

Caractérisation de zones sources de solvants chlorés en aquifères poreux à partir d'une approche mathématique d'inversion de profils de concentrations mesurés dans un panache

Ingrid Pollet, Lotfi Dridi, Gerhard Schäfer*, Olivier Razakarisoa

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

Reçu le 19 septembre 2005 ; accepté après révision le 20 décembre 2005

Disponible sur Internet le 13 février 2006

Présenté par Michel Combarrous

Résumé

Une approche de calcul est proposée pour quantifier la distribution verticale en zone saturée d'aquifères poreux d'un solvant chloré sous forme résiduelle à partir de concentrations en traces dissoutes mesurées à proximité de la source présumée. S'appuyant sur une inversion itérative des profils de concentration pour retrouver la localisation et le volume initial du polluant dans la zone source, cette étude analytique est ensuite couplée avec une modélisation numérique du transfert et du transport de traces dissoutes. L'approche innovante a été appliquée à un cas de pollution contrôlée en trichloréthylène (TCE) sur le site expérimental SCERES. Les résultats obtenus sont présentés dans cet article. *Pour citer cet article : I. Pollet et al., C. R. Mécanique 334 (2006).*
© 2005 Académie des sciences. Publié par Elsevier SAS. Tous droits réservés.

Abstract

Characterization of source zones of chlorinated solvents in porous aquifers based on a backward modelling approach of measured concentration profiles in a plume. A modelling approach was developed to quantify the vertical distribution of a source zone placed in a saturated porous aquifer and composed of a chlorinated solvent in residual phase using concentration profiles recorded at different times downstream of the spill. The first and second calculation steps comprise an iterative backward modelling to localise the contaminant and to quantify its initially released volume. Based on the results of this analytical study, a numerical transport simulation is performed, taking into account both the dissolution of the source zone and the advective-dispersive transport of dissolved trichloroethylene (TCE). This novel approach has been applied to a test case with a well known TCE spill studied on the large-scale facility SCERES; the results are presented here. *To cite this article: I. Pollet et al., C. R. Mécanique 334 (2006).*

© 2005 Académie des sciences. Publié par Elsevier SAS. Tous droits réservés.

Mots-clés : Milieux poreux ; Zone source ; Approche inverse ; Pollution ; Solvants chlorés ; Aquifère poreux

Keywords : Porous media ; Source zone ; Inverse modelling ; Pollution ; Chlorinated solvents ; Porous aquifer

* Auteur correspondant.

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

Abridged English version

The knowledge of spatial distribution and content of organic pollutants represents a central problem in groundwater contamination by chlorinated solvents. To remediate efficiently a polluted site, one needs an appropriate characterization of the source zone. In this paper, the results of a combined analytical–numerical inverse modelling approach of measured concentration profiles in a plume are presented in order to obtain possible locations of the contaminant in a vertical plane.

The analytical approach contains two steps. At the first step, the location of the contaminant is fixed in the porous medium using the measured profiles and considering the dissolution of the organic phase (Fig. 1). Applying the mass conservation equation under stationary conditions and taking into account only advective transport, the concentration of the contaminant in layer i for a chosen observation point is given by (1). Under uniform flow conditions and for a regular grid mesh, (1) simplifies to (2). In the second step, the volume of contaminant in cell j of layer i is estimated using (3). In the final step, a multiphase advective–dispersive transport model is used to adjust the volumes quantified in the second step.

The inversion method was tested with data obtained from a large scale experiment on SCERES with a Trichloroethylene (TCE) spill [6]. In order to detail the source zone (Fig. 2) a non regular mesh was chosen in the numerical multiphase multicomponent simulator SIMUSCOPP [7]. Initial volumes of TCE obtained analytically are presented in Table 1; the maximum value corresponds to the residual saturation of TCE. Figs. 3 and 4 show a good agreement of measured, analytical and numerical concentration profiles; the observed differences are due to the dispersion term which is taken into account only in the numerical approach. The obtained results underline that it is possible to determine the distribution of a residual pollution source from dissolved concentration profiles measured downstream of the impregnation body. However, the source zone might be better described when additional concentration measurements are available.

