

## Transfert du trichloréthylène en milieu poreux à partir d'un panache de vapeurs

Hocine Benremita, Gerhard Schäfer\*

*Institut de mécanique des fluides et des solides de Strasbourg, institut franco-allemand de recherche sur l'environnement (IFARE),  
UMR 7507 ULP-CNRS, 23, rue du Loess, B.P. 20, 67037 Strasbourg cedex, France*

Reçu le 18 juin 2003 ; accepté après révision le 27 août 2003

Présenté par Michel Combarous

---

### Résumé

Une expérience à grande échelle a été réalisée sur une plate-forme expérimentale pour étudier le transfert de masse du trichloréthylène (TCE) en milieu poreux partiellement saturé. 5 litres de TCE ont été infiltrés dans la zone non saturée du site. Le transfert du TCE depuis le panache des vapeurs en zone non saturée vers le toit de la nappe a été quantifié en utilisant une approche analytique et une approche numérique. La masse du polluant mesurée à la sortie du modèle est bien représentée par les deux approches mathématiques. Le transfert de TCE vers la nappe à partir du panache de vapeurs est faible ; il correspond à 285 g de TCE, environ 4% de la masse initiale. *Pour citer cet article : H. Benremita, G. Schäfer, C. R. Mecanique 331 (2003).* © 2003 Académie des sciences. Publié par Elsevier SAS. Tous droits réservés.

### Abstract

**Mass transfer of trichloroethylene in a porous medium from a vapor plume.** A large scale experiment has been carried out on an experimental facility to study the mass transfer of trichloroethylene (TCE) in a partially saturated porous medium. 5 liters of TCE have been infiltrated in the vadose zone of the site. The mass transfer of TCE from the vapor plume in the unsaturated zone towards the top of groundwater was quantified based on an analytical and a numerical approach. The mass of the pollutant measured at the exit of the model is well represented by the two mathematical approaches. It is found that the transfer of TCE towards the groundwater from the vapor plume is weak, which corresponds to 285 g of TCE, approximately 4% of the initial mass. *To cite this article: H. Benremita, G. Schäfer, C. R. Mecanique 331 (2003).* © 2003 Académie des sciences. Publié par Elsevier SAS. Tous droits réservés.

*Mots-clés :* Milieux poreux ; Transfert de masse ; Site expérimental ; Trichloréthylène ; Modélisation ; Pollution

*Keywords:* Porous media; Mass transfer; Experimental site; Trichloroethylene; Modeling; Pollution

---

\* Auteur correspondant.

Adresse e-mail : [schafer@imfs.u-strasbg.fr](mailto:schafer@imfs.u-strasbg.fr) (G. Schäfer).

### Abridged English version

Volatile organic compounds (VOCs) are a cause of serious groundwater pollution at many sites in industrial countries. In order to study both the transport of trichloroethylene (TCE) vapors in the unsaturated zone and the mass transfer of TCE from the vapor plume to the underlying groundwater, a controlled experiment has been conducted in the large outdoor research facility SCERES of the French–German Institute of Environmental Research (IFARE). In this paper, we focus on the comparison of the experiment-monitored mass of TCE transferred to the saturated zone with those calculated using an analytical solution and a numerical multiphase model.

SCERES is an artificial aquifer environment contained within a lined concrete basin (25 m × 12 m × 3 m) and packed with a main layer of uniform quartz sand having a hydraulic conductivity of  $8 \times 10^{-4}$  m/s. The hydraulic gradient in the basin was fixed to 0.0028 m/m which corresponded to a flow rate of 0.5 m<sup>3</sup>/h and an average velocity of about 0.4 m/day (Fig. 1). The vadose zone was 2 m thick with a residual water saturation of about 15%. The experiment involved injection of 5 liters of TCE at a depth of 0.35 m beneath the soil surface of SCERES, with multidepth sampling of gas and water through the unsaturated zone and across the capillary zone into underlying groundwater.

In the first mathematical approach, the multiphase multicomponent code SIMUSCOPP [9] was used in order to simulate vapor transport in the unsaturated zone of the artificial aquifer environment. In the numerical model, the transfer of TCE between the present fluid phases is based on the local thermodynamic equilibrium assumption. Fluid properties used in the simulations are summarized in Table 1; details about boundary and initial conditions as well as parameters for constitutive relationships are given in [10]. In our numerical simulations, the transverse dispersivity of the porous medium was the only fitted transport parameter. The calculated vapor concentrations were in good agreement with the measurements [10].

