

Université Louis Pasteur
UFR de Sciences Physiques
Institut de Mécanique des Fluides
UMR 7507 ULP-CNRS, Strasbourg

Institut Franco Allemand de
Recherche sur l'**Environnement**
IFARE/DFIU, Antenne de Strasbourg

Thèse

Pour obtenir le grade de



n° 24244

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE LOUIS PASTEUR DE STRASBOURG
Spécialité : Sciences et Ingénierie pour l'eau

Présentée et soutenue publiquement par :

Salah JELLALI

Le 22 mai 2000

POLLUTION D'AQUIFERES POREUX PAR LES SOLVANTS CHLORES.

Mécanismes de transport avec échanges entre phases.

Expérimentations sur site contrôlé avec le trichloroéthylène.

Directeur de thèse : Lothaire ZILLIOX

Jury :

M. D. BERNARD	Rapporteur interne
M. P. GRATHWOHL	Rapporteur externe
M. B. VERLON	Rapporteur externe
M. A. SOUISSI	Examineur
M. L. ZILLIOX	Directeur de thèse

Membres invités

M. A. DURBEC	BURGEAP
M. P. LE THIEZ	Institut Français de Pétrole
M. P. MUNTZER	Institut de Mécanique des Fluides de Strasbourg
M. G. SCHÄFER	Institut de Mécanique des Fluides de Strasbourg

Sommaire

	Page
Avant propos	1
Sommaire	6
Introduction.....	8
Chapitre 1 : Les solvants chlorés dans les aquifères alluviaux	13
Chapitre II : Dispositifs expérimentaux	38
Chapitre III : Essai de base sur SCERES : résultats et interprétations	58
Chapitre IV : Etude des transferts au niveau des interfaces	111
Conclusions et perspectives	157
Références bibliographiques	163
Liste des tableaux	173
Liste des figures	175
Liste des symboles	180
Liste des abréviations	185
Table des matières	187
Annexes	192

Introduction

La contamination des eaux souterraines par les solvants chlorés représente à l'heure actuelle une grande menace de détérioration des systèmes de l'environnement continental. De nombreux cas de pollution par ce type de produits ont été détectés ces dernières décennies tant en France que dans d'autres pays industrialisés. L'origine de ces pollutions résultant d'activités humaines mal conduites est souvent liée à des fuites sur des sites de stockage et des friches industrielles ou à des accidents de transport tels que des renversements de camions citernes. La gravité à long terme d'une pollution de ce type, provient du fait que ces produits sont très toxiques, peu solubles dans l'eau, mais leur solubilité est 10^5 à 10^6 fois plus élevée que les limites de potabilité, fortement volatils, faiblement retenus et peu biodégradables dans le milieu poreux.

Face à cette problématique, l'**IFARE**, dans le cadre de la ZAF2 qui constitue l'opération scientifique intitulée « Protection des aquifères contre la pollution par les hydrocarbures et dérivés », concentre ses efforts de recherches depuis 1996 sur l'étude du comportement des solvants chlorés et plus particulièrement du trichloroéthylène (TCE) dans le milieu souterrain. L'objectif est de mieux comprendre les mécanismes de transfert de masse entre les différentes phases du polluant et en conséquence de prévoir l'impact d'une pollution localisée et d'étudier les moyens de prévention nécessaires ainsi que la mise en œuvre des procédés optimaux pour une décontamination efficace des eaux et des sols.

Cette recherche fait suite à la thèse de François Van Dorpe (**IFARE**, 1997). L'ampleur des travaux réalisés sur "SCERES" (Site Contrôlé Expérimental de Recherche pour la réhabilitation des Eaux et des Sols) a nécessité une action d'équipe impliquant les chercheurs permanents de la ZAF2, les techniciens, les stagiaires (fin d'études d'ingénieur et **DEA**) ainsi qu'un autre **doctorant** depuis fin 1998 (Hocine Benremita).

L'opération scientifique et technologique bénéficie d'un soutien financier de l'Agence de l'Eau Rhin Meuse, du Contrat du Plan Etat – Région Alsace et du Programme National de Recherche en Hydrologie (PNRH) du CNRS. Elle associe des équipes de recherche des Universités de Strasbourg I et **III**, du CNRS, des Universités allemandes de Stuttgart, de Tübingen, de Karlsruhe et de Dresden ainsi que des partenaires du secteur industriel tels

l'Institut Français du Pétrole (IFP), le Bureau de Géologie Appliquée (BURGEAP) et Anjou Recherche (VIVENDI).