1. Introduction

De nombreux cas de pollution d'aquifères par des composés Organo-Halogénés Volatils (OHV) ont été recensés ces dernières décennies dans les pays industrialisés. Les solvants chlorés représentent la part la plus importante de ces OHV tant en terme d'utilisation industrielle que de source de pollution du milieu souterrain [1–3]. Leur densité étant plus élevée que celle de l'eau, ils peuvent pénétrer dans la zone saturée et, du fait de leur faible solubilité, ils constituent des sources de pollution à long terme des aquifères poreux. Afin de dépolluer efficacement un site contaminé par des solvants chlorés, il est nécessaire de déterminer précisément l'étalement de la phase polluante dans le sol. Or la migration de ces substances dans le milieu souterrain n'est pas uniforme due à l'hétérogénéité du milieu poreux. De plus, même en milieu poreux homogène à l'échelle de Darcy, le front d'infiltration du polluant est souvent soumis à des digitations visqueuses. Dans ce cas, le corps d'imprégnation a une forme plus ou moins hétérogène selon l'importance du phénomène [4].

Dans cet article, l'accent est mis sur la présentation d'une approche mathématique permettant de déterminer une ou plusieurs distributions de la phase polluante dans le milieu poreux produisant par dissolution du polluant non miscible des profils de concentrations mesurés à l'aval de la source.

2. Approche de calcul

L'approche se base sur une inversion (ou déconvolution) de concentrations de traces dissoutes mesurées en aval de la source de pollution supposée être immobile et composée d'un fluide non miscible à l'eau. Elle se déroule en trois étapes :

- étape 1 : localisation de la phase polluante résiduelle aux instants de mesure des profils verticaux de concentrations en traces dissoutes du polluant,
- étape 2 : détermination du volume initial à distribuer dans la zone source afin de retrouver les localisations de la phase de polluant établies à l'étape précédente pour chaque profil mesuré,
- étape 3 : simulation numérique de la dissolution du polluant mis en place dans la zone source présumée et du transport de traces dissoutes avec un code numérique multiphasique afin de valider ou non les étapes 1 et 2.

Si la distribution des volumes initiaux n'est pas validée par l'étape 3, un réajustement de ceux-ci par une boucle itérative est nécessaire.

2.1. Etape 1 : Localisation de la phase polluante

L'objectif de cette première étape consiste donc à déterminer à un instant t la distribution de la phase polluante permettant de reproduire le profil de concentrations mesuré à cette date. Au voisinage de la phase polluante, la concentration en polluant dans la phase aqueuse est supposée proche de la solubilité. Toutefois, quelques mètres à l'aval hydraulique de la source, ces teneurs sont nettement plus faibles du fait des mécanismes de diffusion, de dispersion et de la prise de moyenne des concentrations liée au prélèvement de l'échantillon d'eau.

Dans l'approche de calcul, la diffusion et la dispersion sont négligées et seul le transport du polluant par advection depuis la source jusqu'au point de mesure puis la prise d'échantillon sont considérés. Cette méthode nécessite une discrétisation de la source suivant deux directions dans un plan perpendiculaire à l'écoulement principal. La discrétisation verticale (Z) est motivée par la finesse de l'échantillonnage ; dans la direction transversale (Y), elle répond à la nécessité d'une schématisation plus fine de la source par rapport au point de mesure afin de reproduire le phénomène d'homogénéisation du prélèvement (Fig. 1) [5]. Une manière judicieuse de réaliser cet affinement du maillage au droit de la source est de tenir compte de la zone d'influence de la prise d'échantillon, de la localisation relative des points d'observation dans la direction Y , de la finesse de la description de la source souhaitée et des contraintes liées au code numérique utilisé pour l'étape 3.

