

Dépollution des Sols par l'Extraction MultiPhasique MPE: Développement d'un Modèle Numérique

Daoud Esrael

► To cite this version:

Daoud Esrael. Dépollution des Sols par l'Extraction MultiPhasique MPE : Développement d'un Modèle Numérique. Ingénierie de l'environnement. INSA de Lyon, 2015. Français. NNT : 2015ISAL0134 . tel-01277663

HAL Id: tel-01277663 https://hal.science/tel-01277663

Submitted on 23 Feb 2016 $\,$

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers. L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés. Thèse

Dépollution des Sols par l'Extraction MultiPhasique MPE : Développement d'un Modèle Numérique

Présentée devant

L'Institut National des Sciences Appliquées (INSA) de Lyon

Pour obtenir

Le grade de Docteur

École doctorale École doctorale de Chimie de Lyon (Chimie, Procédé, Environnement)

> Formation doctorale Sciences de l'Environnement Industriel et Urbain

> > Par

Daoud ESRAEL

Soutenue le 17 décembre 2015 devant la Commission d'examen

Membres du jury :

AUROUSSEAU Marc	Professeur, INP-Pagora-Grenoble/ LGP2	Examinateur
AZAROUAL Mohamed	HDR, BRGM-Orléans/ D3E	Rapporteur
BENADDA Belkacem	Professeur, INSA-Lyon/ LGCIE-DEEP	Directeur de thèse
BUFFIÈRE Pierre	Professeur, INSA-Lyon/ LGCIE-DEEP	Examinateur
JALLUT Christian	Professeur, UCB-Lyon/ LAGEP	Examinateur
KACEM Mariem	Maître de Conférence, ENISE-St Etienne/ LTDS	Encadrant
SCHÄFER Gerhard	Professeur, UDS-Strasbourg/ LHyGeS	Rapporteur
SOULI Hanène	Maître de Conférence, ENISE-St Etienne/ LTDS	Examinateur

Laboratoires de recherche :

Laboratoire de Génie Civil et d'Ingénierie Environnementale (LGCIE-DEEP) Laboratoire de Tribologie et Dynamique des Systèmes UMR 5513 (LTDS, ENISE)

SOMMAIRE

LISTE DES ÉCO	LES DOCTORALES	4
REMERCIEMEN	VTS	5
RESUME		6
ABSTRACT		7
COMMUNICATI	ONS SCIENTIFIQUES	8
LISTE DES MAT	IERES	9
LISTE DES FIGU	JRES	. 13
LISTE DES TAB	LEAUX	. 17
ABREVIATIONS	, NOMENCLATURES ET INDICES	. 19
INTRODUCTION	N GENERALE	. 29
CHAPITRE I.	: ÉTUDE BIBLIOGRAPHIQUE	. 35
CHAPITRE II.	: MATERIELS ET METHODES	109
CHAPITRE III.	: MODELISATION	137
CHAPITRE IV.	: RESULTATS ET DISCUSSIONS	151
CHAPITRE V.	: ESSAI D'APPLICATION A L'ÉCHELLE DU TERRAIN	203
CONCLUSIONS	ET PERSPECTIVES	229
REFERENCES B	IBLIOGRAPHIQUES	235
ANNEXES		251

LISTE DES ÉCOLES DOCTORALES

Quinquennal 2011-2015, INSA direction de la recherch	e
--	---

SIGLE	ECOLE DOCTORALE	NOM ET COORDONNEES DU RESPONSABLE
CHIMIE	<u>CHIMIE DE LYON (</u> Chimie, Procédé, Environnement)	M. Jean Marc LANCELIN Université de Lyon – Collège Doctoral
	http://www.edchimie-lyon.fr	43 bd du 11 novembre 1918 69622 VILLEURBANNE Cedex
	Sec : Renée EL MELHEM Bat Blaise Pascal 3 ^e etage	Tél : 04.72.43 13 95 directeur@edchimie-lvon.fr
	04 72 43 80 46 Insa : R. GOURDON	
EEA	ELECTRONIQUE. ELECTROTECHNIQUE AUTOMATIQUE	M. Gérard SCORLETTI
D.D.A.	http://edeea.ec-lyon.fr	Ecole Centrale de Lyon 36 avenue Guy de Collongue 60134 ECULI V
	Sec : M.C. HAVGOUDOUKIAN <u>eea@ec-lyon.fr</u>	Tél : 04.72.18 60.97 Fax : 04 78 43 37 17 Gerard.scorletti@ec-lyon.fr
	EVOLUTION, ECOSYSTEME,	Mme Gudrun BORNETTE
E2M2	MICROBIOLOGIE, MODELISATION http://e2m2.universite-lyon.fr	CNRS UMR 5023 LEHNA Université Claude Bernard Lyon 1
	Sec : Safia AIT CHALAL	Bât Forel 43 bd du 11 novembre 1918
	Bat Darwin - UCB Lyon 1	69622 VILLEURBANNE Cédex
	04.72.43.28.91 Insa : H_CHARLES	Tél : 06.07.53.89.13
	Safia.ait-chalal@univ-lyon1.fr	
	INTERDISCIPLINAIRE SCIENCES-	Mme Emmanuelle CANET-SOULAS
EDISS	SANTE http://www.ediss.lvon.fr	INSERM U1060, CarMeN lab, Univ. Lyon 1
	Sec : Safia AIT CHALAL	Bâtiment IMBL 11 avenue Jean Capelle INSA de Lvon
	Hôpital Louis Pradel - Bron	696621 Villeurbanne
	04 72 68 49 09	Tél : 04.72.68.49.09 Fax :04 72 68 49 16
	Insa : M. LAGARDE <u>Safia.ait-chalal@univ-lyon1.fr</u>	Emmanuelle.canet@univ-lyon1.fr
	INFORMATIQUE ET	Mme Sylvie CALABRETTO
INFOMATHS	<u>MATHEMATIQUES</u> http://infomaths.univ-lyon1.fr	LIRIS – INSA de Lyon
		7 avenue Jean Capelle
	Sec :Renée EL MELHEM	69622 VILLEURBANNE Cedex
	Bat Blaise Pascal	Tél : 04.72. 43. 80. 46 Fax 04 72 43 16 87
	3° etage infomaths@univ-lyon1.fr	Sylvie.calabretto@insa-lyon.fr
	MATERIAUX DE LYON	M. Jean-Yves BUFFIERE
Matériaux	neep.//euo+.universite-iyon.ir	INSA de Lyon
	Sec : M. LABOUNE	Bâtiment Saint Exupéry
	PM: 71.70 -Fax: 87.12	7 avenue Jean Capelle
	Bat. Saint Exupery	69621 VILLEURBANNE Cedex
		Ed.materiaux@insa-lyon.fr
MEGA	MECANIQUE, ENERGETIQUE, GENIE	M. Philippe BOISSE
MEGA	http://mega.universite-lyon.fr	INSA de Lyon Laboratoire LAMCOS
		Bâtiment Jacquard
	Sec : M. LABOUNE	25 bis avenue Jean Capelle
	Bat. Saint Exupérv	09021 VILLEURBANNE Cedex
	mega@insa-lyon.fr	Philippe.boisse@insa-lyon.fr
ScSo	<u>ScSo*</u> http://recherche.univ-lyon2.fr/scso/	Mme Isabelle VON
		BUELIZINGLOEWEN
	Sec : Viviane POLSINELLI	86 rue Pasteur
	Brigitte DUBOIS	69365 LYON Cedex 07
	insa : J.Y. IOUSSAINI viviane polsinelli@univ-lvon2 fr	Tél: 04.78.77.23.86 Fax: 04.37.28.04.48

*ScSo : Histoire, Géographie, Aménagement, Urbanisme, Archéologie, Science politique, Sociologie, Anthropologie

REMERCIEMENTS

Ce travail a été effectué au sein du Laboratoire de Génie Civil et d'Ingénierie Environnementale de l'Institut National des Sciences Appliquées de Lyon.

Je tiens à remercier en tout premier lieu et à témoigner toute ma reconnaissance à mon directeur de thèse Professeur Belkacem BENADDA pour m'avoir guidé, orienté, soutenu scientifiquement, et motivé moralement à m'investir dans ce travail tout au long de ces années afin de le rendre disponible. J'espère qu'il trouvera ici le témoignage de ma reconnaissance.

Je remercie Madame Mariem KACEM, mon encadrant, qui n'a jamais épargné son temps pour répondre à mes interrogations et m'entourer de ses conseils avec le souci de me faire profiter de son expérience, j'adresse ma profonde reconnaissance.

Je tiens également à remercier Monsieur le professeur Pierre BUFFIERE directeur-adjoint du labo LGCIE-DEEP de m'avoir accueilli et assurer le bon déroulement de ma thèse.

Mes plus vifs remerciements s'adressent aux membres du jury, à Monsieur Gerhard SCHÄFER, Professeur à l'université de Strasbourg et Monsieur Mohamed AZRAROUL, HDR à BRGM/D3E de me faire l'honneur d'accepter d'être rapporteurs de ce travail.

A tous les membres du laboratoire qui m'ont aidé de près ou de loin, par leurs remarques et leur soutien, j'adresse ma reconnaissance.

Merci à tous mes amis et mes collègues pour tous les moments qu'on a partagés durant cette période.

A titre plus personnel, je remercie toute ma famille, mes parents, ainsi que mes frères, qui m'ont toujours soutenu durant cette thèse. Une pensée particulière à Rasha, mon amour, qui m'a aidé, soutenu, encouragé et supporté durant cette période et mes petites merveilles Eleanor et Elssa. Sans vous, cette aventure «incroyable » n'aurait pas été la même.

Un problème sans solution est un problème mal posé (Einstein)

A VoUs ToUs GrAnDMERCI

RESUME

Aujourd'hui, plus de 65% des sites pollués en France le sont par des COVs (BASOL), considérés comme étant très dangereux et toxiques pour l'homme et l'environnement. Cela nécessite d'utiliser des techniques de traitement pour restaurer les sites et limiter les risques de propagation vers les eaux souterraines. L'extraction multiphasique MPE est une méthode physique de traitement des COVs. Elle a plusieurs avantages : essentiellement économique, le fait de pouvoir être utilisée in-situ et le fait de permettre la remédiation simultanée de deux zones saturée et non saturée du sous-sol.

L'objectif de cette thèse est d'étudier cette technique en développant un modèle mathématique qui permet de décrire l'écoulement multiphasiques des différentes phases, le transport et le transfert de masse entre ces phases.

Deux sols sableux et un polluant modèles sont choisis et caractérisés. Des dispositifs expérimentaux sont utilisés pour l'étude de l'écoulement diphasique et multiphasique ainsi que l'étude de transfert de masse. Un modèle numérique est développé, il se compose de trois EDPs pour l'écoulement (gazeuse, aqueuse et PLNA) et quatre EDPs pour le transport/transfert de masse pour chaque composé.

La validation du modèle MPE est réalisée par la vérification de différentes parties qui le constituent séparément. La partie de l'écoulement diphasique est vérifiée à travers les résultats d'expérience de drainage sur colonne 1D et sur des résultats issus de la littérature d'une cellule type Hele-show 2D. L'importance du choix des conditions aux limites est mise en évidence. La partie de l'écoulement triphasique est vérifiée à travers les résultats d'expériences d'infiltration sur cellule 2D, l'une réalisée au laboratoire et l'autre issue de la littérature. L'étude porte sur l'effet du choix des dimensions d'expériences de laboratoire sur l'extrapolation des résultats à l'échelle du terrain. La partie transport/transfert de polluant est vérifiée à travers des expériences d'extraction sous vide/Venting. Le coefficient de transfert est déterminé avec une meilleure précision que celle des modèles issus de la littérature.