La collaboration étroite entre les différents partenaires s'est concrétisée à partir de la construction du grand "bassin" expérimental SCERES. Il s'agit d'un bassin parfaitement étanche, de 25 m de long, 12 m de largeur et 3 m de profondeur. Ce site permet de travailler en situation réelle sur un domaine complètement contrôlé, de prendre en compte réellement la grandeur de la frange capillaire en s'affranchissant des limites de modèles de laboratoire réduits et de valider les techniques de reconnaissance et les procédés de décontamination. La ZAF2 dispose à l'**IFARE** d'un laboratoire équipé de plusieurs appareils de mesures et d'analyse, ainsi que de divers modèles physiques mono, bi et tridimensionnels.

Dès leur déversement à la surface du sol, les solvants chlorés tendent à pénétrer rapidement dans le sol et l'**aquifère** sous l'effet de leur faible viscosité et densité élevée. Lors de leur traversée de la zone non saturée, une partie importante passera sous forme gazeuse étant donné leur forte volatilité. Si la quantité déversée dépasse la capacité du milieu perméable situé au dessus de la nappe, ces produits, contrairement aux produits plus légers que l'eau, continuent à migrer verticalement dans la zone saturée, éventuellement jusqu'au substratum imperméable. Le solvant retenu dans la zone saturée, se transfère par dissolution dans l'eau en écoulement et peut contaminer, à long terme, les puits de pompage pour l'alimentation en eau potable situés à l'aval.

Les recherches réalisées ces dernières années pour tenter d'évaluer les transferts de masse lors d'une pollution d'un aquifère par les solvants chlorés, portent essentiellement sur la modélisation numérique avec des hypothèses simplificatrices sur les échanges entre la zone saturée et non saturée et sur le rôle joué par la frange capillaire dans ce type de transfert de masse. Les quelques expériences réalisées sur sites réels ou bien sur des bassins expérimentaux, mettent en relief généralement un seul aspect du problème (dissolution d'un corps d'imprégnation, rétention des traces dissoutes dans la nappe, propagation des vapeurs dans la zone non saturée ou échange avec l'eau présente dans cette zone).

Notre étude a pour but principal de mieux comprendre les mécanismes de transport de TCE avec échanges entre phases aussi bien dans la nappe, que dans la frange capillaire et la zone non saturée lors d'une pollution d'aquifère alluvial. En plus des essais menés sur des modèles de laboratoire, trois expériences originales de déversement de TCE sur le bassin SCERES ont

été réalisées. L'ensemble de ces travaux vise à apporter des éléments de réponse aux questions suivantes :

- quelle est l'importance des mécanismes qui régissent la propagation et la distribution des vapeurs des solvants chlorés dans la zone non saturée ?
- quel est l'effet du flux vers l'atmosphère de vapeurs de solvants chlorés volatils sur le devenir de la source de pollution ?
- dans quelles conditions la présence de vapeurs peut-elle contribuer, et de quelle manière, à la pollution de l'eau de nappe en écoulement et quel est le rôle de l'interface "frange capillaire" dans la régulation de ce flux de pollution ?
- quel est l'impact du transfert de masse de TCE issu de la nappe vers la zone non saturée sur la propagation des traces dissoutes ?
- les logiciels existants, peuvent-ils prévoir la propagation de ces polluants dans le milieu souterrain ?

Avant de présenter les articulations principales du mémoire, nous précisons que sont portées en annexes, bien que très utiles pour la compréhension des expériences et le dépouillement des résultats, les notions de base des écoulements en milieu poreux ainsi que la description des appareils et des méthodes d'analyse employés tel que la chromatographie en phase gazeuse (CPG). La fin de cette partie annexe comportera une présentation sommaire des méthodes de décontamination utilisées sur sites réels pollués par des solvants chlorés.

Le corps du mémoire est structuré en quatre chapitres. Le premier chapitre présente une analyse bibliographique concernant les divers paramètres et mécanismes de transfert régissant la propagation et le devenir des différentes formes de pollution dans la zone saturée et non saturée.

