



21241-I RM



Agence de l'eau  
Rhin-Meuse

# Etude du Comportement des Solvants Chlorés dans les Milieux Souterrains

1<sup>er</sup> Rapport Intermédiaire



14 février 1997

Ont contribué à la rédaction

Durbec A.  
Jellali S.  
Josef R.  
Le Thiez P.  
Muntzer P.  
Razakarisoa O.  
Schäfer G.  
Van Dorpe F.

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

Agence de l'Eau Rhin-Meuse  
« Le Longeau » - Route de Lessy  
Rozéruilles - BP 19  
57161 MOULINS-LES-METZ Cedex  
Tel: 03-87-34-47-00 Fax: 03-87-60-49-85

# Etude du comportement des solvants chlorés dans les milieux souterrains



## Résumé du 1<sup>er</sup> rapport intermédiaire

La convention entre l'Agence de l'Eau Rhin-Meuse et l'**IFARE** (Institut Franco-Allemand de Recherche sur l'Environnement dirigé par Lothaire **ZILLIOX**, DR CNRS) de l'Université Louis Pasteur et du CNRS a pour objet de mieux connaître le comportement des solvants chlorés dans les milieux souterrains et à cet effet de recourir à des essais menés sur modèles de simulations physique et numérique et sur le bassin enterré de grandes dimensions SCERES (Site Contrôlé Expérimental de Recherche pour la Réhabilitation des Eaux et des Sols), construit en béton armé et parfaitement étanche de 25 m x 12 m x 3 m..

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 à l'**Etranger**. 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 dangereuses. Ils sont lentement biodégradables et peu solubles ce qui explique leur persistance prolongée.

La meilleure approche permettant d'aborder de façon fiable les processus complexes 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,...) est de mener des recherches sur site expérimental, en situation réelle et dans des conditions contrôlées : l'utilisation et l'exploitation de SCERES, outil essentiel (unique en Europe) qui bénéficie d'une maîtrise des connaissances de circulation de fluides dans un milieu poreux connu, constituent des atouts primordiaux pour mener à bien ces recherches. Les essais menés sur SCERES seront en interaction permanente avec des expériences conduites sur modèles physiques mono-, bi- ou tridimensionnels de laboratoire, et complétés par l'utilisation et la validation de modèles mathématiques. Les expériences envisagées nécessiteront la mise en place et l'adaptation de dispositifs de sécurité adéquats et exigés pour la manipulation de solvants chlorés.

Les travaux objet de la présente convention portent sur la configuration actuelle du bassin SCERES, et visent à aborder pendant la première phase 1996 - 1998 les aspects concernant la caractérisation de la source de pollution, le transfert en zone non saturée 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 A 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 en colonnes de milieu poreux ou en petits modèles 2D ou 3D.

Concernant la **caractérisation de la source**, des études menés en collaboration avec le LEPT-ENSAM de Bordeaux ont permis de mettre en relief la vitesse des échanges **eau-trichloroéthylène (TCE)**, la durée de mise en équilibre en milieu homogène et l'absence de cheminement préférentiel. Des essais isothermes en réacteurs fermés, visant à déterminer la concentration d'équilibre du TCE dans l'eau avec prise en compte de l'effet de la température (variant de 10 °C à 30 °C) ont été réalisés au laboratoire de la ZAF A 2. Les concentrations d'équilibre obtenues par analyse en chromatographie en phase gazeuse (CPG) utilisant les méthodes de l'étalon interne et externe, sont sensiblement identiques à celles rencontrées dans la plupart des articles (- 1100 mg/l à 20 °C et 25 °C) et de plus, ne sont pas influencées de manière significative par la température. Des essais de détermination de teneurs résiduelles, en zone non saturée et dans l'aquifère saturée, sur modèles physiques de laboratoire sont envisagés. Ces essais permettent d'aborder par la suite l'évaluation des cinétiques de transfert eau-TCE et serviront de base d'une part pour la préparation du déversement du TCE sur le bassin SCERES, et d'autre part pour le dimensionnement de l'expérimentation par modélisation numérique de l'écoulement triphasique eau-TCE-air.