Enfin une simulation à l'échelle de terrain est effectuée avec le modèle MPE pour simuler la dépollution d'un site pollué selon un scénario supposé et développé par la MPE. Les limites de la méthode pour la dépollution de la frange capillaire sont mises en évidence.

Mots Clés : Extraction Multiphasique, Extraction sous vide/Venting, Modélisation, Écoulement Multiphasique, transport/transfert, Dépollution des Sols, COVs, PLNA.

ABSTRACT

Today, over 65% of polluted sites in France are by VOCs (BASOL), considered to be very dangerous and toxic to humans and the environment. This requires using treatment techniques to restore the sites and limit the risk of spread to groundwater. The multiphase extraction MPE is a physical method of soil VOCs treatment. It has several advantages: essentially economic, being able to be used in site and permitting the simultaneous remediation of both saturated and unsaturated zones.

The objective of this thesis is to study this technique by developing a mathematical model to describe the multiphase flow of different phases, transport and mass transfer between these phases.

Two sandy soils and a pollutant models are selected and characterized. Experimental devices are used to study the two-phase, multiphase flow and mass transfer. A numerical model is developed; it consists of three PDEs for the flow (gas, water and NAPL) and four PDEs to pollution transport/mass transfer for each compound.

MPE Model validation is performed by the verification of different constituent parts separately. The two-phase flow is confirmed by the drainage experiment results of 1D column and of the results of the literature of a 2D Hele-show tank. The importance of the choice of boundary conditions is highlighted. The part of the three-phase flow is verified through the results of infiltration experiments on 2D tank, one conducted in the laboratory and the other of the literature. The study focuses on the effect of the choice of laboratory experiments dimensions on the extrapolation of results across the field. The transport/mass transfer part is verified by SVE/Venting experiments. The transfer coefficient is determined with a precision better than models from the literature.

Finally a simulation at the field scale is carried out with the MPE model to simulate the remediation of polluted sites by MPE for a supposed scenario. The limitations of the method for remedying the capillary fringe are highlighted.

Keywords : Multiphase Extraction, Soil Vapor Extraction/ Venting, Modeling, Multiphase flow, pollution transport/transfer, soil remediation, VOCs, NAPL.

COMMUNICATIONS SCIENTIFIQUES

Les travaux présentés dans ce manuscrit ont donnés lieu à plusieurs publications et communications scientifique listées ci-dessous :

Publications:

Boudouch O., **Esrael D**., Kacem M., Belkacem B. « Influence of Soil Air Permeability Change on Soil Vapour extraction Systems Design. » *CLEAN - Soil, Air, Water.* 2012. Vol. 40, n°5, p. 461-471. Disponible sur : $< \frac{http://dx.doi.org/10.1002/clen.201100246}{2} >$

Boudouch O., **Esrael D**., Kacem M., Benadda B. «Estimation of Soil air Permeability Components at a Laboratory-Scale Pilot.» *Environ. Technol.* 2012. Vol. 33, n°19, p. 2223-2228. Disponible sur :< <u>http://dx.doi.org/10.1080/09593330.2012.696720</u> >

Boudouch O., **Esrael D.**, Kacem M., Benadda B., Gourdon R. « Validity of the Use of the Mass Transfer Parameters Obtained with 1D Column in 3D Systems during Soil Vapor Extraction.» *J. Environ. Eng.* Janvier 2016. p. 4016018 Disponible sur :< <u>http://dx.doi.org/10.1061/(ASCE)EE.1943-7870.0001040</u> >

Communication orale, congrès international avec actes :

Boudouch O., <u>Esrael D.</u>, Kacem M., Benadda B. « Estimation of soil air permeability components at a laboratory-scale pilot. » In : *XIII ème CONGRÈS la Société Française Génie des Procédés -Des procédés au Serv. du Prod. au cœur l'Europe*. 29 nov-1dec 2011, Lille.

Autres communications :

Esrael D., Kacem M., Benadda B. « Dépollution des sols par l'extraction multiphasique »Journées scientifique CODEGEPRA 2011, 18 octobre 2011, Chambéry : Communication orale et poster.

Esrael D., Kacem M., Benadda B. « Multiphase Extraction Simulation: Multiphase Flow » Journée scientifique d'ED chimie de Lyon 2013, 11 avril 2013, Villeurbanne ;Communication poster.

LISTE DES MATIERES

LISTE DE	S ÉCOLES DOCTORALES	
REMERC	IEMENTS	
RESUME		6
ABSTRA	СТ	7
COMMU	NICATIONS SCIENTIFIQUES	
LISTE DE	S MATIERES	
LISTE DF	S FIGURES	
I ISTE DE	'S TARI FAIIX	17
ABREVIA	TIONS, NOMENCLATURES ET INDICES	19
ABREVIAT	ONS	19
NOMENCA	TEURS	21
INDICES		
INTRODU	JCTION GENERALE	
CHAPITR	RE I. : ÉTUDE BIBLIOGRAPHIQUE	
I.1.	LA POLLUTION DES SOLS	
I.2.	LA REGLEMENTATION FRANÇAISE CONCERNANT LA GESTION DES SITES POLLUES	
I.3.	TECHNIQUES DE REMEDIATION DES SITES POLLUES	41
<i>I.3.1</i> .	EXTRACTION SOUS VIDE (SVE)	45
<i>I.3.2</i> .	POMPAGE-TRAITEMENT	46
<i>I.3.3</i> .	EXTRACTION MULTIPHASIQUE (MPE)	47
I.3.3.A.	DEFINITION	47
І.З.З.В.	LES DIFFERENTES CONFIGURATIONS DE LA MPE	49
І.З.З.В.1.	EXTRACTION DIPHASIQUE «TPE: TWO PHASE EXTRACTION »	49
І.3.3.в.2.	EXTRACTION DOUBLE PHASE «DPE: DUAL-PHASE EXTRACTION »	50
І.З.З.В.З.	BIOSLURPING	51
I.3.3.C.	APPLICATION DE LA MPE	51
I.3.3.d.	AVANTAGES ET INCONVENIENTS DE LA MPE	53
I.3.3.E.	LA CONCEPTION ET LE DIMENSIONNEMENT DU SYSTEME MPE	54
I.3.3.e.1.	INTRODUCTION	54
I.3.3.E.2.	CONCEPTION DE LA MPE AVEC RABATTEMENT DE LA NAPPE (DPE)	55
I.3.3.E.3.	CONCEPTION DE LA MPE AVEC UN RABATTEMENT LIMITE (TPE/BIOSLURPING)	60
I.4.	LE SOL ET SES CARACTERISTIQUES	61
I.4.1.	COMPOSITION DU SOL	61
I.4.1.A.	LA PHASE SOLIDE	61

І.4.1.в.	LA MATIERE ORGANIQUE	62
I.4.1.C.	LA PHASE GAZEUSE	63
I.4.1.d.	LA PHASE LIQUIDE	63
<i>I.4.2</i> .	PROPRIETES PHYSIQUES DU SOL	65
I.4.2.A.	LA GRANULOMETRIE	65
І.4.2.в.	LA POROSITE	66
I.4.2.C.	LA TENEUR EN PHASE	67
I.4.2.d.	LA TORTUOSITE	68
I.4.2.e.	LA PERMEABILITE	69
I.4.2.F.	LA CAPILLARITE	72
I.4.2.F.1.	LA RELATION PRESSION CAPILLAIRE-SATURATION (P_c -S)	74
I.4.2.F.2.	LA RELATION SATURATION- PERMEABILITE RELATIVE $(S-\kappa_R)$	76
I.4.2.F.3.	L'HYSTÉRÉSIS	77
I.5.	LES COMPOSES ORGANIQUES VOLATILS DANS LE SOUS-SOL	79
I.5.1.	INTRODUCTION	79
<i>I.5.2</i> .	LE DEVENIR DE POLLUANT ORGANIQUE PLNA DANS LE SOUS-SOL	82
I.5.3.	MECANISME DE TRANSPORT DES POLLUANTS DANS LE SOUS-SOL	84
I.5.3.A.	DIFFUSION MOLECULAIRE	85
І.5.3.в.	DISPERSION MECANIQUE (CINEMATIQUE)	85
I.5.3.C.	CONVECTION (ADVECTION)	87
I.5.3.d.	CONVECTION INDUITE PAR EFFET DE DENSITE DE LA PHASE GAZEUSE	88
<i>I.5.4</i> .	PROCESSUS DE TRANSFERT DE MASSE ENTRE PHASES	90
I.5.4.A.	TRANSFERT DE MASSE ENTRE PLNA ET PHASE GAZEUSE	90
І.5.4.в.	TRANSFERT DE MASSE ENTRE PHASE PLNA ET PHASE AQUEUSE	93
I.5.4.C.	TRANSFERT DE MASSE ENTRE PHASE AQUEUSE ET PHASE GAZEUSE (STRIPPING)	95
I.5.4.d.	L'ECHANGE AVEC LA MATRICE DE SOLIDE	96
I.5.4.d.1.	TRANSFERT DE MASSE ENTRE PHASE AQUEUSE ET PHASE SOLIDE	96
I.5.4.d.2.	TRANSFERT DE MASSE ENTRE PHASE GAZEUSE ET PHASE SOLIDE	99
I.5.4.E.	LA BIODEGRADATION DES COVS	99
I.6.	MODELE D'ECOULEMENT ET DE TRANSPORT EN MILIEUX POREUX	101
I.6.1.	INTRODUCTION	101
<i>I.6.2</i> .	MODELES D'ECOULEMENT ET DE TRANSPORT CITE DANS LA LITTERATURE	102
CHAPITR	E II. : MATERIELS ET METHODES	109
II.1.	INTRODUCTION	109
II.2.	LE COMPOSE ORGANIQUE VOLATIL UTILISE	110
II.3.	CARACTERISATION DES SABLES	111
II.3.1.	PROPRIETES PHYSIQUES	112
II.3.1.A.	L'ANALYSE GRANULOMETRIQUE DES SOLS	112
II.3.1.в.	LA MASSE VOLUMIQUE ET LA POROSITE	113
II.3.1.C.	CARACTERISTIQUES HYDRAULIQUES DES SOLS	113