The analytical approach used to evaluate the mass transfer from the unsaturated zone to the underlying groundwater is based on the expression proposed by Grathwohl [11]. Compared to the original relationship, this study takes into account three modifications (1): (i) the capillary fringe is explicitly considered; (ii) an average water velocity in the capillary fringe is introduced; and (iii) TCE vapor concentrations are taken at the top of the capillary fringe (Fig. 2). Considering the spatial variation of the dimensions of the domain polluted by vapors (length  $L_k$ , width  $B_k$ ), (2) expresses the diffusive/dispersive flux element  $dF_{\text{diff/disp}}$  transferred to the groundwater for a specific surface element  $dS$  (Fig. 3). Integrating this flux element and using the symmetry of the domain, the TCE flux  $F_{\text{diff/disp}}$  transferred to the groundwater across the capillary fringe from a polluted area of radius  $R$  with a concentration  $C_{\text{FC}}^g$  is obtained (3). In order to take into account the radial decrease of concentration above the capillary fringe with distance from the residual TCE source, we applied a decomposition technique [8,10] for quantifying the global flux of TCE transferred to the groundwater at a given time. Application of (3) requires the estimation of the transverse dispersivity  $\alpha_T$ , the average water velocity in the capillary fringe  $u_{\text{FC}}$  and the effective aqueous diffusion coefficient of TCE  $D_w^e$ .

The experiment-monitored mass of TCE transferred to the groundwater is compared to those calculated with the analytical approach and the numerical model (Fig. 4). Both mathematical approaches describe well the evolution of TCE mass measured at the model outlet. Even if the analytical approach is a simplified one, the results obtained show that it is a powerful tool to evaluate the impact of TCE vapors on groundwater contamination.

## 1. Introduction

La contamination des eaux souterraines par les hydrocarbures et dérivés constitue un des problèmes majeurs de tout acteur soucieux de la protection de l'environnement. Depuis plusieurs décennies, de nombreux chercheurs se sont penchés sur ce problème pour essayer de mieux comprendre et prédire les mécanismes de pollution de notre ressource naturelle et essentielle l'eau, devenue non consommable par l'action de ces produits toxiques [1–5]. Une expérience a été réalisée sur une plate-forme expérimentale afin de pouvoir étudier le comportement des vapeurs

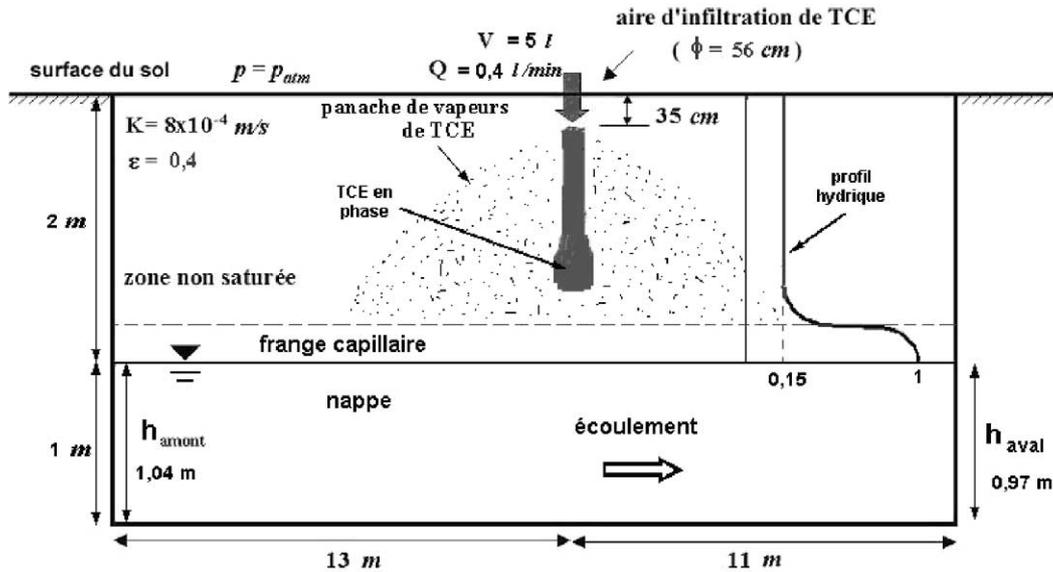


Fig. 1. Conditions initiales et aux limites de l'expérience (vue en coupe verticale).