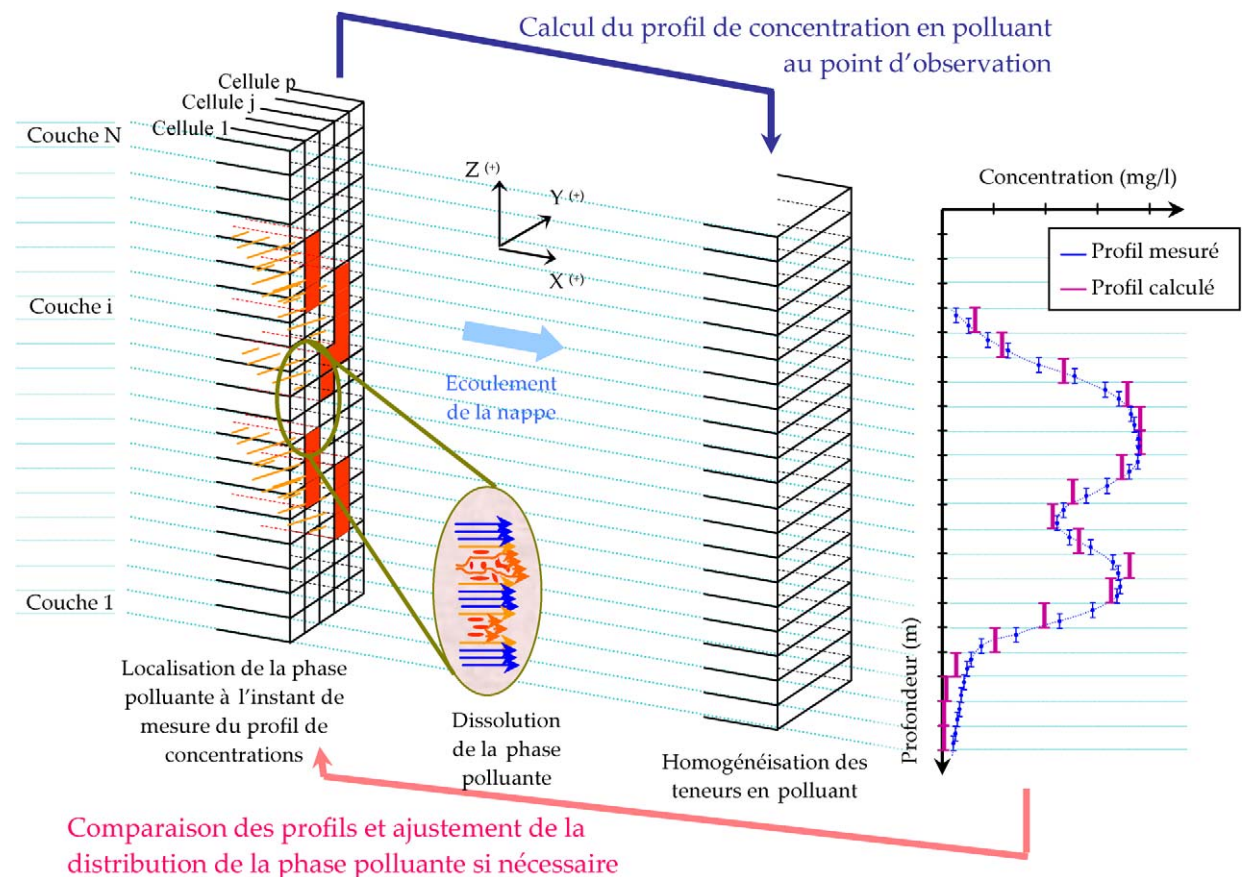


Fig. 1. Principe de localisation de la phase polluante (étape 1) à un instant donné et pour un point d'observation.

Fig. 1. Principle used to localize the contaminant as a pure phase (step 1) at a given time and for a chosen observation point.

En appliquant la loi de conservation de la masse en régime d'écoulement permanent et en négligeant la dégradation, la sorption, la diffusion et la dispersion, la concentration du polluant au point d'observation est calculée de la manière suivante :

$$C_i = \frac{\sum_{j=1}^p (Q_j^i \delta_j^i S)}{\sum_{j=1}^p Q_j^i} \quad (1)$$

où C_i [ML^{-3}] est la concentration du polluant dans la couche i , δ_j^i [-] caractérise la présence ($\delta_j^i = 1$) ou non ($\delta_j^i = 0$) du polluant dans la cellule j de la couche i , Q_j^i [$\text{L}^3 \text{T}^{-1}$] est le débit volumique de l'eau traversant la cellule j de la couche i , S [ML^{-3}] est la solubilité du polluant et p est le nombre total de cellules par couche dans la zone source.

