



22133 RM



Agence de l'eau
Seine-Normandie

Sommaire



	Page
Avant Propos	1
Sommaire	7
Introduction	9
Chapitre 1 - Etat des connaissances de base	15
Chapitre 2 - Matériels expérimentaux et méthodes d'analyse	53
Chapitre 3 - Analyse de l'impact d'un gazole sur un aquifère alluvial....	91
Chapitre 4 - Comportement du trichloroéthylène au cours de son transfert et son transport dans un aquifère alluvial	163
Conclusion et perspectives.....	187
Table des matières.....	195
Références bibliographiques..	203
Liste des notations, symboles et abréviations	221
Liste des tableaux.....	227
Liste des figures..	229
Annexes.....	237

Depuis le début du siècle, l'industrialisation mondiale a conduit à l'accumulation dangereuse de **contaminants** de l'eau dans tous les compartiments des hydrosystèmes et en particulier dans les aquifères alluviaux.

Ainsi, les ressources en eau douce souterraine, représentant moins de 1 % du volume total d'eau sur la planète, sont menacées par des contaminations de plus en plus nombreuses, discordant avec l'augmentation considérable des besoins en eau pour la consommation humaine et industrielle.

Depuis longtemps, les préoccupations politiques et sociales s'étaient portées sur la qualité des eaux de surface et de l'air, car plus accessibles et plus « visibles ». Toutefois, la dégradation de la qualité des eaux souterraines est un problème important à considérer pour l'avenir des ressources en eau.

Les cas de pollution des eaux souterraines et des sols sont souvent dus aux hydrocarbures et dérivés et sont à l'heure actuelle de plus en plus fréquemment recensés tant en Alsace que dans d'autres grands aquifères en France et à l'étranger. Ceci provient du fait que nous héritons aujourd'hui des conséquences de nombreuses infiltrations accidentelles ou non dans le milieu souterrain mais également que les contrôles et analyses sont devenus stricts, réguliers et performants.

Face à cette problématique, la ZAFA 2 de **l'IFARE**, ayant pour thème la « Protection des aquifères contre les hydrocarbures et dérivés », s'est fixée entre autres d'améliorer par la recherche l'efficacité des mesures de protection des sols et des eaux souterraines contre des polluants organiques peu solubles dans l'eau, de mieux prévoir l'impact d'une pollution identifiée et de permettre de choisir objectivement les techniques d'intervention les plus appropriées.

Les recherches au sein de la ZAFA 2 associent à la fois des équipes de l'Université de Strasbourg I et III et du CNRS, des universités allemandes de Stuttgart, de Karlsruhe, de Tübingen et de Dresden, ainsi que des partenaires français du secteur technique et industriel, avec l'Institut Français du Pétrole, le BURGEAP et Anjou Recherche de la Compagnie Générale des Eaux. La collaboration se traduit par un partage scientifique et technique ainsi

qu'une mise à disposition des connaissances acquises en particulier sur le terrain que ce soit pour les produits pétroliers ou les produits organo-halogénés.

Cette étroite collaboration entre les partenaires a conduit à la réalisation d'un dispositif expérimental de grandes dimensions (25 m de long, 12 m de large et 3 m de profondeur) appelé SCERES, Site Contrôlé Expérimental de Recherche pour la Réhabilitation des Eaux et des Sols, bassin étanche permettant de reconstituer en vraie grandeur un aquifère alluvial avec nappe à surface libre. Ce bassin permet également de valider, par application directe, des techniques de reconnaissance et des nouveaux procédés de dépollution *in-situ*. Le laboratoire de la ZAFA 2 attenant au bassin dispose d'un équipement analytique, ainsi que de divers modèles physiques mono, bi et tridimensionnels.

Tout ce matériel d'étude a permis de suivre et de contrôler une pollution d'aquifère alluvial par un produit moins dense que l'eau, à savoir un gazole routier appelé GOR86, tout d'abord dans la formation du corps d'imprégnation du produit dans les zones non saturée et saturée en eau de l'aquifère, ensuite dans le transfert et le transport des traces dissoutes d'hydrocarbures dans l'eau *souterraine*. Ceci aboutira à terme à l'élaboration et l'application de méthodes de dépollution appropriées au traitement de produits pétroliers et dérivés.

