettant en œuvre des sables naturels sur un site expérimental contrôlé et adapté que les techniques et moyens de dépollution peuvent être mis au point grâce à une meilleure compréhension des mécanismes de base
- l'accès à un véritable banc d'essai de pollution par hydrocarbures et solvants chlorés pour mettre au point et orienter des techniques de décontamination in situ des eaux et des sols.

Les travaux objet de la présente convention portent sur la configuration actuelle du bassin SCERES (milieu bicouche, zone non saturée d'épaisseur 2m, épaisseur de nappe 1m), et visent à aborder pendant la première phase 1996 - 1998 les aspects concernant la caractérisation de la source de pollution et des paramètres de transfert, le transfert en zone non saturée et dans la nappe et l'évaluation des techniques de reconnaissance. Les équipes actives sur le projet coopèrent dans le cadre de la ZAHA 2 de l'IFARE, intitulé « Protection des aquifères contre la pollution par hydrocarbures et dérivés ». Les chercheurs qui sont particulièrement impliqués sont :

- Pour le Laboratoire d'Hydrodynamique des Milieux Poreux de l'Institut de Mécanique des Fluides de Strasbourg, UMR 7507 ULP-CNRS

- *Laurent ASTIER, PFE ENSAIS (Février à Juin 1997)*
- *Mehdi BETTAHAR, Doctorant, bourse CIES (1994-1997)*
- *David LOMBARD, DEA et Dipl. ENGEES (Février à Septembre 1998)*
- *Salah JELLALI, Doctorant, bourse CIES (1996-1999)*
- *Paul MUNTZER, IR CNRS*
- *Tuan NGUYEN, PFE ENSAIS (Février à Juin 1998)*
- *Christiane OTT, Technicienne CNRS*
- *Joseph RAPP, AI CNRS*
- ◇ *Olivier RAZAKARISOA, IR CNRS*
- *Gerhard SCHÄFER, MC ULP*
- *François VANDORPE, Doctorant BDI CNRS/Région (1994-1997)*

- Pour le Laboratoire de Recherche Appliquée et de Transfert de Technologie de l'IUT de chimie d'Illkirch Graffenstaden

- *Alain HAZEMANN, IE URS*
- *Paul RIMMELIN, PR, décédé en Sept. 1997*

- Pour l'Institut Français du Pétrole

- *Christian BOCARD, Ingénieur Chef de projet (jusqu'en été 1997)*
- *Pierre LE THIEZ, IR*

- Pour le BURGEAP

0 *Jean Marie CÔME, Ingénieur*

0 *Fadi MERHEB, Ingénieur*

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

0 *Baldur BARCZEWSKI, Dr Ing*

0 *Reinhold JOSEF, Doctorant*

Les collaborations de la **ZAFA 2** avec le Lehrstuhl für Angewandte Geologie - Hydrogeologie des Universités de Karlsruhe et de Tübingen permettent de bénéficier de l'expérience issue des travaux effectués sur le terrain par ces instituts.

4- Conclusions et perspectives

Les travaux réalisés sur le bassin expérimental SCERES en interaction avec les essais de laboratoire ont permis d'étudier le comportement des trois formes de pollution du solvant chloré (TCE en phase piégée dans le sable, TCE dissous dans l'eau et vapeurs de TCE).

Après le suivi de ces trois états possibles du solvant chloré dans le système aquifère de SCERES, le bilan de masse de l'expérimentation faisant intervenir 5 termes (la masse de TCE en phase dans le corps d'imprégnation, celle du TCE recueillie au déversoir aval à la sortie du site, celle dissoute dans SCERES, celle existant sous forme vapeur, et celle correspondant aux pertes vers l'atmosphère depuis la surface du sol) a mis en évidence l'importance des pertes de TCE sous forme vapeur vers l'atmosphère (70% de la quantité initialement déversée). Ainsi, pour une pollution en TCE principalement située dans la zone non saturée, l'essentiel du mouvement du polluant se déroule sous forme vapeur.

Concernant la **caractérisation de la source et des paramètres de transfert**, les études menées en collaboration avec le LEPT-ENSAM de Bordeaux ont permis de mettre en relief la vitesse des échanges eau - TCE, la durée de mise en équilibre en milieu homogène et l'absence de cheminement préférentiel. Ces aspects ont pu être appréhendés grâce à la possibilité de suivi et de quantification en continu par gammamétrie de l'évolution de la saturation en TCE sur colonne de milieu poreux pendant la phase de dissolution par l'eau du corps d'imprégnation. Il est également apparu une persistance de la pollution sous forme dissoute (concentration de l'ordre du mg/l au delà de un mois) alors que le TCE en phase a déjà disparu après une douzaine de jours.