Pour le cas particulier d'un champ d'écoulement uniforme (cas simplifié applicable sur un site pour lequel la distribution des vitesses serait inconnue) et d'une discrétisation régulière, la relation (1) devient :

$$C_i = \frac{1}{p} \sum_{j=1}^p (\delta_j^i S) \quad (2)$$

Notons que cette approche permet d'obtenir plusieurs configurations de la phase polluante aboutissant aux mêmes profils de concentrations calculés si le nombre de cellules imprégnées par couche est inférieur au nombre total de cellule, soit p .

2.2. Etape 2 : Quantification du volume initial

Cette seconde étape consiste à évaluer les volumes à introduire initialement dans les cellules du modèle numérique afin de retrouver, par dissolution d'une certaine quantité de polluant, la distribution de la saturation en solvants chlorés déterminée à l'instant t dans l'étape 1. Ces volumes sont estimés de la manière suivante :

$$V_j^i = \frac{(t - t_0) S Q_j^i}{\rho_{\text{po}}} \quad (3)$$

où V_j^i [L^3] est le volume du polluant à introduire dans la cellule j de la couche i , t_0 [T] et t [T] sont respectivement la date de déversement du polluant et la date de mesure du profil de concentrations et ρ_{po} [ML^{-3}] est la masse volumique du polluant.

Le volume calculé V_j^i à partir de cette relation ne peut être supérieur au volume correspondant à la saturation résiduelle du polluant car cette méthode suppose que la migration de la phase polluante est achevée. Par ailleurs, en tenant compte de l'évolution temporelle des profils observés, il est possible de déterminer le volume minimal de polluant à introduire par maille au droit de la zone source. Enfin, si une atténuation voire une disparition des concentrations en polluant est observée dans la couche i entre deux instants, la relation (3) donne également une estimation du volume maximal initialement présent dans la couche i de la source. Par contre, si le suivi des concentrations dans le panache n'est pas suffisamment long, cette méthode ne permet pas de quantifier très précisément le volume maximal initialement déversé.

2.3. Etape 3 : Simulation numérique

La fonction d'entrée caractérisant la distribution initiale de la phase polluante dans le modèle numérique est construite à partir des résultats analytiques obtenus dans les étapes précédentes. Dans cette troisième étape, la dissolution de la phase polluante et le transport en phase aqueuse du soluté sont simulés. Contrairement à l'étude analytique, la dispersion hydrodynamique est prise en compte dans le calcul.

Les profils mesurés et calculés sont comparés. Un écart relatif maximal est à définir en fonction de la qualité des mesures et des contraintes de terrain. Si ce critère n'est pas respecté, il est nécessaire d'ajuster la distribution du polluant en fonction à la fois des différentes configurations obtenues à l'étape 1 et de la variation du volume par maille déterminée à l'étape 2.

3. Mise en application

3.1. Description du cas test

En 2003, une étude expérimentale a été menée sur la plate-forme SCERES avec une mise en place contrôlée d'une zone source en trichloréthylène (TCE) [6]. SCERES est un bassin instrumenté et enterré de grandes dimensions ($25 \text{ m} \times 12 \text{ m} \times 3 \text{ m}$) comprenant un milieu poreux principal (sable moyen de conductivité hydraulique $8 \times 10^{-4} \text{ m/s}$ environ et de porosité cinématique 0,4). Durant cette expérience, 5,2 litres de TCE ont été injectés dans la zone saturée de l'aquifère à 0,20 m sous le toit de la nappe.

Bien que l'injection ait été réalisée de manière à créer une zone source uniforme, le suivi des concentrations en TCE a révélé des profils verticaux et transversaux des concentrations non homogènes. Il est donc probable que le corps d'imprégnation ait été distribué de manière non uniforme à cause de la présence d'hétérogénéités des propriétés hydrodynamiques à l'échelle locale dans le milieu principal.