Dans le but d'approfondir certains mécanismes régissant la pollution par des hydrocarbures moins ou plus denses que l'eau d'aquifère alluviaux à nappe libre, il s'agit de répondre à des questions telles que :

* Quel est le rôle de la frange capillaire dans la dynamique de transfert d'un produit moins dense que l'eau ? Quels sont les principaux paramètres physico-chimiques intervenant lors du transfert et du transport de traces dissoutes et leur ordre d'importance dans le cas d'une pollution d'aquifère alluvial ? Quel est l'impact d'opérations de décontamination sur le devenir de la source de pollution dans un aquifère alluvial ?

Quel est le comportement spécifique d'un produit plus dense que l'eau pour un même milieu poreux ?

En réponse à ces questions posées, le présent mémoire s'articule autour de quatre chapitres :

Dans le premier chapitre, les notions de base d'hydrodynamique et de physico-chimie sont étayées par une analyse bibliographique qui a permis d'identifier les points essentiels à

développer. Les solvants chlorés y font l'objet d'une revue particulière vu leur impact sur la qualité de l'eau et les préoccupations que cela entraîne auprès des gestionnaires de l'eau.

Le second chapitre décrit le matériel expérimental, les méthodes d'analyse associés au bassin SCERES et les modes opératoires. La méthode d'analyse par chromatographie en phase gazeuse est particulièrement développée du fait de son utilisation systématique pour le suivi des traces dissoutes aussi bien pour le gazole que pour le trichloroéthylène.

L'expérimentation approfondie, détaillée au troisième chapitre, prend en compte l'opération complète depuis le déversement du gazole, par le suivi de la pollution, jusqu'aux moyens de décontamination, intégrant tous les travaux de laboratoire qui y sont associés.

Le trichloroéthylène fait l'objet au quatrième chapitre d'une étude exploratoire dégageant un certain nombre d'axes de recherche, mais aussi permettant quelques rapprochements de résultats expérimentaux, pour un même milieu poreux, avec les hydrocarbures moins denses que l'eau comme le gazole.

4

CONCLUSIONS

Ce travail de thèse, mené sur différents modèles physiques de laboratoire et sur le bassin SCERES recréant un aquifère alluvial, a permis de mettre en évidence plusieurs facteurs conditionnant à la fois le transfert et le transport de traces dissoutes dans une nappe alluviale d'un gazole et également lors d'une étude exploratoire du trichloroéthylène. Le comportement dans le sol de ces deux produits, pourtant différents par leur physico-chimie, permet de faire des rapprochements intéressants. La démarche adoptée pour cette étude était de prendre en compte les trois stades d'une source de pollution : formation de la source de pollution, transfert du polluant en phase dans l'eau souterraine et transport des traces dissoutes à l'aval de la source.

L'expérimentation sur le bassin SCERES précisant de façon contrôlée les trois étapes précédentes pour un gazole et la complémentarité des essais au laboratoire sur différents modèles expérimentaux ont permis de quantifier et de hiérarchiser des paramètres influençant la source de pollution. Les résultats obtenus avec le trichloroéthylène mènent à des confrontations de résultats avec le gazole relatives aux conditions de transfert du polluant dans l'eau.

Formation de la source de pollution

Pour la quantité déversée et les conditions d'infiltration en surface adoptées, les deux étapes d'imprégnation du milieu poreux par le gazole se caractérisent de la manière suivante : une première étape, rapide, conditionne la forme finale du corps d'imprégnation et une autre plus lente correspond à la réduction des saturations résiduelles en gazole aussi bien en zone non saturée en eau qu'en zone saturée.

Le corps d'imprégnation final est symétrique, cylindrique dans la partie verticale et selon une « galette » peu épaisse et quasi-circulaire dans la frange capillaire malgré un gradient hydraulique élevé.

Les saturations résiduelles en gazole en zone saturée en eau sont dans notre cas deux à trois fois plus élevées qu'en zone non saturée en eau. Les essais au laboratoire préliminaires à l'infiltration de trichloroéthylène sur le bassin SCERES ont permis de montrer que les saturations résiduelles pour ce produit sont proches de celles mesurées sur SCERES pour le

gazole, en milieu poreux saturé ou non en eau, malgré des caractéristiques physico-chimiques différentes pour ces deux polluants.

Une fluctuation du niveau piézométrique de la nappe influence de manière importante la répartition du gazole dans le milieu poreux en provoquant une forte variation des saturations résiduelles en gazole (hétérogénéités de saturation) dans la zone de battement du corps d'imprégnation.

Transfert du polluant en phase dans l'eau souterraine

Lors de la nappe en position initiale basse, le panache était peu étendu et limité dans la frange capillaire. Les valeurs limites des concentrations en hydrocarbures pour l'eau potable étaient atteintes à moins de 8 m en aval de la source ; ce qui n'est pas le cas lors de la montée de nappe où la limite aval du bassin est atteinte par le panache de pollution.