Fig. 1. Boundary and initial conditions of the experiment (view of the vertical section).

de trichloréthylène (TCE) dans la zone non saturée et leur transfert vers la nappe à travers la frange capillaire. Ce dernier aspect est peu étudié dans la littérature [6,7]. Il s'agit de créer une pollution au sein de la zone non saturée, par des vapeurs de TCE et de quantifier la pollution de la nappe par simple contact entre ces vapeurs et l'eau de nappe en écoulement. Dans cet article, l'accent est particulièrement mis sur la quantification du flux de masse de TCE passant vers la nappe, en utilisant deux approches d'évaluation du transfert de la pollution vers la nappe : une approche numérique et une approche analytique.

## 2. Site expérimental

La plate-forme expérimentale SCERES (Site Contrôlé Expérimental de Recherche pour la réhabilitation des Eaux et des Sols) comporte un bassin étanche, enterré de  $25 \text{ m} \times 12 \text{ m} \times 3 \text{ m}$ . Il est rempli d'un sable moyen (homogène et isotrope) de porosité de  $\varepsilon = 0,4$  et de conductivité hydraulique de  $8 \times 10^{-4} \text{ m/s}$ . Le niveau piézométrique est situé à 2 m de profondeur, et l'écoulement de la nappe est établi par une différence de charge entre l'amont et l'aval. Le gradient hydraulique est fixé à 0,28%, correspondant à un débit de  $0,5 \text{ m}^3/\text{h}$  et une vitesse moyenne réelle de  $0,4 \text{ m/j}$  [8]. 5 litres de trichloréthylène (TCE) en phase ont été injectés à 35 cm sous la surface du sol en créant une source de pollution limitée à la zone non saturée (Fig. 1).

## 3. Approche numérique

La simulation numérique de la migration et du transport de TCE dans le bassin SCERES a été réalisée au moyen du modèle multiphasique multiconstituant SIMUSCOPP développé par l'Institut Français du Pétrole [9]. Le site expérimental est discrétisé à l'aide d'un maillage principal; des sous-maillages sont ensuite introduits localement pour affiner la discrétisation [10]. L'intérêt de ce type de discrétisation est de pouvoir limiter les effets de la diffusion numérique au niveau des zones de transferts et de diminuer le nombre de mailles utilisées. Des charges

Tableau 1  
Propriétés de fluides utilisées dans les simulations  
Table 1  
Fluid properties used in the numerical simulations

Propriété	Unité	TCE	Eau	Air
Masse molaire	[g/mole]	131,39	18,00	28,75
Masse volumique	[g/cm <sup>3</sup> ]	1,46	1,00	1,29 × 10 <sup>-3</sup>
Viscosité dynamique	[N·s·m <sup>-2</sup> ]	0,537 × 10 <sup>-3</sup>	1 × 10 <sup>-3</sup>	0,01728 × 10 <sup>-3</sup>

hydrauliques de 1,04 m et de 0,97 m par rapport au fond du bassin ont été imposées respectivement au niveau de la limite amont et de la limite aval (voir Fig. 1). Une pression dans la phase gazeuse de 1 atm a été imposée sur toutes les mailles au niveau de la surface du sol. La saturation résiduelle en eau a été fixée à 15%. La migration du TCE en phase et la propagation du panache des vapeurs de TCE nécessitent la prise en compte des relations constitutives à savoir les courbes de pression capillaire et les perméabilités relatives des différentes phases. La modélisation du transfert entre phases est basée sur l'hypothèse de l'équilibre local. Les détails concernant la simulation numérique sont décrits dans [10].

Les principales caractéristiques du TCE, de l'air et de l'eau sont présentées dans le Tableau 1.