II.3.1.c.1.	LA PERMEABILITE DES SOLS	113
II.3.1.c.1.	. METHODE DU PERMEAMETRE A CHARGE CONSTANTE	113
II.3.1.c.1.	2. La permeabilite a l'air	115
II.3.1.c.2.	LA COURBE DE RETENTION	117
II.3.1.c.2.	. CELLULE DE RICHARDS	118
II.3.1.c.2.	2. ENTONNOIR DE BÜCHNER (HANG WATER APPARTUS)	119
II.4.	DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX	124
II.4.1.	LA COLONNE DE DRAINAGE	124
II.4.2.	MONTAGE EXPERIMENTAL POUR L'ETUDE DU TRANSFERT DE MASSE	125
II.4.2.A.	LA COLONNE	125
П.4.2.в.	L'ANALYSE DU GAZ EXTRAIT (PID)	127
II.4.2.C.	LE CALCUL DE LA MASSE EXTRAITE DE POLLUANT	127
II.4.2.d.	L'ANALYSE DU SOL APRES LA DEPOLLUTION	128
II.4.3.	LE PILOTE MPE	128
II.4.4.	EXPERIENCE D'INFILTRATION DE POLLUANT UTILISEE PAR NEUMANN (1992)	131
II.4.4.A.	DESCRIPTIF DE L'EXPERIENCE	131
П.4.4.в.	LES EXPERIENCES REALISEES	133
II.5.	CONCLUSION	134
CHAPITI	RE III. : MODELISATION	137
III.1.	INTRODUCTION	137
III.2.	HYPOTHESES SIMPLIFICATRICES	138
III.3.	L'ECHELLE REPRESENTATIVE DU MILIEU SOUTERRAIN	139
III.4.	LA MISE EN EQUATIONS	139
III.4.1.	L'EQUATION DE LA MASSE GLOBALE (L'ECOULEMENT MULTIPHASIQUE)	140
III.4.2.	LOI DE DARCY POUR UN SYSTEME MULTIPHASIQUE	140
111 / 2		
111.4.3.	L'EQUATION DE CONSERVATION DE MASSE PAR ESPECE (EQUATION DE TRANSPORT)	140
III.4.3. III.4.4.	L'EQUATION DE CONSERVATION DE MASSE PAR ESPECE (EQUATION DE TRANSPORT)	140 141
111.4.3. 111.4.4. 111.4.5.	L'EQUATION DE CONSERVATION DE MASSE PAR ESPECE (EQUATION DE TRANSPORT) L'ETAT DE LA PHASE RELATIONS CONSTITUTIVES	140 141 141
III.4.5. III.4.4. III.4.5. III.4.5.A.	L'EQUATION DE CONSERVATION DE MASSE PAR ESPECE (EQUATION DE TRANSPORT) L'ETAT DE LA PHASE RELATIONS CONSTITUTIVES LE SYSTEME DIPHASIQUE (AQUEUSE ET GAZEUSE)	140 141 141 142
Ш.4.5. Ш.4.5. Ш.4.5.А. Ш.4.5.В.	L'EQUATION DE CONSERVATION DE MASSE PAR ESPECE (EQUATION DE TRANSPORT) L'ETAT DE LA PHASE RELATIONS CONSTITUTIVES LE SYSTEME DIPHASIQUE (AQUEUSE ET GAZEUSE) LE SYSTEME TRIPHASIQUE (PHASE AQUEUSE, PLNA ET PHASE GAZEUSE)	140 141 141 142 142
III.4.5. III.4.5. III.4.5.A. III.4.5.B. III.4.6.	L'EQUATION DE CONSERVATION DE MASSE PAR ESPECE (EQUATION DE TRANSPORT) L'ETAT DE LA PHASE RELATIONS CONSTITUTIVES LE SYSTEME DIPHASIQUE (AQUEUSE ET GAZEUSE) LE SYSTEME TRIPHASIQUE (PHASE AQUEUSE, PLNA ET PHASE GAZEUSE) LE TRANSFERT DE MASSE ENTRE PHASES	140 141 141 142 142 142
Ш.4.5. Ш.4.5. Ш.4.5.А. Ш.4.5.В. Ш.4.6. Ш.4.6.А.	L'EQUATION DE CONSERVATION DE MASSE PAR ESPECE (EQUATION DE TRANSPORT) L'ETAT DE LA PHASE RELATIONS CONSTITUTIVES LE SYSTEME DIPHASIQUE (AQUEUSE ET GAZEUSE) LE SYSTEME TRIPHASIQUE (PHASE AQUEUSE, PLNA ET PHASE GAZEUSE) LE TRANSFERT DE MASSE ENTRE PHASES TRANSFERT DE MASSE PLNA/PHASE GAZEUSE (VOLATILISATION)	140 141 141 142 142 144 145
Ш.4.5. Ш.4.5. Ш.4.5.А. Ш.4.5.В. Ш.4.6. Ш.4.6.А. Ш.4.6.В.	L'EQUATION DE CONSERVATION DE MASSE PAR ESPECE (EQUATION DE TRANSPORT) L'ETAT DE LA PHASE Relations constitutives Le systeme diphasique (aqueuse et gazeuse) Le systeme triphasique (phase aqueuse, PLNA et phase gazeuse) Le transfert de masse entre phases Transfert de masse PLNA/phase gazeuse (volatilisation) Transfert de masse PLNA/ phase aqueuse (solution)	140 141 141 142 142 144 145 145
Ш.4.5. Ш.4.5. Ш.4.5.А. Ш.4.5.В. Ш.4.6.А. Ш.4.6.А. Ш.4.6.В. Ш.4.6.С.	L'EQUATION DE CONSERVATION DE MASSE PAR ESPECE (EQUATION DE TRANSPORT) L'ETAT DE LA PHASE RELATIONS CONSTITUTIVES LE SYSTEME DIPHASIQUE (AQUEUSE ET GAZEUSE) LE SYSTEME TRIPHASIQUE (PHASE AQUEUSE, PLNA ET PHASE GAZEUSE) LE TRANSFERT DE MASSE ENTRE PHASES TRANSFERT DE MASSE PLNA/PHASE GAZEUSE (VOLATILISATION) TRANSFERT DE MASSE PLNA/ PHASE AQUEUSE (SOLUTION) TRANSFERT DE MASSE PLNA/ PHASE AQUEUSE (SOLUTION)	140 141 141 142 142 142 145 145 145
Ш.4.5. Ш.4.4. Ш.4.5.А. Ш.4.5.А. Ш.4.5.В. Ш.4.6.А. Ш.4.6.А. Ш.4.6.В. Ш.4.6.С. Ш.4.6.D.	L'EQUATION DE CONSERVATION DE MASSE PAR ESPECE (EQUATION DE TRANSPORT) L'ETAT DE LA PHASE RELATIONS CONSTITUTIVES LE SYSTEME DIPHASIQUE (AQUEUSE ET GAZEUSE) LE SYSTEME TRIPHASIQUE (PHASE AQUEUSE, PLNA ET PHASE GAZEUSE) LE TRANSFERT DE MASSE ENTRE PHASES TRANSFERT DE MASSE PLNA/PHASE GAZEUSE (VOLATILISATION) TRANSFERT DE MASSE PLNA/ PHASE AQUEUSE (SOLUTION) TRANSFERT DE MASSE PLNA/ PHASE AQUEUSE (SOLUTION) TRANSFERT DE MASSE PHASE AQUEUSE/PHASE GAZEUSE (STRIPPING) TRANSFERT DE MASSE PHASE AQUEUSE/PHASE SOLIDE (SORPTION)	140 141 141 142 142 145 145 145 145
Ш.4.5. Ш.4.4. Ш.4.5.А. Ш.4.5.А. Ш.4.5.В. Ш.4.6.А. Ш.4.6.А. Ш.4.6.В. Ш.4.6.С. Ш.4.6.D. Ш.5.	L'EQUATION DE CONSERVATION DE MASSE PAR ESPECE (EQUATION DE TRANSPORT) L'ETAT DE LA PHASE RELATIONS CONSTITUTIVES LE SYSTEME DIPHASIQUE (AQUEUSE ET GAZEUSE) LE SYSTEME TRIPHASIQUE (PHASE AQUEUSE, PLNA ET PHASE GAZEUSE) LE TRANSFERT DE MASSE ENTRE PHASES TRANSFERT DE MASSE PLNA/PHASE GAZEUSE (VOLATILISATION) TRANSFERT DE MASSE PLNA/PHASE AQUEUSE (SOLUTION) TRANSFERT DE MASSE PLNA/ PHASE AQUEUSE (SOLUTION) TRANSFERT DE MASSE PHASE AQUEUSE/PHASE GAZEUSE (STRIPPING) TRANSFERT DE MASSE PHASE AQUEUSE/PHASE SOLIDE (SORPTION) ÉVALUATION GLOBALE DU MODELE	140 141 141 142 142 145 145 145 145 145 145
III.4.5. III.4.5. III.4.5.A. III.4.5.B. III.4.6.A. III.4.6.A. III.4.6.B. III.4.6.C. III.4.6.D. III.5. III.6.	L'EQUATION DE CONSERVATION DE MASSE PAR ESPECE (EQUATION DE TRANSPORT) L'ETAT DE LA PHASE RELATIONS CONSTITUTIVES LE SYSTEME DIPHASIQUE (AQUEUSE ET GAZEUSE) LE SYSTEME TRIPHASIQUE (PHASE AQUEUSE, PLNA ET PHASE GAZEUSE) LE TRANSFERT DE MASSE ENTRE PHASES TRANSFERT DE MASSE PLNA/PHASE GAZEUSE (VOLATILISATION) TRANSFERT DE MASSE PLNA/PHASE AQUEUSE (SOLUTION) TRANSFERT DE MASSE PLNA/ PHASE AQUEUSE (SOLUTION) TRANSFERT DE MASSE PLNA/ PHASE AQUEUSE (SOLUTION) TRANSFERT DE MASSE PHASE AQUEUSE/PHASE GAZEUSE (SORPTION) ÉVALUATION GLOBALE DU MODELE OUTIL DE MODELISATION COMSOL	140 141 141 142 142 142 145 145 145 145 145 146 147

CHAPITR	E IV. : RESULTATS ET DISCUSSIONS	151
IV.1.	INTRODUCTION	151
IV.2.	MODELE D'ECOULEMENT DIPHASIQUE	152
IV.2.1.	COLONNE DU DRAINAGE	152
IV.2.2.	RESULTATS DE DRAINAGE DES TRAVAUX DE NEUMANN(1992)	155
IV.3.	MODELE DE L'ECOULEMENT MULTIPHASIQUE	160
IV.3.1.	EXPERIENCES D'INFILTRATION DE PLNAL DE NEUMANN (TEST 4)	160
IV.3.2.	RESULTATS DE L'EXPERIENCE D'INFILTRATION EFFECTUEE EN LABORATOIRE	167
IV.4.	ÉTUDE DU TRANSFERT DE MATIERE	170
IV.4.1.	INTRODUCTION	170
IV.4.2.	EXTRACTION SOUS VIDE/VENTING	170
IV.4.2.A.	COEFFICIENT DE TRANSFERT	170
IV.4.2.B.	DETERMINATION DU COEFFICIENT DE DISPERSION LONGITUDINAL A_L	177
IV.4.2.C.	RESULTATS EXPERIMENTAUX	181
IV.4.3.	MODELISATION DE SVE/VENTING	187
IV.4.3.A.	Essai 1	189
IV.4.3.B.	Essai 2	193
IV.4.3.C.	Essai 3 et 4	195
IV.4.3.d.	ÉVALUATION DE LA MASSE EXTRAITE DES PHASES	198
IV.5.	CONCLUSION	199
CHAPITR	E V. : ESSAI D'APPLICATION A L'ÉCHELLE DU TERRAIN	203
<i>V.1</i> .	INTRODUCTION	203
V.2.	RESULTATS DE SIMULATION DE LA PROPAGATION DE LA POLLUTION	206
V.3.	RESULTATS DE SIMULATION DE L'EXTRACTION MULTIPHASIQUE (MPE) DE LA POLLUTION	214
V.4.	CONCLUSION	224
CONCLU	SIONS ET PERSPECTIVES	229
REFEREN	NCES BIBLIOGRAPHIQUES	235
ANNEXES	5	251
ANNEXE A	. TAUX D'UTILISATION ET COUTS DES TECHNIQUES DE GESTION ET TRAITEMENT DES SITES POLLUI	ES EN
FRANCE EN	2010	251
ANNEXE B	MODELISATION DE L'EXPERIENCE DE LA CELLULE DE RICHARDS :	253