Sur le plan du **transfert en zone non saturée**, on s'attachera à aborder sur modèle physique 3D (équipé de sondes de prélèvement de gaz), pouvant être installé dans la Sorbonne, des essais visant à étudier la volatilisation du trichloroéthylène (TCE) à saturation résiduelle dans la zone non saturée. Sur ces aspects, les efforts vont essentiellement porter, d'une part sur les protocoles de prélèvement d'échantillons de gaz représentatifs, et d'autre part sur les techniques de quantification analytique du TCE dans la phase gazeuse. Les résultats de ces expérimentations seront comparés à une simulation numérique

Sur le plan de l'analyse quantitative, pour pouvoir déceler et quantifier à des seuils très bas (ppb - voire ppt) le TCE volatil contenu dans les matrices liquide et gazeuse, le laboratoire de la ZAF A 2 s'est équipé d'un CPG utilisant les méthodes d'injection « Purge and Trap » (PTI) et/ou de « Désorption Thermique » (TCT). Pour d'autres analyses, la ZAF A 2 dispose du laboratoire de recherche appliquée et de transfert de technologie de l'IUT de Chimie de l'Université de Strasbourg III.

La configuration actuelle du bassin SCERES (épaisseur de 2m de la zone non saturée) est un point favorable pour cette expérimentation. Il est prévu de créer une source de pollution par le TCE dont les caractéristiques de mise en place et de mise en œuvre seront en prenant toutes les précautions nécessaires pour minimiser les phénomènes de volatilisation qui seront quantifiés.

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, l'Agence de l'eau Rhin-Meuse se charge d'inciter certains fournisseurs et utilisateurs (de dispositifs de mesures **in-situ**) à mettre à la disposition des chercheurs de la ZAFA 2 de l'IFARE, les matériels d'investigation qui seront sélectionnés, en vue d'une évaluation **et/ou** d'une validation sur SCERES de méthodes de détection et d'analyse rapides. Le cas échéant, les modèles numériques utilisés sur site par les bureaux d'études pourront être testés.

Les collaborations de la ZAFA 2 avec le BURGEAP, l'Institut Français du Pétrole, le projet VEGAS de l'Institut für Wasserbau de Stuttgart, le Lehrstuhl für Angewandte Geologie - Hydrogeologie des Universités de Karlsruhe et de Tübingen permettront de bénéficier de leur expérience issue des travaux effectués sur le terrain, en matière de comportement des solvants chlorés dans les milieux souterrains.

# SOMMAIRE

	Page
<b>Introduction</b>	1
<b>1 - Caractérisation de la source</b>	3
<b>1.1 - Analyse bibliographique</b>	3
<b>1.2 - Travaux expérimentaux</b>	10
<i>1.2.1 - Appareillages spécifiques</i>	10
<i>1.2.2 - Travaux en collaboration avec le LEPT-ENSAM (Bordeaux)</i>	12
<i>1.2.3 - Essai préliminaire au laboratoire</i>	20
<b>1.3 - Prospective</b>	28
<i>1.3.1 - Aspect expérimental</i>	28
<i>1.3.2 - Simulation numérique</i>	32
<b>2 - Transfert en zone non saturée</b>	33
<b>2.1 - Analyse bibliographique</b>	33
<b>2.2 - Travaux à réaliser</b>	34
<i>2.2.1 - Essais de laboratoire</i>	34
<i>2.2.2 - Nécessité de XERES</i>	35
<i>2.2.3 - Infiltration de trichloroéthylène (TCE) dans XERES</i>	38
<i>2.2.4 - Modélisation numérique</i>	40
<b>3 - Evaluation des techniques de reconnaissance</b>	41
<b>3.1 - Analyse bibliographique</b>	41
<b>3.2 - Protocoles</b>	45
<b>3.3 - Utilisation de SCERES</b>	45
<b>Annexe A - Contribution de l'Institut Français du Pétrole en modélisation</b>	47
<b>Annexe B - Expérience de Burgeap en matière de solvants chlorés</b>	49
<b>Annexe C - Expérimentations à l'Institut für Wasserbau (IWS) de Stuttgart</b>	53
<b>Annexe D - Revue bibliographique</b>	65