La dispersivité d'un milieu poreux est liée à l'échelle d'observation et il est donc délicat de transposer des mesures réalisées au laboratoire à l'échelle du terrain. Cependant, le sable utilisé étant un sable de quartz uniforme, sa dispersivité doit rester faible, ne dépassant pas quelques centimètres. La valeur de la dispersivité longitudinale est fixée à  $\alpha_L = 1$  cm. On considère en général la dispersivité transversale égale au 1/10<sup>ème</sup> de la dispersivité longitudinale [2], soit  $\alpha_T = 1$  mm. Ainsi, la dispersivité transversale est un paramètre qui a été ajusté lors de la simulation numérique.

#### 4. Approche analytique

Le transfert de TCE de la zone non saturée vers la nappe est quantifié en se basant sur une approche analytique proposée par Grathwohl [11]. Par rapport à cette formulation, nous avons introduit trois modifications : (i) prise en compte de la frange capillaire, (ii) considération d'une vitesse moyenne dans la frange capillaire, et (iii) utilisation de la concentration en vapeurs de TCE en haut de la frange capillaire (Fig. 2). Ainsi le flux diffusif/dispersif engendré par les vapeurs vers la nappe est donné par l'expression :

$$F_{\text{diff/disp}} = 2 \frac{C_{\text{FC}}^g}{H} L_k B_k \varepsilon \sqrt{\frac{(D_w^e + \alpha_T u_{\text{FC}}) u_{\text{FC}}}{\pi L_k}} \quad (1)$$

dans laquelle  $C_{\text{FC}}^g$  est la concentration en vapeurs de TCE en haut de la frange capillaire,  $L_k$  et  $B_k$  sont respectivement la longueur et la largeur de la zone contaminée par les vapeurs,  $H$  et  $D_w^e$  sont la constante de Henry et le coefficient de diffusion aqueuse,  $u_{\text{FC}}$  est la vitesse moyenne dans la frange capillaire.

La zone source de pollution est de forme circulaire compte tenu de la migration radiale des vapeurs. A partir de (1) et en se basant sur un élément de surface rectangulaire  $dS$  (Fig. 3), le flux diffusif/dispersif élémentaire  $dF_{\text{diff/disp}}$  passant dans la nappe s'exprime par :

$$dF_{\text{diff/disp}} = 2 \frac{C_{\text{FC}}^g}{H} \varepsilon \sqrt{\frac{(D_w^e + \alpha_T u_{\text{FC}}) u_{\text{FC}}}{\pi L_k}} L_k dB_k \quad (2)$$

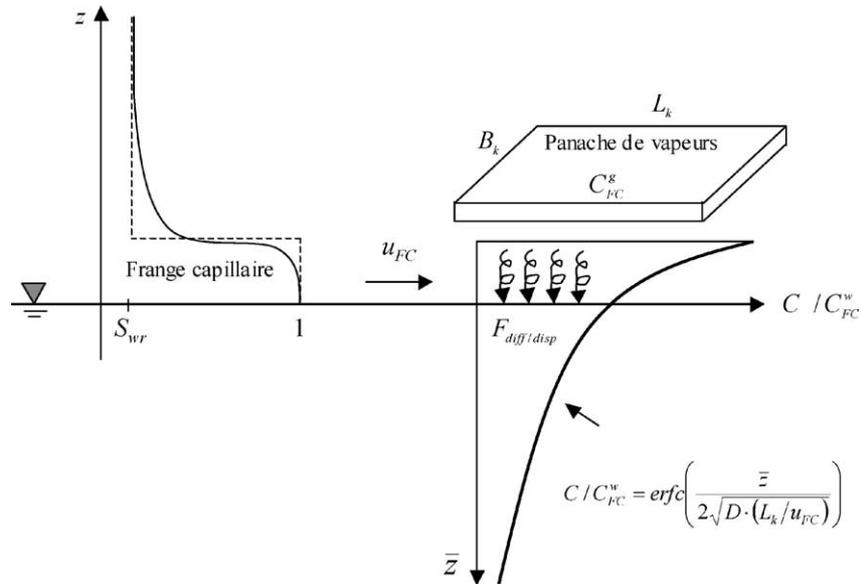


Fig. 2. Schéma de l'approche analytique.

Fig. 2. Schematic of the analytical approach.