LISTE DES FIGURES

Figure I-1: Schéma descriptif de la technique d'extraction multiphasique (BRGM, 2010)
Figure I-2: Schéma montrant les trois configurations de l'extraction multiphasique (US. ACE, 1999)51
Figure I-3: Exemples de traitement de trois types de sol par DPE (distribution du vide et la courbe de
rabattement a) modérée; b) faible; et c) très faible perméabilité
Figure I-4: Triangle de classification textural du sol proposée par USDA (OnePlan, 2000)
Figure I-5: Schéma de la composition des composés organiques du sol (Sparks, 1995)
Figure I-6: Etat de l'eau dans le sol (Brusturean, 2004)
Figure I-7: Courbe granulométrique de deux types différents des sols
Figure I-8: Représentation schématique des phases du sol
Figure I-9: Loi de Darcy
Figure I-10: Bilan des forces pour la montée de la phase mouillante dans un tube capillaire
Figure I-11: Coupe transversale dans un pore avec différentes saturations des phases (Corey, 1977)73
Figure I-12: Courbes de pression capillaire – saturation: effet d'hystérésis (Benremita, 2002)
Figure I-13: Les principaux polluants constatés sur les sites inventoriés de France (BASOL, 2014) 79
Figure I-14: Les différentes phases d'une pollution organique dans le sous-sol contaminé (Dutheil,
2003)
Figure I-15: Coupe longitudinale d'un sol pollué par un PLNAL (USGS, 2014)
Figure I-16: Représentation des différents régimes d'un déplacement miscible d'après (Pfunnkuch,
1963)
Figure I-17: Différents mécanismes et processus de transport du polluant PLNA dans le sous-sol
(ADEME,2007)
Figure I-18: Répartition entre phases des COV dans un sol pollué
Figure II-1: Courbes granulométriques des sables utilisés
Figure II-2: Perméamètre à charge constante
Figure II-3: Colonne de mesure de la perméabilité à l'air
Figure II-4: Cellule de Richards
Figure II-5: Courbe de rétention (drainage) pour le Sable HN34 trouvé par le dispositif de la cellule
de Richards et le logiciel RETC
Figure II-6: Dispositif Entonnoir de Büchner (Hang Water Apparatus)
Figure II-7: Courbe de rétention (drainage et imbibition) pour le Sable HN34 obtenue par le dispositif
Hang Water
Figure II-8: Courbe de rétention (drainage et imbibition) pour le Sable HN0,4/0,8 obtenue par le
dispositif Hang Water
Figure II-9: Colonne de drainage
Figure II-10: Dispositifs expérimentaux pour la mesure de transfert de masse

Figure II-11: Dispositif de l'extraction multiphasique MPE
Figure II-12: Photo montrant la défaillance du dispositif MPE
Figure II-13: Dispositif expérimental de Neumann (Neumann, 1992)
Figure IV-1: Géométrie et les conditions initiales et aux limites de la colonne de drainage
Figure IV-2: Débit du drainage en fonction du temps ; expérience, modèle $L_x = 1,5$ cm et modèle P_w
=4 cmCE
Figure IV-3: Volume d'eau drainé cumulé en fonction du temps ; expérience, modèle $L_x = 1,5$ cm et
modèle $P_w = 4 \text{ cmCE}$
Figure IV-4: Pressions des tensiomètres en fonction du temps ; expériences, modèle $L_x = 1.5$ cm et
modèle $P_w = 4 \text{ cmCE}$
Figure IV-5: Géométrie, conditions initiales et conditions aux limites pour le drainage de l'eau
(Neumann 1992, test 4)
Figure IV-6: Résultats expérimentaux et du modèle de drainage (capteurs de saturation en fonction du
temps) (Neumann 1992, test 4)
Figure IV-7: Résultats expérimentaux et du modèle de drainage (Tensiomètres) (Neumann 1992) 159
Figure IV-8: Conditions finales à t= 140 min, modèle et expérience (saturation et pression)
Figure IV-9: Géométrie, conditions initiales et conditions aux limites pour l'infiltration du Soltrol
(Neumann 1992, test 4)
Figure IV-10: Pression de Soltrol en fonction du temps (expériences et modèle) pour les tensiomètres
(P1, P4, P5 et P7)
Figures IV-11(A-L) : Évolution de la propagation en Soltrol ; comparaison entre résultats du modèle
avec celles de l'expérience
Figure IV-12: Saturation en eau en fonction du temps (expérience et modèle) pour les sondes de
conductivité (R12, R13 et R14)
Figure IV-13: Saturation en eau en fonction du temps (expériences et modèle) pour les sondes de
conductivité (R2, R5, R7, R8 et R9)
Figure IV-14: Volume d'eau drainée et Soltrol infiltré en fonction du temps (expériences et modèle)
(dispositif MPF)
(aisposit) MLE)
$\frac{1}{1} = \frac{1}{1} = \frac{1}$
Figure W-17: Comparaison entre les modèles d'estimation de coefficient clobal de transfort BLNA
rigare 1v-17. Comparaison entre les modeles à estimation de coefficient global de transfert PLIVA/
Figure IV-18: Comparaison relative (à modèle de Wilkins) entre les modèles d'actimation de
Figure $1v-10$. Comparation relative (a modele de witkins) entre les modeles d'estimation de
coefficient globat de transfert r LivA/ gazeuse

Figure IV-19: Allure de l'évolution de la concentration en polluant du gaz extrait en fonction du temps
(Anderson, 1994)
Figure IV-20: Géométries, conditions initiales et conditions aux limites pour modèle hydrodynamique
Figure IV-21: Évolution de la concentration du traceur à l'entrée et à la sortie de la colonne de sol
pour un signal « échelon » et « purge échelon »
Figure IV-22: champ de vitesse de Darcy en cm.min ⁻¹ dans les graviers et le sable pour le modèle
2Daxy
Figure IV-23: Concentration en gaz à la sortie de colonne pour les quatre essais
Figure IV-24 : Masse extrait cumulée avec le temps pour les quatre essais
Figure IV-25: Efficacité du système d'extraction SVE/Venting pour les quatre essais
Figure IV-26: Géométries, conditions initiales et conditions aux limites pour modèle SVE/Venting. 189
Figure IV-27: Résultats expérimentaux et de plusieurs modélisations de l'essail/Venting
Figure IV-28: Résultats expérimentaux et de modélisations à l'échelle semi logarithmique de l'essai
1/Venting
Figure IV-29: Coefficient de transfert du masse des plusieurs modélisations de l'essai 1/Venting 192
Figure IV-30: Résultats expérimentaux et de modélisations à l'échelle semi logarithmique de l'essai
2/Venting
Figure IV-31: Coefficient de transfert de masse de plusieurs modélisations de l'essai 2/Venting 194
Figure IV-32: Résultats expérimentaux et de modélisations à l'échelle semi logarithmique de l'essai
3/SVE
Figure IV-33: Coefficient de transfert de masse des plusieurs modélisations de l'essai 3/SVE 196
Figure IV-34: Résultats expérimentaux et de modélisations à l'échelle semi logarithmique de l'essai
4/SVE
Figure IV-35: Coefficient de transfert de masse de plusieurs modélisations de l'essai 4/SVE 197
Figure IV-36: Évolution de la masse de polluant en phase aqueuse et solide pour les essais 2 et 4 199
Figure IV-37: Évolution des coefficients de transfert de masse entre phases pour les essais 2 et 4 du
modèle proposé
Figure V-1: Géométries, conditions initiales et conditions aux limites pour le scénario MPE 206
Figures V-2 (A-F) : Évolution de la saturation de PLNA avec le temps (étape de propagation) 207
Figure V-3: Saturation résiduelle en PLNA à 2 mois de propagation (étape de propagation) 208
Figure V-4: Volume de PLNA total, résiduelle et mobile (étape de propagation)
Figures V-5 (A-F) : Concentration relative de polluant en phase gazeuse $(\frac{C_{g,\beta}}{C_{g,\beta}^{sat}})$ (étape de
propagation)

Figures V-6 (A-F) : Concentration relative du polluant en phase aqueuse $(\frac{C_{w,\beta}}{S_{w,\beta}^{eff}})$ (étape de
propagation)
Figures V-7 (A-F) : Concentration du polluant en phase solide $(C_{s,\beta}\left[\frac{mg_{polluant}}{Kg_{sol}}\right])$ (étape de
propagation)
Figure V-8: Volume de PLNA transféré vers les phases (solide, aqueuse, gazeuse, vers l'atmosphère)
(étape de propagation)
Figure V-9: Lignes de courant et champ de vitesse en cm.s ⁻¹ de la phase gazeuse (étape MPE) 214
Figure V-10: Lignes de courant et champ de vitesse en cm.s ⁻¹ de la phase aqueuse (étape MPE) 215
Figure V-11: Saturation, lignes de courant et champ de vitesse en cm.s ⁻¹ de la phase PLNA à 2 jours
d'extraction (étape MPE)
Figure V-12: Débit volumique d'extraction de phase aqueuse et phase gazeuse (étape MPE)
Figures V-13 (A-H) : Évolution de la saturation de la PLNA avec le temps (étape MPE) 217
Figures V-14(A-D) : Concentration relative du polluant en phase gazeuse $\left(\frac{C_{g,\beta}}{C_{g,\beta}}\right)$ (étape MPE) 218
Figure V-15: Coefficient de transfert PLNA/gaz $\lambda_{o-g,\beta}$ en h ⁻¹ à 1 journée d'extraction (étape MPE) 218
Figures V-16(A-F) : Concentration relative du polluant en phase aqueuse $\left(\frac{C_{w,\beta}}{S_{w,\beta}^{eff}}\right)$ (étape MPE) 219
Figure V-17: Coefficient de transfert phase aqueuse/phase gazeuse $\lambda_{w-g,\beta}$ en $[h^{-1}]$ (étape MPE) 220
FigureV-18: Coefficient de transfert PLNA/phase aqueuse $\lambda_{o-w,\beta}$ en [h ⁻¹] à 1 journée (étape MPE) 220
Figures V-19 (A-F): Concentration du polluant en phase solide $(C_{s,\beta}\left[\frac{mg_{polluant}}{Kg_{sol}}\right])$ (étape MPE) 221
Figure V-20: Estimation des coefficients de transfert moyens pour les différentes phases en [h ⁻¹]
(étape MPE)
Figure V-21: Flux du polluant en phase gazeuse, aqueuse et PLNA et volume d'extraction en fonction
de temps (étape MPE)
Figure V-22: Concentration relative en phase aqueuse et phase gazeuse (étape MPE) 224

LISTE DES TABLEAUX

Tableau I-1 : Liste récapitulative des circulaires relatives à la gestion des sites pollués
Tableau I-2: Valeurs guides en matière de pollution des sols utilisée en France (Brusturean, 2004). 39
Tableau I-3: Accidents mettant en jeu des hydrocarbures ces dernières années en France
(ADEME, 2014)
Tableau I-4: Principales techniques de remédiation des sites polluées (BRGM, 2010)
Tableau I-5: Matrice de possibilités de dépollution pour les polluants organiques (BRGM, 2010) 45
Tableau I-6: Paramètres de l'applicabilité de l'extraction multiphasique (US.EPA, 1999) 53
Tableau I-7: Les avantages et les inconvénients de la MPE
Tableau I-8: Classification des sols Selon la norme NF EN ISO 14688-1 (AFNOR, 2003)
Tableau I-9: Différents modèles empiriques de la tortuosité en milieux poreux non saturé (Dridi,2006)
Tableau I-10: Modèles empiriques pour déduire la perméabilité de l'analyse granulométrique
(Odong,2013)
Tableau I-11: Expressions des modèles de corrélation (P_c -S)75
Tableau I-12: Expressions des modèles de corrélation S-k _r 76
Tableau I-13: Modèles d'hystérésis 78
Tableau I-14: Critères d'appréciation du comportement des produits organiques (Lemière et al.,
2001)
Tableau I-15: Modèles empiriques de transfert PLNA/phase aqueuse (Miller et al., 1998)
Tableau I-16: Différents modèles de transfert phase aqueuse /phase solide (sorption)
Tableau I-17: Synthèse des modèles d'écoulement et transport dans le milieu poreux 104
Tableau I-18: Logiciels de modélisation d'écoulement multiphasique et du transport de polluants dans
le sous-sol
Tableau II-1: Paramètres physico-chimiques du toluène (INERIS, 2005) 111
Tableau II-2: Composition chimique des sables (données fournisseur) 112
Tableau II-3: Essais de la perméabilité à l'air pour le sable HN34
Tableau II-4: Essais de la perméabilité à l'air pour le sable HN0,4/0,8
Tableau II-5: Comparaison entre les différentes méthodes de mesure de la perméabilité intrinsèque 116
Tableau II-6: Caractéristiques principales des sols utilisés 123
Tableau II-7: Caractéristiques du PID utilisé
Tableau II-8: Caractéristique du sable 30/50 132
Tableau II-9: Propriétés physico-chimiques du Soltrol 130 133
Tableau IV-1: Évaluation de l'erreur pour les différentes simulations (débit de drainage) 153
Tableau IV-2: Conditions opératoires de Wilkins (1995)