Le second chapitre, regroupe la présentation de l'ensemble des matériels utilisés ainsi que les méthodes d'analyse et de dépouillement des résultats. Une grande partie a été consacrée au bassin SCERES, vu son importance et son utilité dans ce travail de recherche.

Le troisième englobe d'une part les travaux réalisés au laboratoire concernant la caractérisation de la source de pollution (saturations résiduelles, dissolution...) et qui ont été nécessaires pour la compréhension de certains mécanismes de transfert de masse et le bon déroulement d'un tel déversement sur SCERES et d'autre part les résultats et les

interprétations d'une première expérimentation sur SCERES. Cet essai, appelé également « essai de base » a consisté à un suivi simultané des trois formes du TCE (dissous, vapeur et en phase) dans la zone non saturée et dans la nappe. Finalement, et dans le but de déterminer l'importance de certains paramètres régissant le transfert de masse de TCE, une modélisation du transport des traces dissoutes dans la nappe en utilisant le logiciel Modflow-MT3D et de propagation de vapeurs dans la zone non saturée à l'aide de **VapourT** a été effectuée.

L'essai de base sur SCERES, ayant permis de déterminer le rôle de plusieurs paramètres dans la propagation de la phase gazeuse chargée en vapeurs de TCE et le transport des traces dissoutes dans la nappe, ouvre d'autres pistes de recherches concernant l'intensité et la nature de transfert de masse entre la zone non saturée et la zone saturée à travers la frange capillaire. Cet aspect a été abordé au moyen de deux essais complémentaires (objet du quatrième chapitre). Au cours de ces essais nous avons également quantifié expérimentalement le flux de vapeurs quittant la zone non saturée vers l'atmosphère.

La discussion des résultats obtenus est faite dans le troisième et quatrième chapitre.

Ces différents essais au laboratoire et sur le bassin SCERES nous permettent de dégager un certain nombre de voies de recherches que nous évoquons en perspectives.

POLLUTION D'AQUIFERES PORUEUX PAR LES SOLVANTS CHLORES.

Mécanismes de transport avec échanges entre phases.
Expérimentations sur site contrôlé avec le triéthylprothylène.

Résumé

Des expériences ont été conduites sur des modèles physiques de laboratoire et sur un site expérimental, SCERES, de dimensions 25 m x 12 m x 3 m, recréant un aquifère alluvial. Elles visent d'une part à mettre en évidence les principaux facteurs gouvernant le transfert de masse dans la zone non saturée et d'autre part à quantifier les flux de pollution de cette zone vers l'atmosphère et la nappe.

Elles ont souligné l'importance de la température dans le développement et l'étendue du domaine contaminé par les vapeurs dans la zone non saturée. De plus, la répartition de ce panache est très affectée par le phénomène d'advection et les fuites vers l'atmosphère. Des considérations théoriques et un dispositif expérimental pour l'évaluation du transfert de masse de la zone non saturée vers l'atmosphère ont été mis en œuvre. Ils ont permis de montrer que d'une part ce phénomène représente une atténuation naturelle importante de la pollution et d'autre part, il est essentiellement régi par le processus de diffusion.

Le domaine pollué par les vapeurs, par ailleurs, engendre une pollution significative de la nappe par dispersion à partir de la frange capillaire malgré le rôle atténuant de cette dernière. Le flux maximum journalier de pollution correspondant est de l'ordre de 1 % de la masse piégée dans la zone non saturée.

Le lessivage des vapeurs de la zone non saturée par les eaux de pluie engendre une pollution plus intense de la nappe avec des flux de plusieurs dizaines de fois plus importants.

SPECIALITE : Sciences et Ingénierie pour l'Eau

MOTS CLES: Aquifère, dissolution, eau souterraine, frange capillaire, pollution, solvants chlorés, transfert, vapeurs.

STRUCTURE D'ACCUEIL : Institut de Mécanique des Fluides de Strasbourg, UMR 7507 CNRS. Laboratoire de la ZAF A2 de l'IFARE, Campus du CNRS, 23, rue de Doess, BP 20, 67037 Strasbourg cedex, France.