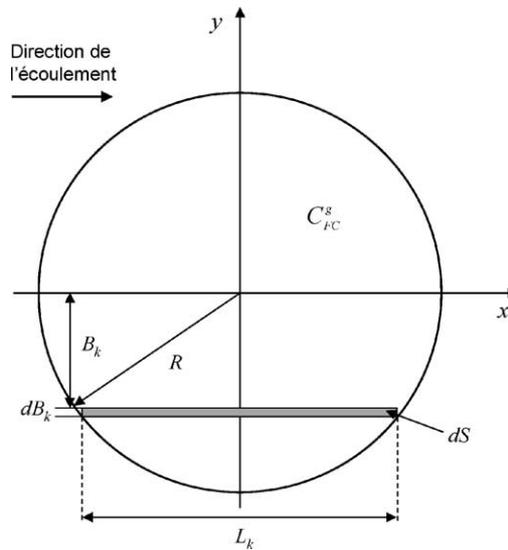


Fig. 3. Elément de surface utilisé dans l'approche analytique.

Fig. 3. Specific surface element used in the analytical approach.

avec  $B_K$  variant entre  $-R$  et  $+R$  (voir Fig. 3). En utilisant la symétrie du domaine, le flux  $F_{diff/disp}$  est obtenu par intégration de (2) :

$$F_{diff/disp} = 4\sqrt{2} \frac{C_{FC}^g}{H} \varepsilon \sqrt{\frac{(D_w^e + \alpha_T u_{FC}) u_{FC}}{\pi}} \int_0^R (R^2 - B_k^2)^{1/4} dB_k \quad (3)$$

Afin de tenir compte de la décroissance radiale de la concentration  $C_{FC}^g$  observée dans notre expérience, nous avons utilisé une technique de décomposition pour quantifier le flux de TCE intégral vers la nappe à un instant donné [8,10].

Le flux de TCE calculé à partir de (3) nécessite l'estimation de la dispersivité transversale  $\alpha_T$ , de la vitesse moyenne de l'eau dans la frange capillaire  $u_{FC}$  et du coefficient de diffusion aqueuse de TCE  $D_w^e$  :

- Une étude de sensibilité concernant la dispersivité transversale a été réalisée en utilisant une gamme de valeurs de la littérature :  $\alpha_T = 1$  mm pour un sable très proche de celui de SCERES [12],  $\alpha_T = 0,062$  mm obtenue en appliquant une relation proposée par Loyek [13], et  $\alpha_T = 0$  (diffusion moléculaire).
- Dans la frange capillaire, la variation de la teneur en air produit une variation de la perméabilité relative pour la phase aqueuse et conduit ainsi à une variation de la vitesse de l'eau avec la profondeur. Au niveau de la limite supérieure de la frange capillaire, la vitesse de l'eau est négligeable, et au niveau de la limite inférieure, la quasi-totalité des pores sont saturés en eau, et l'eau se déplace presque à la vitesse de la nappe. La perméabilité relative a été évaluée en déterminant les paramètres du modèle de van Genuchten [14] par calage de ce dernier sur le profil hydrique mesuré sur SCERES. En utilisant la loi de Darcy généralisée pour un écoulement en milieu poreux non saturé et en appliquant la fonction de perméabilité relative du modèle de Mualem–van Genuchten [15], un profil de vitesse dans la frange capillaire est calculé pour un gradient hydraulique de la nappe de 0,003 m/m. La vitesse moyenne a été déterminée à 0,1 m/j.
- Le coefficient de diffusion aqueuse de TCE est obtenu en utilisant une corrélation empirique pour la diffusion en milieu poreux de Millington and Quirk [16] et une relation de Worch [17] exprimant le coefficient de diffusion aqueuse de TCE en fonction de la température. Pour une température moyenne au niveau du toit de la nappe de 16,2 °C, il est de  $1,27 \times 10^{-5}$  m<sup>2</sup>/j.

## 5. Discussion des résultats

La masse expérimentale de TCE transférée vers la nappe est déterminée à partir des concentrations de TCE dissous mesurées à la sortie du bassin ; l'intégration par la méthode des trapèzes de la courbe de sortie donne une masse totale de 283 g (Fig. 4). La masse de TCE simulée au moyen de SIMUSCOPP, provenant de la dispersion des vapeurs à travers la frange capillaire, est comparée à la masse expérimentale (voir Fig. 4). Une dispersivité transversale fixée initialement à 1 mm, ne permet pas de simuler correctement le transfert des vapeurs vers la nappe. La dispersivité transversale permettant d'approcher le mieux la masse expérimentale est de  $\alpha_T = 1,6$  mm.