Tableau IV-3: Évaluation d'erreur pour les différentes simulations (modèle hydrodynamique)	179
Tableau IV-4: Conditions opératoires des essais de transfert de masse	183
Tableau IV-5: Temps optimal d'arrêt pour les quatre essais	186
Tableau IV-6: Différentes modélisations de l'essai 1 avec l'évaluation des erreurs	190
Tableau IV-7: Différentes modélisations de l'essai 2 avec l'évaluation des erreurs	194
Tableau IV-8: Différentes modélisations de l'essai 3 avec l'évaluation des erreurs	196
Tableau IV-9: Différentes modélisations de l'essai 4 avec l'évaluation des erreurs	198
Tableau V-1: Paramètres d'entré pour le modèle	204
Tableau V-2: Coefficients de transfert entre les phases (étape de propagation)	209

ABREVIATIONS, NOMENCLATURES ET INDICES

Abréviations

ADEME	Agence De l'Environnement et de la Maitrise de L'Energie
BASIAS	Base de données d'Anciens Sites Industriels et Activités de Service
BASOL	Base de données sur les sites et sols pollués ou potentiellement pollués
BRGM	Bureau de Recherches Géologiques et Minières
BTEX	Benzène, Toluène, Ethylebenzène, Xylène
CNTP	Conditions Normales de Température et de Pression
COHV	Composés Organiques Halogénées Volatils
COV	Composés Organiques Volatils
DPE	Dual Phase Extraction
EDPs	Équations aux Dérivées Partielles
EDR	Évaluation Détaillée des Risques
ESR	Évaluation Simplifiée de Risques
GMS	Groundwater Modelling System
HAP	Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques
HN0,4/0,8	Sable naturel de quartz ,Sable Huston Gros
HN34	Sable naturel de quartz, Sable Huston Fin
HS	Technique de traitement Hors Site
ICPE	Installations Classées pour la Protection de l'Environnement
IEM	l'Interprétation de l'Etat des Milieux
INERIS	Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques
INS	Technique de traitement In-situ
ISDD	Installation de Stockage des Déchets Dangereux
ISDI	Installation de Stockage des Déchets Inertes
ISDND	Installation de Stockage des Déchets Non Dangereux
LEA	Local Equilibrium Assumption
	Modélisation, Atténuation et Caractérisation dans les Aquifères des Organo-
МАСАОН	Halogénés
MEDDE	Ministère de l'Écologie, du Développement durable et de l'Énergie.
MPE	Multiphasique Extraction
nM/M	Phase Non Mouillante/phase Mouillante
NRSME	Normalized Root Mean Square Error
NSSRD	Normalized Sum of the Squared Relative Deviations
РСВ	Polychlorobiphényle
PID	Photo-Ionized Detector
PLNA	Phase Liquide Non Aqueuse
PLNAD	Phase Liquide Non Aqueuse Danse
PLNAL	Phase Liquide Non Aqueuse Léger
PVER	Pore Volume Exchange Rate (Taux d'échange de volume poreux)
RMSE	Root Mean Square Error
SS	Technique de traitement Sur Site
SVE	Soil Vapor Extraction
	Son vapor Extraction

TCE	TetraChloroEthlyène
TPE	Two Phase Extraction
TPH	Total Petroleum Hydrocarbon
UPDS	Union des Professionnels de la Dépollution des Sites
USACE	U.S. Army Corps of Engineers
USBR	United States Bureau of Reclamation
USDA	United States Department of Agriculture
USEPA	United States Environnemental Protection Agence
VCI	Valeurs Constat d'Impact
VDSS	Valeurs de Définition de Source-Sol
VER	Volume Élémentaire Représentatif
ZNS	Zone Non Saturée
ZOI	Zone Of Influence
ZS	Zone Saturée

Nomencalteurs

Lettres latines

A	Section droite perpendiculaire à l'écoulement	$[L^2]$
A, B, A', B'	Constantes empiriques	[-]
b	Épaisseur de la zone non saturé	[L]
b_k	Paramètre empirique du modèle Klinkenberg	$[M.L^{-1}.T^{-2}]$
C_c	Coefficient de courbure	[-]
$C_{g,\beta}^{Sat}$	Concentration à l'équilibre du composé β pur dans la phase gazeuse	$[M.L^{-3}]$
$C^i_{g,eta}$	Concentration du composé β dans la phase gazeuse à l'instant t_i	$[M.L^{-3}]$
$C_{g,\beta}^{init}$	Concentration initiale du contaminant en gaz extrait	$[M.L^{-3}]$
C_{g-exp}^{ι} , C_{g-mod}^{i}	Valeur expérimental et du modèle de concentration en phase gazeuse.	$[mg.L^{-1}]$
$C_{s,\beta}$	Concentration du composé β fixé sur la phase solide	$[M.M^{-1}]$
$C_{s,\beta}^{max}$	Capacité maximale de la sorption du sol pour le composé β	$[M.L^{-1}]$
C_{μ}	Coefficient d'uniformité	[-]
$C_{\alpha,\beta}$	Concentration du composé β dans la phase α	$[M.L^{-3}]$
$C_{\alpha,\beta}^{init}$	Concentration initiale du composé β en phase α	$[M.L^{-3}]$
C_{φ}	Coefficient de classement de la porosité	[-]
$D^{d}_{\alpha,\beta}$	Coefficient de dispersion cinématique de composé β dans la phase α	$[L^2.T^{-1}]$
$D^{o}_{\alpha,\beta}$	Coefficient de diffusion moléculaire du composé β dans la phase α	$[L^2.T^{-1}]$
$\overline{\overline{D}}_{\alpha,\beta}$	Coefficient de dispersion hydrodynamique du composé β dans la phase α	$[L^2 T^{-1}]$
$\overline{D}^{o}_{lpha,eta}$	Coefficient effective de diffusion moléculaire du composé β dans phase α	$[L^2.T^{-1}]$
d_{10}	Diamètre efficace des grains du sol	[L]
d_{50}	Diamètre moyen des grains du sol	[L]
d_m	Diamètre de grain d'un sable moyen $d_m = 0.5mm$	[L]
d_o	Diamètre de grain normalisé $d_o = \frac{d_{50}}{d_m}$	[-]
d_p	Diamètre de pore ou diamètre de tube capillaire	[L]
d_x	Diamètre des grains du sol correspondant à x% en masse cumulée	[L]
Ē	Efficacité du système de décontamination	[%];
$E_{\alpha 1-a 2,\beta}$	Transfert de masse entre phase α_1 /phase α_2 pour le composé β	$[M.L^{-3}.T^{-1}]$
f_{oc}	Teneur massique du sol en carbone organique	[-]
$f(\varphi)$	Fonction empirique de la porosité	[-]
$F_{\alpha,\beta}^T$	Flux total du composé β dans la phase α	$[M.L^{-2}.T^{-1}]$
$F^{c}_{\alpha,\beta}$	Flux du composé β transportés par la convection dans la phase α	$[M.L^{-2}.T^{-1}]$
$F^d_{lpha,eta}$	Flux du composé β transportés par la dispersion mécanique dans la phase α	$[M.L^{-2}.T^{-1}]$
$F^{o}_{\alpha,\beta}$	Flux du composé β transportés par la diffusion moléculaire dans la phase α	$[M.L^{-2}.T^{-1}]$
Δh_{lpha}	Perte de charge aux extrémités de la colonne pour la phase α	[L]
h_c	Monté capillaire de la phase mouillante (système diphasique)	[L]
$h_{c\alpha 1,\alpha 2}$	Monté capillaire entre phase α_1 et phase $\alpha_2 h_{c\alpha_1\alpha_2} = \frac{P_{c\alpha_1\alpha_2}}{\rho_w^* g}$	[L]

h_{max}	Épaisseur maximale de la lentille PLNAL	[L]
h_r	Paramètres du modèle de Fredlund (succion correspondant à la teneur résiduelle)	[L]
h_s	Paramètre de modèle de Brooks (succion d'entrée d'air)	[L]
H_{β}	Constante de Henry adimensionnelle du composé β	[-]
$K_{H_{\beta}}$	Constante de Henry du composé β	[M.L.T ⁻² .mol ⁻¹]
$\overline{\overline{K}}^{p}$	Perméabilité intrinsèque	$[L^2]$
$K_{d,\beta}$	Coefficient de sorption du sol pour le composé β	$[L^3.M^{-1}]$
$K_{d\beta}^{\mu,\rho}$	Coefficient de partage phase gazeuse /phase solide du composé β	$[L^3.M^{-1}]$
K _{oc,β}	Coefficient de partage carbone organique/phase aqueuse du composé β	$[L^3.M^{-1}]$
$K_{o-g,\beta}$	Coefficient d'équilibre du composé β entre PLNA/phase gazeuse	[-]
$K_{ow,\beta}$	Coefficient de partage octanol/eau du composé ß	$[L^{3} L^{-3}]$
$\overline{\overline{K}}_{\infty}$	Perméabilité intrinsèque à une grande pression de la phase gazeuse	$[L^2]$
$k_{r\alpha}$	Perméabilité relative de la phase α	[-]
k_w	Conductivité hydraulique du milieu poreux	$[L.T^{-1}]$
k_w	Perméabilité à l'eau (conductivité hydraulique)	$[L.T^{-1}]$
k_x	Paramètre d'ajustement du drainage	[-]
k_{α}	Permeabilite a la phase α . (permeabilite de Dracy)	
L	Longueur de la ligne droite d'un tube tortueux	
L _a	Hauteur du sable entre la sortie et la reference	
L _c	Longuour du chomin quivi	
L_e	Paramètre équivalant de la résistance à l'écoulement en longueur de	[L]
L_x	sable	[L]
l_k , m_k	Paramètres du modèle de Kaluarachchi	[-]
l_m	Paramètre de modèle de Mualem	[-]
\dot{m}_g^i	Débit massique du composé β en phase gazeuse à l'instante t_i	$[M.T^{-1}]$
Μ _{α,β}	Masse cumulée du composé β extrait par le flux gazeux	[M]
M _{air}	Masse molaire de l'air	$[M.mol^{-1}]$
M _{extrait}	Masse du polluant extraite par SVE/Venting	[M]
$M_{g,\beta}$	Masse molaire d'un mélange binaire gazeux (air+composé β)	$[M.mol^{-1}]$
M_g	Masse de la phase gazeuse dans l'échantillon	[M]
M _{init}	Masse initiale du polluant introduit dans l'essai	[M]
M_l	Masse de la phase liquide (polluant/eau) dans l'échantillon	[M]
M_l	Masse de la phase liquide dans l'échantillon	[M]
M_{perdu}	Masse de polluant perdu en préparation	[M]
M_s	Masse de la phase solide dans l'échantillon	[M]
M _{séchage}	Masse de polluant résiduelle restante après l'extraction	[M]
M_s^i	Masse du sable mouillé mesurée à l'instant t_i	[M]
M_{lpha}	Masse de la phase α dans l'échantillon	[M]
M_{eta}	Masse molaire du composé β	$[M.mol^{-1}]$
Ν	Nombre de points comparés	[-]
n	Nombre de mesures sur la durée du traitement	[-]
n_b	Paramètre du modèle de Brutsaert.	[-]
n_{bb}	Parametre du modele Brutsaert-Burdine.	[-]
n_f , m_f	Parametres du modele de Fredlund	[-]