La montée de nappe augmente d'un facteur 3 la concentration en traces dissoutes d'hydrocarbures dans l'eau souterraine et l'extension du panache de pollution, par augmentation de la surface de contact eau-gazole.

Même dans le cas de la nappe en position haute, la concentration d'équilibre maximale en traces dissoutes obtenue au laboratoire n'est pas atteinte malgré un temps de contact suffisant dans le corps d'imprégnation et le rôle secondaire des phénomènes de dispersion. Cette observation peut être expliquée :

- par des cheminements préférentiels dans le corps d'imprégnation dus aux hétérogénéités des saturations en gazole, se traduisant par des concentrations réduites selon la

Position des prélèvements

- en limites inférieures ou latérales du panache, par dilution lors de la prise d'échantillons d'eau malgré un faible volume prélevé.

Du point de vue cinétique de transfert, les douze constituants aromatiques étudiés du gazole GOR86 disparaissent suivant la gradation des valeurs de solubilité de chaque constituant ; ceci est favorisé, amplifié par les proportions des constituants dans le mélange variant en sens inverse des solubilités.

Compte tenu des conditions régnant dans l'aquifère SCERES, les rôles de la température et du temps de contact eau-gazole sont peu. Toutefois ces deux paramètres sont à considérer lorsqu'on étudie la dissolution d'un produit pétrolier au laboratoire: On ne peut donc pas

transposer de façon systématique tous les résultats obtenus au laboratoire sur une situation rencontrée sur un site réel.

Le rabaissement du niveau piézométrique de la nappe et une infiltration d'eau depuis la surface du bassin provoquent un drainage du corps d'imprégnation et un pic de pollution à l'aval. Ce drainage a ainsi un impact important ~~*mais~~ momentané sur le degré de contamination en hydrocarbures dissous de la nappe.

L'application de méthodes de dépollution, notamment l'infiltration d'une solution de **tensio-**actifs, entraîne des effets sur le transfert de traces dissoutes.

L'effet des tensio-actifs sur le transfert du gazole dans la nappe a été étudié au laboratoire en réacteurs fermés et sur colonnes de milieu poreux. Il a été confirmé que les constituants les moins solubles dans l'eau deviennent les plus solubles dans la solution de tensio-actifs. Le caractère hydrophobe des molécules polyaromatiques favorise leur passage au coeur des micelles mixtes de tensio-actifs (milieu hydrophobe).

Transfert du produit dans la phase gazeuse

Le paramètre volatilisation, quasi-inexistant pour le gazole, est un phénomène lent dans le milieu poreux pour le trichloroéthylène en absence de circulation d'air. C'est donc un paramètre important à prendre en compte pour le trichloroéthylène (TCE). Tout au long des essais effectués, le déversement était mené sous eau afin d'obtenir un bilan correct en **fin** d'expérimentation. Ce même système sera adopté pour l'infiltration de TCE dans le bassin SCERES.

3

Transport des traces dissoutes à l'aval de la source

La rétention des douze constituants aromatiques a pu être quantifiée sur le sable **H2F** et est liée aux caractéristiques des constituants : le constituant le moins soluble et le plus hydrophobe est le plus retenu. La présence d'air résiduel augmente la quantité d'hydrocarbures retenus.

Cette rétention est beaucoup plus faible en milieu saturé pour les douze constituants du gazole que pour le trichloroéthylène, du fait d'une compétition au niveau des sites de fixation du sable entre tous les constituants du gazole en solution.

L'utilisation d'un modèle hydrodynamique d'écoulement et de transport de solutés a permis de retrouver les valeurs de **conductivités** hydrauliques mesurées au laboratoire et de montrer que :

- les valeurs des dispersivités équivalentes sont plus élevées que celles mesurées au laboratoire.
- la concentration totale en sortie de lentille de gazole doit être plus faible que celle mesurée en laboratoire malgré un temps de contact suffisant entre l'eau et le gazole.
- les temps d'arrivée aux points de prélèvement (beaucoup plus longs dans la réalité qu'avec le modèle) ne peuvent être seulement liés à un retard dû à la rétention mais également à la réduction de la perméabilité due à la présence d'air résiduel dans la zone de battement à l'aval du corps d'imprégnation.

Une hiérarchisation des paramètres mis en jeu lors de la mise en place de la source (forces capillaires, gravité, teneur en eau) est difficile à effectuer du fait de leur action simultanée pendant la formation du corps d'imprégnation.