Le modèle numérique employé est le code multiphasique multicomposant SIMUSCOPP [7].

3.2. Discrétisation spatiale utilisée

Il est nécessaire que la discrétisation spatiale du modèle numérique utilisée pour valider la troisième étape correspond à celle de l'étude analytique. Cette dernière a été élaborée en prenant en compte le schéma d'échantillonnage d'eau appliqué sur SCERES. Ainsi, des échantillons ayant été prélevés tous les 0,15 m selon Z , la discrétisation spatiale suivant la profondeur doit être au moins aussi fine au voisinage de la source et du point d'observation P (Fig. 2). Le pas d'espace appliqué verticalement est donc de 0,10 m.

Par ailleurs, en supposant que les hétérogénéités des profils de concentrations soient liées à la digitation visqueuse du front d'infiltration du polluant, la prise de moyenne des concentrations pour calculer le profil des teneurs en TCE au

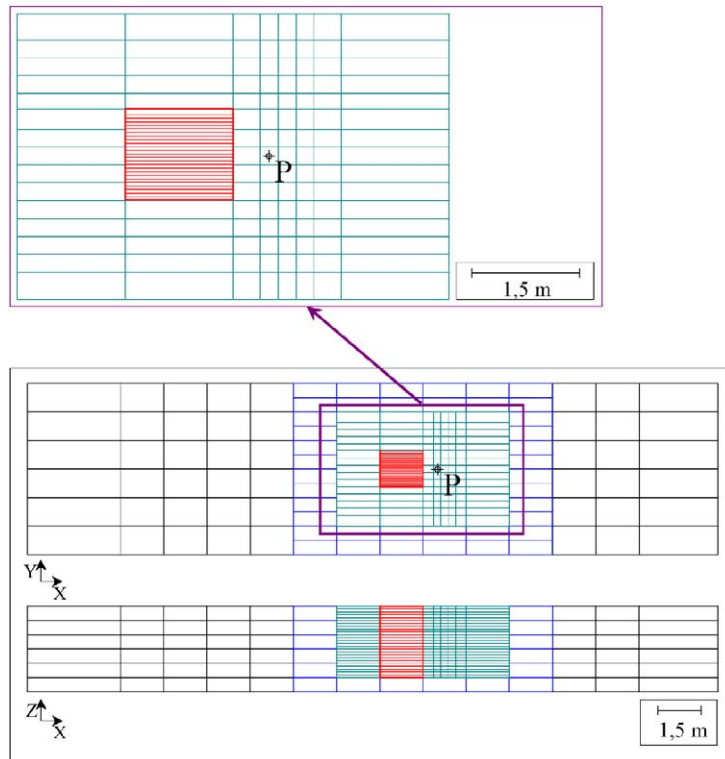


Fig. 2. Discrétisation spatiale du modèle numérique.

Fig. 2. Spatial discretization used in the numerical model.

point P est effectuée suivant la direction Y transversale à l'écoulement. La discrétisation spatiale dans cette direction est donc nécessairement plus fine au droit du corps d'imprégnation qu'au voisinage du point P .

Enfin, les profils de concentrations ayant été mesurés en un seul point situé sur une trajectoire de l'écoulement du polluant dissous, nous manquons d'information permettant d'affiner la répartition de la phase polluante suivant cette direction (X). C'est pourquoi, afin de simplifier l'étude, nous considérons que la phase polluante est distribuée de manière homogène dans la direction longitudinale. Il n'est donc pas nécessaire d'affiner le maillage suivant X .

Le maillage adopté pour l'étude numérique (étape 3) comporte des sous-maillages affinés (Fig. 2). En rouge apparaît le maillage le plus fin dans lequel est mis en place la phase polluante. Ce maillage comprend $1 \times 25 \times 25$ mailles, de dimension $1,5 \text{ m} \times 0,05 \text{ m} \times 0,10 \text{ m}$.