n_g	Paramètre du modèle de Gardner	[-]
n_{vg} , m_{vg}	Paramètres du modèle de van Genuchten	[-]
P_{puits}	Vide d'extraction appliqué dans le puits	$[M.L^{-2}.T^{-2}]$
P_{α}	Pression de la phase α	$[M.L^{-1}.T^{-2}]$
Q_{q}	Débit volumique du gaz extrait	$[L^3.T^{-1}]$
Q _w	Débit volumique de la phase aqueuse extraite	$[L^{3}T^{-1}]$
$Q_w^{\check{C}\check{N}TP}$	Débit volumique du gaz extrait aux CNTP	$[L^3.T^{-1}]$
Q_{lpha}	Débit volumique de la phase α	$[L^{3}T^{-1}]$
Q^s_{α}	Terme puits/ source de la phase α	$[M.L^{-3}.T^{-1}]$
\vec{q}_a	Vitesse d'écoulement ou vitesse de darcy	$[L.T^{-1}]$
$q_{g,\beta}^{max}$	Vitesse de convection verticale maximale du composé β sous l'effet de sa densité	$[L.T^{-1}]$
r_{1}, r_{1}, r_{2}	Distance radiale	[L]
r, z	Coordonnées axisymétrique	[L]
r_{inf}	Rayon d'influence du puits (ZOI)	[L]
De	Nombre de Reynolds pour la phase $\alpha_{B_{\alpha}} = U_{\alpha} \rho_{\alpha} d_{50}$	r 1
Re _α	$\kappa e_{\alpha} = \frac{\mu_{\alpha}}{\mu_{\alpha}}$	[-]
R_{gp}	Constante du gaz parfait	$[M.L^2.T^{-2}.mol^{-1}.K^{-1}]$
$R_{\alpha,\beta}$	Terme de réaction géochimique du composé β dans la phase α	$[M.L^{-3}.T^{-1}]$
$Sh^m_{\alpha 1-\alpha 2,\beta}$	Nombre de Sherwood (modifié) du composé $\beta_{Sh_{\alpha_1-\alpha_2,\beta}^m} = \frac{\lambda_{\alpha_1-\alpha_2,\beta} d_{\alpha_2}^2}{D_{\alpha\beta}^2}$	[-]
Sam	Saturation résiduelle (irréductible) en phase α	[-]
$Sc_{\alpha,\beta}$	Nombre de Schmidt du composé β dans la phase $\alpha_{Sc_{\alpha\beta}} = \frac{\mu_{\alpha}}{\rho_{\alpha\beta}}$	[-]
Sinit	Saturation initiale en phase PLNA	[-]
S ₀	Solubilité du composé β pur dans la phase aqueuse	$[M.L^{-3}]$
\mathbf{s}^{eff}	Solubilité effective du composé 6 dans la phase aqueuse	$[M L^{-3}]$
$S_{w,\beta}$	Solubilité effective du compose p dans la phase aqueuse	
S_y	Rendement specifique de la zone saturee	[-]
S_{α} $\bar{c}max$	Saturation en phase α	[-] []
	Saturation réciduelle effective en phase PLNA	[-] []
S _{or} c ^{ref}	Saturation de référence en DI NA	[-]
S_0 $\bar{c}max$	Saturation réciduelle effective maximale en PLNA	[-] []
S _{or}	Saturation effective en phase PLNA piégé dans la phase aqueuse	[-] [_]
S _{ot} S	Saturation effective en phase α	[-]
S_{α}	Temps correspondents respectivement à concentration relative de	L J
$t_{0,84}, t_{0,5}, t_{0,16}$	84%, 50% et 16 % du traceur à la sortie de la colonne	[T]
$t_{1/2,\beta}$	Temps de demi-vie du composé β (biodégradation)	[T]
t_e	Temps parcouru depuis le démarrage de l'extraction	[T]
t_p	Temps de pompage	[T]
t	Temps	[T]
Т	Température du sol	[K]
$t_{x,c}$	Temps requis pour l'échange d'un volume poreux (t_{xc} =1/PVER)	[T]
$T_{e,\beta}$	Température d'ébullition du composé β	[K]
T_s	Transmissivité de la zone saturée $(T_s = k_w b)$	$[L^2.T^{-1}]$
U_{ai} , U_{aj}	Vitesse de pore pour la phase α dans la direction <i>i et j</i>	$[L.T^{-1}]$
\vec{U}_{lpha}	Vitesse interstitielle ou vitesse des pores de la phase α	$[L.T^{-1}]$

V_{g}	Volume de la phase gazeuse dans l'échantillon	$[L^3]$
V_l	Volume de la phase liquide dans l'échantillon	$[L^3]$
V_p	Volume des pores dans l'échantillon	$[L^3]$
V_s	Volume de la phase solide dans l'échantillon	$[L^3]$
V_t	Volume total d'échantillon	$[L^3]$
V_{lpha}	Volume de la phase en phase α dans l'échantillon	$[L^3]$
x_I	Paramètre de Modèle Imhoff (distance de l'entrée de la colonne)	[L]
x, y, z	Coordonnées cartésiennes	[L]
y_{i-exp}	Valeur expérimentale	[-]
$\overline{\mathcal{Y}}_{i-exp}$	Valeur expérimentale moyenne	[-]
y_{i-mod}	Valeur obtenue par l'application du modèle	[-]
$max(y_{i-exp})$ $min(y_{i-exp})$	Valeurs expérimentales maximale et minimale	[-]
Z_w	Hauteur du niveau de la nappe après le rabattement	[L]
Z_w^{init}	Hauteur initiale du niveau de la nappe à distance r	[L]
$Z_w^{init} - Z_w^{init}$	Rabattement de la nappe à distance radiale	[L]
$\sum_{\alpha} E_{\alpha,\beta}$	Terme de somme des transferts du composé β vers les phases	[M.L ⁻³ .T ⁻¹]
$\sum_{\beta} E_{\alpha,\beta}$	Terme de somme des transferts vers la phase α pour tous les composés	[M.L ⁻³ .T ⁻¹]
$\sum_{\beta} R_{\alpha,\beta}$	Terme de somme des réactions géochimiques dans la phase α pour tous les composés	[M.L ⁻³ .T ⁻¹]

Lettres grecques

$lpha_L$	Dispersivité longitudinale	[L]
α_T	Dispersivité transversale	[L]
α_b	Paramètre du modèle de Brutsaert.	[L]
α_f	Paramètres du modèle de Fredlund.	[-]
$lpha_g$	Paramètre du modèle de Gardner	$[L^{-1}]$
$lpha_{gm}$	Paramètre du modèle Garden-Mualem	[-]
α_{vg}	Paramètre de l'équation de van Gnuchten	$[L^{-1}]$
eta_{go},eta_{ow}	Coefficients de mise à l'échelle d'un système diphasique à un système triphasique (modèle Parker)	[-]
β_y	Constante empirique du modèle Yoon (2002)	[-]
δ_{ij}	Symbole de Kroncker (1 si i=j, 0 sinon)	[-]
ε_p	Paramètre empirique du modèle Powers (1994)	[-]
θ_{nwt}	Teneur volumique piégé en phase non mouillant	$[L^3.L^{-3}]$
$ heta_{wr}$	Teneur volumique résiduelle (irréductible) en phase mouillant/aqueuse	$[L^3.L^{-3}]$
$ heta_{ws}$	Teneur volumique maximale (à saturation) en phase mouillant/aqueuse	$[L^3.L^{-3}]$
$ heta_{lpha}$	Teneur volumique en phase α	$[L^3.L^{-3}]$
$\theta_{\alpha r}$	Teneur volumique résiduelle (irréductible) en phase α	$[L^3.L^{-3}]$
$\theta_{\alpha s}$	Teneur volumique maximale (à saturation) en phase α	$[L^3.L^{-3}]$

$\lambda_{g-w,eta}$	Coefficient cinétique global de transfert phase aqueuse/phase gazeuse du composé β	$[T^{-1}]$
$\lambda_{o-g,eta}$	Coefficient cinétique global de transfert PLNA/ phase gazeuse du composé β [T ⁻¹]	[T ⁻¹]
$\lambda_{o-g,\beta}^{init-moy}$	Moyenne du coefficient cinétique initial de transfert PLNA/phase gazeuse sur la colonne 1D	
$\lambda_{o-w,\beta}$	Coefficient cinétique global de transfert PLNA/phase aqueuse du composé β	[T ⁻¹]
1	Coefficient cinétique global de transfert de masse entre phase α_1	rm-11
$\lambda_{\alpha 1-\alpha 2,\beta}$	/phase α_2 pour le composé β	[1]
ainit	Coefficient cinétique initial de transfert de masse entre phase α_1	ren-1a
$\lambda_{\alpha 1-\alpha 2,\beta}^{init}$	/phase α_2 pour le composé β	[1]]
λ_{eta}	Constante de désintégration du composé β (biodégradation)	$[T^{-1}]$
μ_a	Viscosité dynamique de la phase gazeuse	$[M.L^{-1}.T^{-1}]$
μ_{α}	Viscosité dynamique de la phase α	$[M.L^{-1}.T^{-1}]$
ρ_{air}	Masse volumique de l'air	$[M.L^{-3}]$
ρ_h	Masse volumique sèche apparente du sol	[M L ⁻³]
$\rho_{a\beta}$	Masse volumique du mélange saturé (air+composé β)	$[M.L^{-3}]$
ρ_{nw}	Masse volumique de la phase non mouillante	$[M.L^{-3}]$
ρ_0	Masse volumique de la phase PLNA	[M L ⁻³]
ρ_s	Masse volumique des particules du sol	$[M.L^{-3}]$
ρ_w	Masse volumique de la phase mouillante/ phase aqueuse	$[M.L^{-3}]$
$ ho_w^*$	Masse volumique de l'eau pure (référentielle)	$[M.L^{-3}]$
$ ho_lpha$	Masse volumique de la phase α	$[M.L^{-3}]$
σ_{go}	Tension interfaciale phase gazeuse/PLNA	$[M.T^{-2}]$
σ_{gw}	Tension interfaciale phase gazeuse/phase aqueuse	$[M.T^{-2}]$
σ_{nw-w}	Tension interfaciale phase non mouillante/phase mouillante	$[M.T^{-2}]$
σ_{ow}	Tension interfaciale PLNA/ phase aqueuse	$[M.T^{-2}]$
$ au_lpha$	Tortuosité du milieu poreux pour la phase α	[-]
$\omega_{g,eta}$	Fraction molaire du composé β dans la phase gazeuse	[-]
$\omega_{w,\beta}$	Fraction molaire du composé β dans la phase aqueuse	[-]
$\omega_{lpha,eta}$	Fraction molaire du composé β dans la phase α	[-]
$\overline{\omega}_{\alpha}$	Teneur massique en phase α	[M.M ⁻³]
Ø	Angle de contact	[rad]
∇	Fonction de gradient	$[L^{-1}]$
ζ	Constante empirique du modèle Gidda (2003)	[-]
η	Rendement d'extraction	[-]
λ	Paramètre du modèle de Brooks (indice de distribution de la taille des pores)	[-]
arphi	Porosité du milieu poreux	$[L^3.L^{-3}]$
∇P_{α}	Gradient de la pression de la phase α	$[M.L^{-2}.T^{-2}]$

Indices

β	Composant
dr	Drainage
im	Imbibition
α	Phase
8	Phase gazeuse
0	Phase liquide non aqueuse
W	Phase mouillante/ phase aqueuse
nw	Phase non mouillante
S	Phase solide/ sol
r	Résiduel/ relative
dim	Séquence drainage-imbibition
imd	Séquence imbibition-drainage
0 (exposant)	Diffusion moléculaire
C (exposant)	Convection (advection)
d (exposant)	Dispersion cinématique
i (exposant)	À l'instante <i>i</i>
i et j	Direction
init	Initiale
l	Phase liquide totale
t	Totale

INTRODUCTION GÉNÉRALE

INTRODUCTION GENERALE

Au fil des années, plusieurs industries ont engendré des quantités considérables de polluants qui ont contaminé le sous-sol. La contamination peut être causée par des déversements accidentels, des rejets liés à l'exploitation de l'industrie ou tout simplement par enfouissement sur les terrains des usines. Ces substances dangereuses pour la santé humaine et l'environnement se retrouvent dans le sol et dans plusieurs cas, l'eau souterraine est également contaminée.