Par contre, lors du transfert de constituants issus du gazole dans l'eau souterraine, il apparaît que le facteur principal est le contact eau-gazole, favorisé pour le cas d'un produit moins dense que l'eau durant une fluctuation du niveau piézométrique de la nappe. Des facteurs comme la température et le temps de mise en équilibre eau-gazole sont considérés comme secondaires par rapport aux phénomènes précédents à l'échelle de l'aquifère alluvial.

L'impact temporaire sur le transfert de la technique d'infiltration de solution de tensio-actifs est également important à considérer.

Au cours du transport des traces dissoutes de gazole, la présence d'air et l'hétérogénéité de la source qui reste à identifier plus précisément conditionnent de manière importante les flux dans le bassin SCERES.

Ces résultats vont permettre une aide importante pour la prévention des pollutions des aquifères par des hydrocarbures. Ainsi plusieurs points essentiels sont à retenir :

- ↳ le suivi des mouvements piézométriques de la nappe est considérable pour la prévention du degré de pollution
- ↳ il est important d'effectuer un nombre suffisant de prélèvements d'eau juste en aval de la source pour s'assurer des valeurs de concentration en sortie de la lentille d'huile
- ↳ l'utilisation de la technique de dépollution par infiltration de tensio-actifs efficace pour traiter une zone imprégnée à saturation résiduelle de produits pétroliers non volatils provoque une augmentation temporaire de la concentration en traces dissoutes à l'aval de la source.

Ainsi, il est important de placer au puits de pompage d'eau potable situé à l'aval une station de traitement pour la durée de l'opération.

PERSPECTIVES

Il a été montré que le transfert de traces dissoutes est conditionné par l'existence de cheminements préférentiels d'eau au sein du corps d'imprégnation de gazole du fait d'une répartition hétérogène du gazole suite à un battement de nappe. Cette répartition hétérogène du produit pétrolier doit être liée à la morphologie complexe (milieu triphasique) de la frange capillaire, zone importante à considérer pour les produits pétroliers moins denses que l'eau.

D'autres expérimentations pourront ainsi être effectuées pour montrer de façon plus précise la répartition des saturations résiduelles du gazole lors d'une fluctuation du niveau piézométrique de la nappe et le rôle probable de la frange capillaire (essais principalement dans la cuve tridimensionnelle de laboratoire **et/ou** sur le bassin SCERES).

La validation d'un modèle hydrodynamique et hydrochimique grâce aux données recueillies au laboratoire et sur le bassin **SCERES** doit être poursuivie. Une première approche a été effectuée dans ce mémoire, identifiant des paramètres tels que les **conductivités** hydrauliques ou les dispersivités des différents milieux poreux utilisés. D'autres simulations en considérant par exemple une zone de battement de conductivité hydraulique réduite par rapport au milieu **principal** du fait de la présence d'air résiduel doivent être menées.

Une modélisation numérique de la dissolution de gazole dans l'eau à partir des résultats obtenus sur colonnes pourra être effectuée en considérant différentes approches théoriques existants.

A plus long terme, la réalisation ou la validation d'un modèle numérique de prédiction prenant en compte à la fois la formation de la source (domaine triphasique), le transfert des traces dissoutes et leur transport par l'eau souterraine serait intéressante. L'effet d'une fluctuation de nappe ou d'une infiltration d'eau ou même d'une infiltration de tensio-actifs pourrait être simulée et comparée aux résultats de ce travail de thèse.

D'autres déversements de produits pétroliers (kérosène, essence, etc.) pourraient être envisagés sur le bassin SCERES afin de renforcer et conforter les connaissances acquises avec le gazole.

Les expérimentations avec le trichloroéthylène vont être poursuivies au laboratoire de la ZAFAN 82 avec le soutien de l'Agence de l'Eau Rhin-Meuse dans le cadre du travail de thèse de S. JELLALI. Un premier déversement sur le bassin SCERES, préparé grâce aux premiers essais réalisés au cours de cette thèse, aura lieu fin 1997 et permettra d'apporter de nouveaux éléments de réponse sur la dynamique d'un produit plus dense que l'eau en aquifère alluvial homogène et l'impact par exemple de précipitations sur le corps d'imprégnation ou d'une fluctuation de nappe.

A plus long terme, une étude similaire pourra être faite en considérant un milieu hétérogène, puis un mélange de plusieurs solvants chlorés ou de solvants chlorés et produits pétroliers moins denses que l'eau.