3.3. Résultats obtenus

3.3.1. Localisation de la phase polluante

Sur la Fig. 3 sont présentés les résultats de l'étude analytique, soit la distribution par couche de la phase polluante dans le maillage rouge et les profils verticaux de concentrations calculés et mesurés au point P situé à 0,50 m à l'aval du corps d'imprégnation. Les profils mesurés apparaissent correctement reproduits par la méthode analytique bien que les concentrations maximales calculées soient légèrement inférieures à celles mesurées, excepté pour les premières mesures. Ce résultat peut être lié à la non prise en compte de la dispersion longitudinale et transversale.

3.3.2. Répartition du volume initial de TCE dans la zone source

Pour conserver une cohérence avec le déroulement de l'expérience, nous avons choisi de disposer les cellules imprégnées en respectant le protocole de mise en place de la source. La quantité de polluant à introduire dans chaque

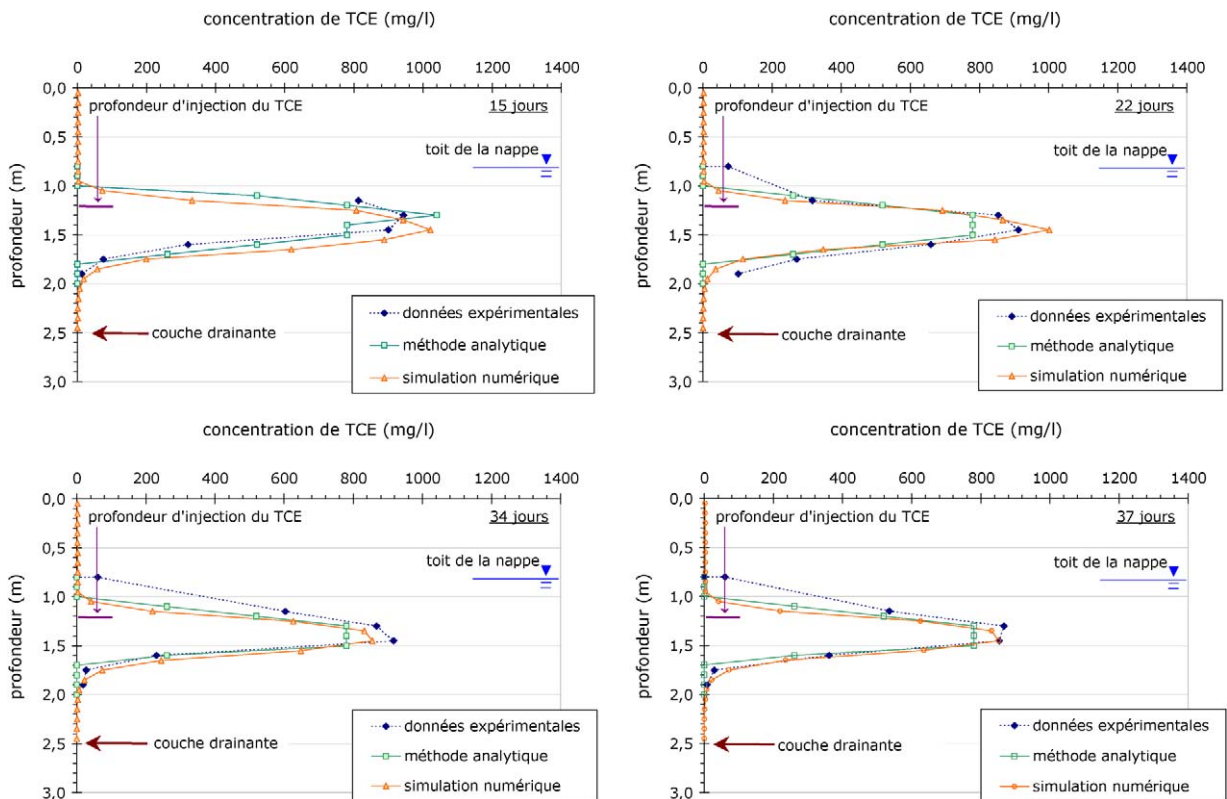


Fig. 3. Profils verticaux des teneurs en TCE mesurés et calculés à différentes dates (méthode analytique : étapes 1 et 2 ; simulation numérique : étape 3).