La masse expérimentale de TCE transférée vers la nappe est également comparée à celle calculée sur la base de l'approche analytique (Fig. 4). Pour les différentes valeurs de dispersivité transversale utilisées, les masses totales de TCE varient entre 122 g (diffusion moléculaire pure) et 364 g ( $\alpha_T = 1$  mm). La valeur de dispersivité transversale donnant le moindre écart par rapport aux données expérimentales est de 0,43 mm. Cette dispersivité est du même ordre de grandeur que le diamètre moyen du sable H2F ; elle est toutefois supérieure au 1/20 de la dispersivité longitudinale de 1 mm [18]. Ceci peut être attribué à la présence des bulles d'air qui font croître la tortuosité du milieu poreux. Pour cette valeur optimale, la masse de TCE passant dans la nappe par dispersion est de l'ordre de 256 g. Cette masse est comparable avec celle recueillie au déversoir aval du bassin SCERES (soit une masse totale de 283 g).

Ces résultats montrent que le transfert de masse de la zone non saturée vers la nappe est régi à la fois par la diffusion moléculaire et la dispersion verticale. La valeur de dispersivité transversale déterminée numériquement est supérieure à celle obtenue par la solution analytique. Ceci s'explique en partie par le fait que les concentrations simulées sont en moyenne de 5 à 10% plus faibles que celles mesurées au niveau de la frange capillaire [10], et nécessite par conséquent une valeur de dispersivité plus grande dans la simulation numérique.

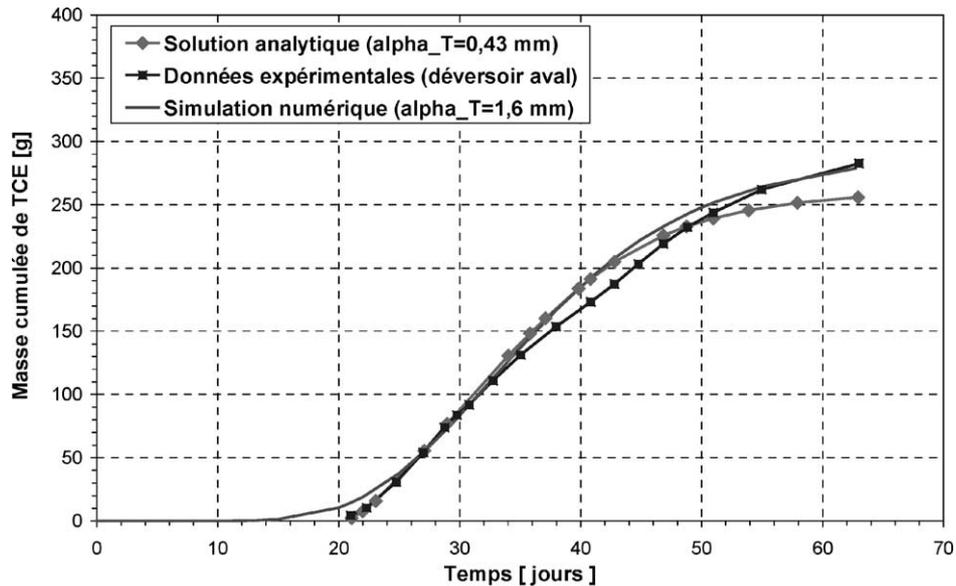


Fig. 4. Masse cumulée de TCE transférée de la zone non saturée vers la nappe : comparaison des données expérimentales avec les résultats de deux approches mathématiques.

Fig. 4. Cumulated TCE mass transferred from the unsaturated zone to the groundwater: comparison of experimental data with the two mathematical solutions.

## 6. Conclusion

Une approche numérique et une approche analytique ont été présentées pour quantifier le transfert de TCE à partir d'un panache de vapeurs vers la nappe. Les résultats obtenus ont montré un bon accord avec les mesures expérimentales. Bien que l'approche analytique soit une démarche simplifiée, elle constitue néanmoins un outil performant permettant d'évaluer l'impact des vapeurs de TCE sur la qualité de l'eau souterraine.