Au laboratoire de la ZIFA 2, les essais effectués en réacteurs fermés ont montré que la concentration d'équilibre du TCE dans l'eau n'est pas influencée de manière significative par la température. La concentration moyenne d'équilibre du TCE dans l'eau, déterminée au laboratoire de la ZIFA 2 à 20°C et 25°C est de 1300 mg/l, mais il faut signaler que les valeurs de celle-ci citées dans la littérature varient énormément selon les auteurs (700 mg/l à 1470 mg/l). La connaissance des saturations résiduelles en TCE est rendue possible par la réalisation de plusieurs types d'essais conduits sur modèles colonnes de milieu poreux en laboratoire avec prise en compte de la teneur en eau du milieu. En éliminant l'effet des forces capillaires présentes en **bas** de colonne (forte accumulation du polluant), la saturation résiduelle moyenne en TCE est de l'ordre de 3% du volume de pores dans la zone non saturée ; ce paramètre est 2 à 3 fois plus élevé en zone saturée. Ces essais de détermination de saturations résiduelles du polluant ont servi pour la modélisation numérique de l'écoulement triphasique eau-TCE-air et la connaissance du volume optimal du polluant, utile dans le dimensionnement de l'expérimentation menée sur SCERES.

L'appréhension de la configuration du corps d'imprégnation et des phénomènes de transfert, abordée aussi bien sur modèles colonnes de laboratoire que sur SCERES, a montré que l'extension initiale du corps d'imprégnation est fortement dépendante de la quantité déversée et par conséquent de la pression d'entrée dans le milieu poreux. Ce paramètre, lorsqu'il est faible, engendre des cheminements préférentiels (phénomène de « digitations ») entraînant une surface de contact eau-polluant insuffisante (cas rencontré dans les essais menés sur colonne de milieu poreux en laboratoire) ou une forte hétérogénéité de distribution du polluant et des valeurs de saturation en TCE (cas observé dans l'aquifère saturée de SCERES).

La comparaison des résultats des simulations numériques a montré que les débits d'infiltration choisis ne modifient pas sensiblement la forme du **corps** d'imprégnation, la durée calculée pour atteindre l'équilibre varie entre 1 jour et 7 jours ; ceci dépend fortement du choix de la perméabilité relative biphasique du solvant en système 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, mode de tarissement) permettant une étude du transfert en zone non saturée.

Sur le plan du transfert en **zone non saturée et dans la nappe**, les efforts qui ont porté sur les protocoles de prélèvement d'échantillons de gaz représentatifs et les techniques de quantification analytique du TCE dans la phase gazeuse ont abouti à une meilleure

appréhension de la propagation des vapeurs du polluant. Les principaux résultats obtenus ont permis de :

- quantifier le transfert du TCE en zone non saturée (géométrie du domaine contaminé par les vapeurs, cinétique, répartition des teneurs). Sur ce plan, la progression des vapeurs de TCE et l'allure des profils obtenus font apparaître un fort gradient de concentration en profondeur (densité des vapeurs), et une symétrie des teneurs dans les quatre sens transversaux surtout à proximité de la source avec une accentuation dans le sens de l'écoulement lorsqu'on s'éloigne de la source. 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
- évaluer, en s'appuyant sur une série d'expériences en colonnes de laboratoire et sur SCERES, l'impact de la dissolution des vapeurs de TCE sur la contamination de la nappe. En effet, il a été mis en évidence sur SCERES, une déformation et une extension du panache de pollution par les traces dissoutes, occasionnées par l'infiltration des précipitations chargées par les vapeurs du polluant. Des augmentations significatives de concentrations dans l'eau ont été enregistrées à 4 m et 10 m en aval durant plusieurs jours. Ce phénomène est favorisé par l'existence d'une quantité importante de TCE sous forme vapeur dans la zone non saturée. Cette infiltration de pluies chargées en vapeurs de TCE a entraîné l'apparition d'une pollution importante sur des points latéraux situés à 1.5 m de l'axe. La seule dispersion du polluant au cours de son transport dans le milieu ne peut expliquer cette situation en contradiction apparente avec l'hypothèse d'un milieu homogène peu dispersif.

Du point de vue de **l'évaluation des techniques de reconnaissance**, un fort besoin de développement et d'innovation des techniques d'investigation de sites contaminés par des solvants chlorés subsiste à l'heure actuelle pour une meilleure identification du foyer de pollution qui facilitera l'application des procédés de remediation. A ce titre, certains fournisseurs et utilisateurs de dispositifs de mesures in-situ, incités par l'Agence de l'eau Rhin-Meuse, ont mis à la disposition des chercheurs de la ZAF 2 de l'IFARE des matériels d'investigation en vue d'une évaluation et d'une validation sur SCERES de méthodes de détection et d'analyse rapides (sondes "gore sorber", réactifs Draeger, Photovac avec détecteur PID, analyseur de gaz par spectrophotométrie infra rouge, CPG portable, spectrophotométrie infra rouge à transformée de Fourier). La comparaison des résultats des analyses quantitatives du TCE obtenus par l'utilisation des divers dispositifs de mesure in-situ a montré l'importance de la gamme de concentrations étalons utilisée. La fiabilité et l'efficacité des tests d'intercomparaison des performances des différents appareils ne peuvent être obtenues qu'après une calibration de ces derniers avec les mêmes gammes de préparations de concentrations étalons.