## Introduction

La convention entre l'Agence de l'Eau Rhin-Meuse et l'IFARE (Institut Franco-Allemand de Recherche sur l'Environnement) dirigé par Lothaire ZILLIOX (DR CNRS) de l'Université Louis Pasteur et du CNRS a pour objet de mieux connaître le comportement des solvants chlorés dans les milieux souterrains et à cet effet de recourir à des essais dans le bassin enterré de grandes dimensions SCERES (Site Contrôlé Expérimental de Recherche pour la Réhabilitation des Eaux et des Sols), construit en béton armé et parfaitement étanche de 25 m x 12 m x 3 m.

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 à l'Etranger. Ceci peut être dû 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 dangereuses. Ils sont lentement biodégradables et peu solubles ce qui explique leur persistance prolongée.

La problématique des cas de contamination des eaux souterraines par solvants chlorés détectés dans les aquifères tant en France qu'à l'Etranger a conduit la ZAFA 2 (Zone-Atelier Franco-Allemande) de l'IFARE, sollicitée par l'Agence de l'Eau Rhin-Meuse, à élaborer ce nouveau programme de recherche (première phase : 1996-I 998) portant sur les mécanismes de transfert/propagation de solvants chlorés et certains aspects de leur décontamination dans un système aquifère, en vue d'acquérir de nouvelles connaissances fondamentales et des compétences pratiques sur ce problème.

Cette volonté de la ZAFA 2 d'une part, et le souci de l'Agence de l'Eau Rhin-Meuse face à cette problématique des cas de contamination de nappe par solvants chlorés d'autre part, constituent deux arguments convergents et de ce fait, ils ont abouti à l'élaboration de ce programme de travail.

La meilleure approche permettant d'aborder de façon fiable les processus complexes 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,...) est de mener des recherches sur site expérimental, en situation réelle et dans des conditions contrôlées: l'utilisation et l'exploitation de SCERES, outil essentiel (unique en Europe) qui bénéficie d'une maîtrise des connaissances de circulation de fluides dans un milieu poreux connu, constituent des atouts primordiaux pour mener à bien ces recherches. Les essais menés sur SCERES seront en interaction permanente avec des expériences conduites sur modèles physiques mono-, bi- ou tridimensionnels de laboratoire, et complétés par l'utilisation et la

validation de modèles mathématiques. Les expériences envisagées nécessiteront la mise place et l'adaptation de dispositifs de sécurité adéquats et exigés pour la manipulation solvants chlorés.

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

Pour le Laboratoire d'Hydrodynamique des Milieux Poreux de l'IMF - URA CNRS 854

- **Salah JELLALI, Doctorant, bourse CIES**
- **Paul MUNTZER, IR CNRS**
- **Christiane OTT, Technicienne CNRS**
- **Olivier RAZAKA RISOA, IR CNRS**
- **Gerhard SCHÄFER, MC ULP**
- **François VAN DORPE, Doctorant BDI CNRS / Région**
- **Laurent ASTIER, PFE ENSAIS (février à juin 1997).**

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

- **Alain HAZEMANN, ZE URS**
- **Paul RIMMELIN, PR URS.**

Pour l'Institut Français du Pétrole

- **Christian BOCARD, Ingénieur Chef de Projet**
- **Pierre LE THIEZ, IR.**

Pour le BURGEAP

- **André DURBEC, Ingénieur**
- **Fahdi MERHEB, Ingénieur.**

Collaborateurs VEGAS de l'Institut für Wasserbau de l'Université de Stuttgart

- **Baldur BARCE WSKZ, Dr Ing.**
- **Reinhold JOSEF, Dipl. Ing.**

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