Fig. 3. Measured and calculated TCE concentration profiles at different times (analytical study: steps 1 and 2; numerical simulation: step 3).

Tableau 1
Volumes de TCE (ml) introduits dans le modèle numérique

Table 1
Volume of TCE (ml) introduced in the numerical model

Profondeur (m)	Numérotation des cellules suivant la direction Y dans le maillage rouge														
	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20
0,8															
0,9															
1,0															
1,1	180				180			5	28	5			180		
1,2	180				180			28	180	5			180		
1,3	180	180			180			180	180	28			180	180	
1,4	180	180			180			180	180	49			180	180	
1,5	180	171			47			43	180				180	50	
1,6	171				16				47				171		
1,7									16						
1,8															
1,9															
2,0															

cellule imprégnée est calculée à partir de la relation (3). Prenons l'exemple d'une cellule assainie à une date t_2 . A une date antérieure t_1 , une certaine quantité de polluant était encore présente dans cette cellule. Le volume V à introduire dans la cellule est compris entre V_1 calculé à partir de la relation (3) pour la date t_1 et V_2 pour la date t_2 . Par ailleurs, le volume total de TCE déversé dans SCERES pour cette expérience est de 5,2 litres et chaque cellule du maillage rouge ne peut contenir au maximum que 180 ml de TCE, volume correspondant à la saturation résiduelle maximale du polluant (soit 6%). Toutefois, un facteur 0,8 a été affecté au calcul précédent afin de prendre en compte la perméabilité relative de la phase aqueuse due à la présence du corps d'imprégnation. Les volumes introduits dans le modèle numérique sont présentés dans le Tableau 1 ; la numérotation des cellules correspond aux repères du maillage rouge.

3.3.3. Simulation numérique multiphasique

Les caractéristiques du milieu poreux et les propriétés des fluides sont celles adoptées dans les études numériques réalisées jusqu'ici [8,9]. Sur la Fig. 3 sont reportés les profils calculés par la méthode analytique, la simulation numérique 3D et les profils mesurés. Les différences observées entre les profils calculés analytiquement et numériquement sont probablement liées à la dispersion hydrodynamique qui n'est prise en compte que dans la simulation numérique. En effet, les concentrations maximales et l'extension verticale du profil calculées numériquement sont légèrement plus importantes, quelle que soit la date de mesure, tout en restant relativement proches. Néanmoins, les profils mesurés sont mieux reproduits par la simulation numérique où les concentrations maximales sont plus proches et le centre de masse des profils est mieux localisé.

Notons que les profils verticaux n'ont été mesurés qu'en un point durant cette expérience. Il n'est donc pas possible d'améliorer la caractérisation de la source suivant la direction longitudinale de l'écoulement de la nappe.

Par ailleurs, les profils transversaux des concentrations en TCE calculés par SIMUSCOPP et mesurés sont présentés sur la Fig. 4. Les profils calculés aux profondeurs 1,35 m et 1,25 m reproduisent de manière satisfaisante les données expérimentales.

4. Conclusion

L'étude montre qu'il est possible de déterminer une distribution d'une source résiduelle de polluant à partir de profils de concentrations mesurés à proximité du corps d'imprégnation. Cependant, la caractérisation de la source pourrait être affinée en multipliant les points de mesures de ces profils : en considérant plusieurs points situés sur des lignes de courant différentes, il est possible d'affiner la description de la zone source dans le plan perpendiculaire à l'écoulement. Toutefois, une distribution détaillée de la source suivant l'écoulement ne peut être obtenue qu'en plaçant des points d'observation dans le corps d'imprégnation même. D'autres études sont en cours pour tester l'approche de