Les études de comparaison de performance de modèles numériques polyphasiques utilisés sur site par les laboratoires et les bureaux d'études ont également pu être testées (Codes MARTHE, SIMUSCOPP, SWANFLOW). La simulation en diphasique réalisée avec le modèle MARTHE montre qu'avec les hypothèses retenues (conditions hydrodynamiques, saturations résiduelles,...), la représentation de la situation après **24** jours du comportement et du transfert du TCE dans le système aquifère de SCERES, est en bon accord avec les observations expérimentales. La prise en compte dans le modèle SIMUSCOPP de la volatilisation progressive du polluant dans les phénomènes de migration et de transfert du TCE dans le bassin SCERES, a permis de mettre en jeu deux mécanismes principaux : le déplacement du TCE, d'une part sous l'effet d'un flux convectif dû à une saturation progressive de la phase gazeuse en TCE et lié à la différence de densité entre l'air et le TCE, et d'autre part sous l'effet d'un flux de diffusion moléculaire qui constitue le paramètre le plus sensible.

L'expérimentation grandeur nature menée sur SCERES, dans le cadre de cette première convention, a mis en relief comment un bassin expérimental contrôlé de grandes dimensions constitue un atout primordial dans la simulation et la compréhension des pollutions réelles dont la représentation unique et universelle n'existe pas. C'est par cette approche graduée mettant en œuvre un site contrôlé et adapté que les moyens de prévention et les techniques de dépollution peuvent être mis au point grâce à une meilleure compréhension des mécanismes

de base. Les principales perspectives des recherches menées sur SCERES se situent toujours au niveau du comportement des solvants chlorés en milieu souterrain. L'étude de cette problématique en liaison avec les sites réels et la prise en compte des résultats obtenus nécessitent de quantifier :

- le rôle des précipitations et des battements de nappe sur le transfert du polluant en zone saturée et non saturée
- l'influence de la couverture du sol (hétérogénéité de surface) sur les flux de gaz en solvants chlorés vers l'atmosphère
- la présence d'un mélange de solvants chlorés en système aquifère (par exemple le C_2HCl_3 (TCE) + le C_2Cl_4 (tétrachloroéthylène) + éventuellement le $C_2H_3Cl_3$ (trichloro-1,1,1-éthane)).

Une préoccupation majeure sera d'établir un bilan de masse en régime transitoire pour chaque configuration étudiée. Dans cette optique, les tests de validation d'appareils de mesure sur site seront poursuivis.

Le travail proposé bénéficiera de l'apport du groupe VEGAS (Versuchseinrichtung für Grundwasser-und Altlastensanierung) de l'Institut für Wasserbau de l'université de Stuttgart, d'une part sur les hétérogénéités en milieu saturé, d'autre part sous forme d'un soutien logistique par la mise à disposition d'instruments de mesure.

Un volet parallèle portera sur la poursuite de la validation de modèles numériques:

- la reconstitution du corps d'imprégnation et des flux massiques par calage à partir des concentrations (en gaz et traces dissoutes) mesurées sur SCERES
- l'influence de la densité des points de mesure sur la sensibilité des résultats numériques
- la quantification des flux en gaz et en traces dissoutes sur des sites réels à partir des données fournies par des bureaux d'études, en particulier Burgéap.

SOMMAIRE

21241-4-1

5.1- Annexe 1 : Mise au point du matériel de prélèvement et des méthodes d'analyse des différentes formes de pollution par le TCE	1
5.1.1- Analyse des traces dissoutes de TCE dans l'eau	1
5.1.2- Analyse du TCE en phase dans le milieu poreux	1
5.1.3- Analyse du TCE sous forme gazeuse	4
5.2- Annexe 2 : Appareillage spécifique en laboratoire	6
5.3- Annexe 3 : Principe de la méthode gammamétrique	8
5.3.1- Principe de fonctionnement	8
5.3.2- Mode opératoire	9
5.4- Annexe 4 : Principe de la Chromatographie en Phase Gazeuse (CPG)	12
5.4.1- Principe	12
5.4.2- Méthodes d'analyses employées	12
5.5- Annexe 5 : Appareils de mesure de gaz utilisés au laboratoire	15
5.5.1- Le moniteur BRUEL et KJAER 1302	15
5.6- Annexe 6 : Appareil de mesure de gaz Photovac 2020	19
5.7- Annexe 7 : Méthodes de calcul et essais préliminaires aux essais en colonne de dissolution des vapeurs de TCE	24
5.8- Annexe 8 : Principe et résultats de mesure des Gore Sorbers	27
5.9- Annexe 9 : Matériel de mesure de gaz utilisé par le BRGM sur SCERES et résultats des mesures	31
5.10- Annexe 10 : Modélisation numérique de l'infiltration et du transport de TCE dans SCERES par le BRGM	45
5.11- Annexe 11 : Expérimentation à l'Institut Für Wasserbau (IWS) de Stuttgart	73
5.12- Annexe 12 : Tableaux de mesure	88
5.12.1- Suivi du corps d'imprégnation	89
5.12.2- Suivi des vapeurs	101
5.12.3- Suivi des traces dissoutes	114
5.13- Annexe 13 : Revue bibliographique sur les solvants chlorés	131