Plusieurs secteurs d'activités génèrent des déchets potentiellement dangereux. Par exemple les activités agricoles avec l'épandage massif d'engrais, d'insecticides et d'herbicides, l'enfouissement dans les dépotoirs des déchets municipaux et l'industrie pétrolière avec sa multitude de réservoirs souterrains contenant des hydrocarbures qui sont une menace constante et bien réelle de contamination des sols et de l'eau souterraine.

En France, 300 à 400 milles sites industriels sont répertoriés comme potentiellement pollués, soit approximativement 100 mille hectares de terre contaminée selon la base des données BASIAS (BASIAS, 2014). La quantité de terres polluées traitées en 2010 est estimée à 3,7 millions de tonnes (16% en plus que 2008), et les eaux souterraines traitées d'environ 7 millions m³ avec un coût de traitement estimé à plus de 560 M€ en 2012 (ADEME, 2012).

Pour chaque cas spécifique de contamination de sous-sol, il est essentiel de choisir la technique de remédiation la plus appropriée. Ceci dépend de plusieurs paramètres : la nature des polluants, la caractérisation du site pollué, le temps de traitement, l'efficacité de la technique et surtout le coût de traitement qui est le facteur clé. Du point de vue économique, les technologies de réhabilitation in-situ permettent d'offrir des coûts de traitement beaucoup plus raisonnables que les technologies de réhabilitation ex-situ (10-30 \in HT par tonne des sols traités in-situ contre 10-315 \in HT par tonne des sols traités ex-situ hors coût d'excavation et de transport hors site selon la technique de traitement) (ADEME, 2012).,

Bien qu'il existe un grand nombre de techniques in-situ de traitement, peu sont efficaces pour la restauration des sites contaminés par des Composés Organiques Volatiles (COVs) quand la contamination atteint les deux compartiments du sous-sol (la zone non saturée ZNS et la zone saturée ZS). Des techniques de restauration traditionnelles basées sur la dissolution et la récupération du contaminant organique en phase libre, comme le pompage-traitement ou

pompage-écrémage ne permettent pas d'éliminer les contaminants emprisonnés dans le milieu poreux à saturation résiduelle contrôlée par les forces capillaires. Par contre les méthodes de restauration par ventilation forcée comme l'extraction sous vide « Soil Vapor Extraction » (SVE) ou le Venting, sont surtout efficaces pour restaurer la partie non saturée du sol. Afin de combiner les avantages des deux technologies, la technique d'extraction multiphasique est proposée.

L'extraction multiphasique ou « Multiphase Extraction » (MPE), est également connue dans la littérature sous différents noms : Extraction DiPhasique (tow-phase extraction (TPE)), Extraction double phase (dual-phase extraction (DPE)) et aussi BioSlurping. Elle est définie comme une technique in-situ établie pour l'extraction simultanée des polluants volatiles non miscibles qui occupent les deux zones ZNS et ZS du sol-sous forme de différentes phases : Phase Liquide Non Aqueuse (PLNA), phase aqueuse dissoute, phase gazeuse évaporée et phase solide adsorbée.

L'application d'un traitement par l'extraction multiphasique peut durer plusieurs jours, plusieurs mois, voire des années (normalement de 6 à 18 mois). Cela affecte beaucoup le coût de traitement et rend la technique non attractive. Il est donc utile de pouvoir identifier les paramètres importants qui permettent de réduire ce temps de traitement sans affecter son efficacité. Ceci passe par la recherche en laboratoire et notamment des expériences à l'échelle de pilote ou sur le terrain. Par la suite il faut extrapoler à l'échelle du terrain les résultats obtenus au laboratoire pour la meilleure conception de l'opération et la mise en œuvre de la technique. Cette extrapolation passe par la modélisation numérique de la MPE par un modèle global prédictif. Ce service doit prendre en compte les complexités des relations d'interaction entre le sol et les contaminants ainsi que les complexités des phénomènes d'écoulement multiphasique, de transport et de transfert de masse entre les différentes phases. Il permet ainsi l'évaluation de la durée du traitement, de ses performances, du rayon d'influence de chaque puits ainsi que de la conception de la mise en œuvre pour atteindre les objectifs de dépollution.

Ce rapport présente les travaux de cette thèse qui a pour sujet l'étude de la MPE par le développement de modèle numérique simulant l'opération de remédiation. Il se présente sous forme de cinq chapitres :

Le premier chapitre comporte une étude bibliographique approfondie sur la législation françaises en terme de pollution des sous-sols, les techniques de remédiation des sites polluées, les différentes configurations de la MPE, ses applications, ses capacités ainsi que les modèles physiques et numériques utilisés pour son étude. Il présente dans une autre partie les propriétés des sols, les processus et les mécanismes de transports et transferts de polluants COVs dans le sous-sol.

Le deuxième chapitre décrit les sols et le polluant utilisés ainsi que les expérimentations permettant leurs caractérisations. Les dispositifs expérimentaux utilisés pour l'étude de l'écoulement diphasique et multiphasique ainsi que l'étude de transfert de masse sont présentés. Des expériences issus de la littérature et dont nous avons utilisé les résultats sont aussi décrites.

Le troisième chapitre comporte la description détaillée du modèle numérique établie pour simuler la MPE ainsi que l'outil numérique utilisé dans l'ensemble de l'étude.

Le quatrième chapitre décrit l'application du modèle mathématique développé et sa vérification par rapport à des résultats d'expériences réalisées en laboratoire et d'autres issus de la littérature. Les étapes de verification sont réalisées selon différentes parties dans le modèle :

- la partie de l'écoulement diphasique est vérifiée à travers les résultats d'expérience de drainage sur colonne 1D et sur des résultats issus de la littérature d'une cellule type Heleshow 2D ;
- la partie de l'écoulement triphasique est vérifiée à travers les résultats d'expériences d'infiltration sur cellule 2D, l'une réalisée au laboratoire et l'autre issue de la littérature ;
- la partie transfert de masse est vérifiée à travers des expériences d'extraction sous vide et de Venting.

Le cinquième chapitre comporte l'application du modèle pour un scénario de la MPE à l'échelle du terrain en simulant une dépollution. La simulation de la pollution et son étendu ont été aussi décrits.

Enfin la conclusion générale récapitule les principaux résultats de cette étude et fait ressortir les points forts et les points faibles de ce travail. Elle suggère également, dans leurs grandes lignes des possibilités d'extension et de poursuite des recherches dans ce domaine. CHAPITRE I. : ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE

Chapitre I. : ÉTUDE BIBLIOGRAPHIQUE

I.1.	LA POLLUTION DES SOLS	36
I.2.	LA REGLEMENTATION FRANÇAISE CONCERNANT LA GESTION DES SITES POLLUES	37
I.3.	TECHNIQUES DE REMEDIATION DES SITES POLLUES	41
I.3.1.	EXTRACTION SOUS VIDE (SVE)	45
<i>I.3.2</i> .	POMPAGE-TRAITEMENT	46
<i>I.3.3</i> .	EXTRACTION MULTIPHASIQUE (MPE)	47
I.3.3.A.	DEFINITION	47
І.З.З.В.	LES DIFFERENTES CONFIGURATIONS DE LA MPE	49
І.З.З.В.1.	EXTRACTION DIPHASIQUE «TPE: TWO PHASE EXTRACTION »	49
І.З.З.В.2.	EXTRACTION DOUBLE PHASE «DPE: DUAL-PHASE EXTRACTION »	50
І.З.З.В.З.	BIOSLURPING	51
I.3.3.C.	APPLICATION DE LA MPE	51
I.3.3.d.	AVANTAGES ET INCONVENIENTS DE LA MPE	53
I.3.3.E.	LA CONCEPTION ET LE DIMENSIONNEMENT DU SYSTEME MPE	54
I.3.3.E.1.	INTRODUCTION	54
I.3.3.E.2.	CONCEPTION DE LA MPE AVEC RABATTEMENT DE LA NAPPE (DPE)	55
I.3.3.E.3.	CONCEPTION DE LA MPE AVEC UN RABATTEMENT LIMITE (TPE/BIOSLURPING)	60
I.4.	LE SOL ET SES CARACTERISTIQUES	61
I.4.1.	COMPOSITION DU SOL	61
I.4.1.A.	LA PHASE SOLIDE	61
І.4.1.в.	LA MATIERE ORGANIQUE	62
I.4.1.C.	LA PHASE GAZEUSE	63
I.4.1.d.	LA PHASE LIQUIDE	63
<i>I.4.2</i> .	PROPRIETES PHYSIQUES DU SOL	65
I.4.2.a.	LA GRANULOMETRIE	65
І.4.2.в.	LA POROSITE	66
I.4.2.C.	LA TENEUR EN PHASE	67
I.4.2.d.	LA TORTUOSITE	68
I.4.2.e.	LA PERMEABILITE	69
I.4.2.F.	LA CAPILLARITE	72
I.4.2.F.1.	LA RELATION PRESSION CAPILLAIRE-SATURATION (P_c -S)	74
I.4.2.F.2.	LA RELATION SATURATION- PERMEABILITE RELATIVE $(S-\kappa_R)$	76
I.4.2.F.3.	L'hystérésis	77
I.5.	LES COMPOSES ORGANIQUES VOLATILS DANS LE SOUS-SOL	79
I.5.1.	INTRODUCTION	79
I.5.2.	LE DEVENIR DE POLLUANT ORGANIQUE PLNA DANS LE SOUS-SOL	82
<i>I.5.3</i> .	MECANISME DE TRANSPORT DES POLLUANTS DANS LE SOUS-SOL	84
I.5.3.A.	DIFFUSION MOLECULAIRE	85
----------------	---	-----
І.5.3.в.	DISPERSION MECANIQUE (CINEMATIQUE)	85
I.5.3.C.	CONVECTION (ADVECTION)	87
I.5.3.d.	CONVECTION INDUITE PAR EFFET DE DENSITE DE LA PHASE GAZEUSE	88
I.5.4.	PROCESSUS DE TRANSFERT DE MASSE ENTRE PHASES	90
I.5.4.A.	TRANSFERT DE MASSE ENTRE PLNA ET PHASE GAZEUSE	90
І.5.4.в.	TRANSFERT DE MASSE ENTRE PHASE PLNA ET PHASE AQUEUSE	93
I.5.4.C.	TRANSFERT DE MASSE ENTRE PHASE AQUEUSE ET PHASE GAZEUSE (STRIPPING)	95
I.5.4.d.	L'ECHANGE AVEC LA MATRICE DE SOLIDE	96
I.5.4.d.1.	TRANSFERT DE MASSE ENTRE PHASE AQUEUSE ET PHASE SOLIDE	96
I.5.4.d.2.	TRANSFERT DE MASSE ENTRE PHASE GAZEUSE ET PHASE SOLIDE	99
I.5.4.e.	LA BIODEGRADATION DES COVS	99
I.6.	MODELE D'ECOULEMENT ET DE TRANSPORT EN MILIEUX POREUX	101
<i>I.6.1</i> .	INTRODUCTION	101
<i>I.6.2</i> .	MODELES D'ECOULEMENT ET DE TRANSPORT CITE DANS LA LITTERATURE	

I.1. La pollution des sols

« Le site pollué est un site qui du fait d'anciens dépôts de déchets ou d'infiltration de substances polluantes, présente une pollution susceptible de provoquer une nuisance ou un risque pérenne pour les personnes ou l'environnement ». (Définition de Ministère de l'Environnement, du Développement Durable et de l'Énergie (MEDDE)).