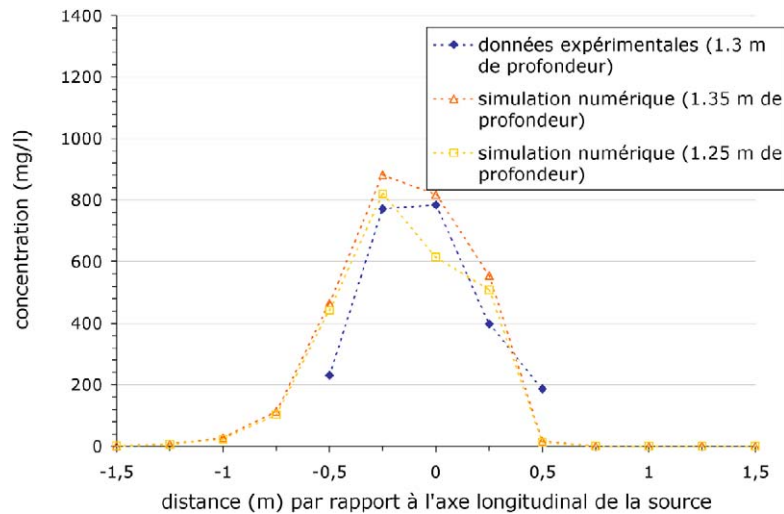


Fig. 4. Profils transversaux des concentrations en TCE mesurés et calculés à l'aval de la source, après 37 jours.

Fig. 4. Measured and calculated dissolved TCE concentrations in a transect downstream of the source, at 37 days.

calcul dans le cas d'une zone source composée de plusieurs fluides non miscibles et placée dans un milieu poreux hétérogène.

Remerciements

Ces études ont bénéficié d'une bourse de thèse financée par la Région Alsace et d'un soutien financier dans le cadre du Contrat de Plan Etat-Région Alsace, du PPF « IFARE », de conventions Agences de l'Eau (Inter-Agences, AERM) et de l'ADEME.

Références

- [1] R.M. Cohen, J.W. Mercer, in: C.K. Smoley (Ed.), DNAPL Site Evaluation, CRC Press, Florida, USA, 1993, p. 200.
- [2] J.F. Pankow, J.A. Cherry, Dense Chlorinated Solvent and Other DNAPLs in Ground Water: History, Behavior and Remediation, Waterloo Press, Ontario, Canada, 1996, 260 p.
- [3] M. Quintard, J.-M. Côme, M. Bohy, F. Haeseler, P.A. Le Thiez, R. Mosé, C. Mouton, F. Nex, I. Pollet, O. Razakarisoa, A. Roger, M. Ropars, G. Schäfer, S. Traverse, Etat de l'art sur la modélisation, atténuation, caractérisation dans les aquifères des composés organo-halogénés, Rapport ADEME, projet MACAOH, 2004, 210 p.
- [4] T.H. Wiedemeier, H.S. Rifai, C.J. Newell, J.W. Wilson, Attenuation of source zones and formation of plumes, in: Natural Attenuation of Fuels and Chlorinated Solvents in the Subsurface, John Wiley & Sons, New York, 1999, pp. 27–113.
- [5] I. Pollet, Simulation numérique du devenir de solvants organo-halogénés en nappes d'eau souterraine sur site réel, Thèse, Université Louis Pasteur, Strasbourg, 2004, 229 p.
- [6] L. Dridi, Caractérisation par la technique du traceur bisoluble des sources de pollution par solvants chlorés en aquifère poreux, DEA Mécanique et Ingénierie, Université Louis Pasteur, Strasbourg, 2003, 59 p.
- [7] P.A. Le Thiez, J. Ducreux, A 3-D numerical model for analysing hydrocarbon migration into soils and aquifers, in: Siriwardane, Zaman (Eds.), Computer Methods and Advances in Geomechanics, Balkema, Rotterdam, 1994, pp. 1165–1170.
- [8] H. Benremita, G. Schäfer, Transfert du trichloréthylène en milieu poreux à partir d'un panache de vapeurs, C. R. Mecanique 331 (2003) 835–842.
- [9] M. Bohy, Caractérisation de sources de pollution composées d'un mélange de solvants chlorés en aquifère alluvial. Expérimentations en laboratoire et sur site contrôlé associées à la simulation numérique, Thèse, Université Louis Pasteur, Strasbourg, 2003, 170 p.