## Remerciements

Ce travail a bénéficié d'un soutien financier du contrat de plan Etat-Région Alsace, de l'Agence de l'Eau Rhin-Meuse (AERM) et du Programme National de Recherche en Hydrologie (PNRH).

## Références

- [1] L. Zilliox, Pollution des nappes d'eau souterraine par infiltration de pétrole brut, Etude de l'évolution dynamique et mise au point d'un dispositif de protection, Bulletin du BRGM (1968), 2<sup>e</sup> série, Section III, n° 4.
- [2] J.J. Fried, M.A. Combarous, Dispersion in porous media, in: V.T. Chow (Ed.), Advances in Hydrosciences, Vol. 7, Academic Press, New York, 1971, pp. 169–182.
- [3] F. Schwille, Die Migration von Mineralöl in porösen Medien, BWF Wasser/Abwasser, H6 (1971) 307–311; H7 (1971) 331–339; H9 (1971) 465–472.
- [4] L. Zilliox, P. Muntzer, J.J. Fried, An estimate of the source of a phreatic aquifer pollution by hydrocarbons. Oil–water contact and transfer of soluble substances in groundwater, in: Proceedings of International Symposium on Groundwater Pollution by Oil Hydrocarbons, Prague (CS), 1978, pp. 209–227.
- [5] J.J. Fried, P. Muntzer, L. Zilliox, Groundwater pollution by transfer of oil hydrocarbons, Ground Water 17 (6) (1979) 586–594.

- [6] B.E. Sleep, J.F. Sykes, Modeling the transport of volatile organics in variably saturated media, *Water Resources Res.* 25 (1989) 81–92.
- [7] C.A. Mendoza, T.A. MacAlary, Modeling of ground water contamination caused by organic solvents vapors, *Groundwater* 28 (1990) 199–206.
- [8] S. Jellali, H. Benremita, P. Muntzer, O. Razakarisoa, G. Schäfer, A large-scale experiment on mass transfer of trichloroethylene from the unsaturated zone of a sandy aquifer to its interfaces, *J. Contaminant Hydrology* 60 (2003) 31–53.
- [9] P. Le Thiez, J. Ducreux, A 3-D numerical model for analyzing hydrocarbon migration into soils and aquifers, in: H.J. Siriwardane, M.M. Zaman (Eds.), *Computer Methods and Advances in Geomechanics*, Balkema, Rotterdam, 1994, pp. 1165–1170.
- [10] H. Benremita, *Approche expérimentale et simulation numérique du transfert de solvants chlorés en aquifère alluvial contrôlé*, Thèse de doctorat, Université Louis Pasteur, Strasbourg, 2002.
- [11] P. Grathwohl, Diffusion in natural porous media: Contaminant transport, sorption/desorption and dissolution kinetics, in: *Topics in Environmental Fluid Mechanics*, Kluwer Academic, 1998.
- [12] K.A. McCarthy, R.L. Johnson, Transport of volatile organic compounds across the capillary fringe, *Water Resources Res.* 29 (1993) 1675–1683.
- [13] D. Loyek, *Die Löslichkeit und die Lösungskinetik von PAK aus der Teerphase*, Ph.D. Thesis, University of Tübingen, Tübingen, Germany, 1998.
- [14] M.Th. van Genuchten, A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils, *Soil Sci. So. Am. J.* 44 (1980) 892–898.
- [15] J.C. Parker, R.J. Lenhard, T. Koppusami, A parametric model for constitutive properties governing multiphase flow in porous media, *Water Resources Res.* 23 (1987) 618–624.
- [16] R.J. Millington, J.P. Quirk, Permeability of porous solids, *Trans. Faraday Soc.* 57 (1960) 1200–1207.
- [17] E. Worch, Eine neue Gleichung zur Berechnung von Diffusionskoeffizienten gelöster Stoffe, *Vom Wasser* 81 (1993) 289–297.
- [18] K.H. Spitz, Dispersion in porösen Medien: Einfluss von Inhomogenitäten und Dichteunterschieden, *Mitteilungen des Instituts für Wasserbau, Universität Stuttgart*, Heft 60 (1985).