L'origine des pollutions d'un site au niveau du sol et des aquifères peut-être très variée. Comme sources possibles on trouve les rejets dans les panaches des cheminées d'usines, un accident de manutention et de transport de matières polluantes, un mauvais confinement de produits toxiques sur des sites industriels, les fuites de réservoirs de stockage, de conduites ou de décharges et l'infiltration et le ruissellement avec la pluie sur des sites industriels ou les centres de stockage des déchets. Certaines de ces pollutions peuvent être piégées par les sols puis, sous certaines conditions, redevenir mobiles.

Cela requiert une gestion adaptée. De par l'origine industrielle de la pollution, en France la législation relative aux Installations Classées pour la Protection de l'Environnement (ICPE) est la réglementation la plus souvent utilisée pour traiter les situations correspondantes.

I.2. La réglementation française concernant la gestion des sites pollués

Le but de cette partie n'est pas d'entrer dans les détails de la jurisprudence française en matière de gestion et réaménagement des sites polluée mais plutôt d'effectuer un survol des principales politiques et normes qui réglementent ce secteur.

Il n'existe pas en droit français de loi concernant exclusivement les sites et sols pollués contrairement à la pollution de l'air et de l'eau. Le code de l'environnement qui réunit les textes législatifs traitant des risques technologiques vise avant tout à prévenir le risque, c'est-àdire à réduire le plus possible sa survenue et à en limiter les effets et traite essentiellement des ICPE. Or, la pollution d'un sol ne résulte pas systématiquement et exclusivement de l'activité d'un établissement classé.

Le Tableau I-1 résume les lois et les circulaires relatives à la gestion des sites pollués en France.

Tableau I-1 : Liste récapitulative des circulaires relatives à la gestion des sites pollués

- Loi n°75-633° du 15-07-1975 relative à l'élimination des déchets et à la récupération des matériaux.
- Loi n°76-663 du 19-07-1976 relative aux ICPE (code de l'environnement. art. L511 et suivants)
- Circulaire du 3-12-1993 relative à la politique de réhabilitation et de traitement des sites et sols pollués.
- Circulaire du 3-04- 1996 relative à la réalisation de diagnostics initiaux et de l'évaluation simplifiée des risques sur les sites industriels en activité.
- Circulaire du 18-04-1996 relative aux listes des entreprises concernées par les diagnostics initiaux. à leur validation et au contenu des arrêtés préfectoraux prescrivant les études.
- Circulaire du 7-06-1996 relative aux procédures administratives et juridiques applicables en matière de réhabilitation de sites pollués.
- Circulaire n°97-072 du 12-02-1997 relative à l'appréciation des risques vis-à-vis des alimentations en eau potable et à l'information des entreprises concernées.
- Circulaire n°97-94 du 10-11-1997 relative à la résorption des décharges brutes.
- Circulaire du 31-03-1998 faisant le point sur le recensement et le diagnostic des sites pollués.
- Circulaire du 17-03-1999 relative à l'Intervention d'office de l'ADEME.
- Circulaire du 2 –04-1999 relative Financement de la dépollution des sites.
- Circulaire du 26-04-1999 relative à l'Inventaire historique des sites industriels anciens BASIAS.
- Circulaire du 10-12-1999 relative aux Principes de fixation des objectifs de réhabilitation.
- Circulaires et notes ministérielles du 08-02-2007 code de l'environnement
- Circulaire du 17-12-2012 relative aux diagnostics des sols dans les lieux accueillant les enfants

Par contre plusieurs politiques sont mises en place par le MEDDE. Il s'agit d'une politique qui n'a pas de valeur légale, mais elle peut être utilisée comme des directives car elle représente la philosophie du MEDDE, qui s'appuie sur les principes suivants :

- prévenir les pollutions futures.
- mettre en sécurité les sites nouvellement découverts.
- connaître, surveiller et maîtriser les impacts.
- traiter et réhabiliter en fonction de l'usage puis pérenniser cet usage.
- garder la mémoire et impliquer l'ensemble des acteurs.

La prévention de la pollution des sols s'appuie sur la loi n° 76-663 du 19 juillet 1976 relative aux ICPE. Cette loi est reprise au livre V, titre I du Code de l'Environnement. Elle impose aux exploitants d'installations classées la remise en état des sols lors de la mise en arrêt définitive. En même temps, le vendeur d'un terrain, sur lequel une installation soumise à autorisation a été exploitée, a l'obligation de réaliser un bilan du site et d'informer l'acheteur des dangers ou inconvénients importants qui résultent de l'exploitation.

La direction de *surveillance/maîtrise/réhabilitation* des sites pollués impose, dans une première étape, un diagnostic de site (l'Interprétation de l'État des Milieux (IEM), circulaire 8 février 2007) par des mesures simples et rapides soit une Évaluation Simplifiée des Risques (ESR) qui permet d'apporter une réponse aux questions relatives à l'état du risque pour l'homme et l'environnement. Dans de telles études trois classements de site sont possibles : Classe 3 sites banalisables, Classe 2 sites à suivre et Classe 1 sites nécessitant des investigations approfondies. A ce dernier cas, un ESR sera suivi d'une étude approfondie soit une Évaluation Détaillée de Risque (EDR). Elle a pour objectifs de caractériser : les sources de pollution, voies de transfert et les cibles, les risques sanitaires et environnementaux et de définir les objectifs de réhabilitation à mettre en place. Ainsi envisager soit une mise en sécurité, ou une mise en place d'une surveillance ou envisager un traitement en fonction de l'usage auquel le détenteur du site le destine (sensible ou non) et les techniques de traitement disponibles et leurs efficacités.

Cette investigation de EDR se porte sur des valeurs guides défini par l'Institut National de l'Environnement Industriel et des RISques (INERIS, 2006) :

 Les valeurs de définition de source-sol (VDSS) : est une valeur guide spécifique d'une substance. Elle sert à identifier une source de pollution constituée de sols, et à délimiter sa surface. Cette valeur est valable pour la source quels que soient les milieux de transfert et d'exposition retenus dans le schéma conceptuel du site ou de la source. Les valeurs de constat d'impact (VCI) : permettant de constater l'impact de la pollution d'un milieu en fonction de son usage. Ces valeurs sont développées sur une base méthodologique d'évaluation des risques chroniques pour la santé humaine par différentes voies d'exposition liées à l'usage actuel des sites.

Par contre ces valeurs ne représentent pas des seuils de réhabilitation ou de dépollution qui sont définies selon une démarche d'évaluation détaillée des risques, spécifique à chaque site étudié. Le *Tableau I-2* représente quelques valeurs guides pour des composés organiques volatiles.

	VDSS.	VCI sol.			
Composé	[mg.kg ⁻¹ matière sèche]	[mg.kg ⁻¹	matière sèche]		
		Usage sensible	Usage non sensible		
Hydrocarbures aromatiques	-	•			
Benzène	1	2,5	Pvl*		
Ethylbenzène	25	50	250		
Styrène	50	100	500		
Toluène	5	10	120		
Xylènes totaux	5	10	100		
Hydrocarbures aromatiques	polycycliques				
Anthracène	Pvl*	Pvl*	Pvl*		
Benzo(a)anthracène	7	19,9	252		
Benzo(k) fluoranthène	450	900	2520		
Benzo(a)pyrène	3.5	7	25		
Chrysène	5175	10350	25200		
Fluoranthène	3050	6100	Pvl*		
Indéno (1.2.3-c.d) pyrène	8	16,1	252		
Naphtalène	23	46	Pvl*		
HAP totaux	Valeur par substance				
Hydroxyl benzènes (Phénols)					
Phénol	25	50	Pvl*		
Cathécol	Cathécol 10		100		
Résorcinol	5	10	50		
Hydroquinone	5	10	50		
Crésols totaux	2	5	25		

Tableau I-2: Valeurs guides en matière de pollution des sols utilisée en France (Brusturean, 2004)

*Pvl – pas de valeur limite

En ce qui concerne la direction *garde en mémoire*, deux types d'inventaire sont mis en place pour garder en mémoire les acteurs :

L'inventaire BASOL, réalisée par le MEDDE, qui recense les sites et sols pollués (ou potentiellement pollués) appelant une action des pouvoirs publics à titre préventif ou curatif. Cet inventaire recense plus de 5786 sites pollués (BASOL,2014). Une pollution des sols ou d'une nappe d'eau souterraine est constatée dans 70% des cas et montre que plus de

40% des sites constatés sont pollués par des composés organiques (BTEX (Benzène, Toluène, Éthylbenzène et Xylènes), TPH (Total petroleum hydrocarbon), COV et COHV (composés organiques halogénés volatils).

L'inventaire BASIAS (BASIAS,2014), qui dresse l'inventaire des anciens sites industriels et en activités pouvant éventuellement être à l'origine d'une pollution, recense approximativement 300 à 400 milles sites potentiellement pollués, dont certains sont à l'état de friche (soit approximativement 100 milles hectares). Cet inventaire historique, réalisé par le Bureau de Recherches Géologiques et Minières (BRGM) est avant tout destiné au grand public, aux notaires, aux aménageurs et doit servir à apprécier les enjeux relatifs à l'état d'un terrain en raison des activités qui s'y sont déroulées.

En plus, et dans le principe de sensibiliser la population et les principaux intervenants à la problématique des terrains contaminés, le MEDDE avec ses collaborateurs l'Agence De l'Environnement et de la Maîtrise de l'Énergie (ADEME) et le BRGM publient progressivement plusieurs documents pour aider les intervenants qui œuvrent dans le secteur environnemental. Ces documents sont disponibles sur leurs sites internet (MEDDE, ADEME, BRGM). Il est même possible de télécharger les documents (administratifs et techniques).

Parmi les documents traitant de la gestion et le réaménagement des sites pollués, il y a des guides méthodologiques relatifs aux sols pollués qui sont utiles à consulter avant d'entreprendre toute démarche de restauration. Ces guides ont été élaborés de façon à ce que les intervenants (promoteurs, consultants, propriétaires...etc.) soient au fait des renseignements à recueillir et de la marche à suivre pendant la réhabilitation du site (caractérisation d'un terrain contaminé, mesures de contrôle à effectuer, le choix des techniques de gestion ou de restauration ...etc.). Pour aller plus loin, l'ADEME et le BRGM, en collaboration avec l'Union des Professionnels de la Dépollution des Sites (UPDS), proposent un outil interactif <u>SelecDEPOL</u> de présélection des techniques de dépollution en fonction des différents paramètres opératoires. L'objectif étant de faciliter le choix en comparant les techniques appropriées (maturité, taux d'utilisation, coûts et temps de traitement, etc.).

Le *Tableau I-3* montre quelques accidents mettant en jeu des hydrocarbures traités par l'extraction multiphasique et l'extraction sous vide en France.

Date	Localisation	Cause de pollution	Polluant	Quantité déversée et milieu touché	Traitement Employé
2014	Cholet (49)	Ancienne filature utilisant de solvants.	Solvants halogénés (TCE)	nappe 8,5 g.L ⁻¹ surface 5 000 m ² profondeur 4 m	MPE Traitement de 2 ans
2008	Mont de Marsan (40)	Fuite, site de stockage pétrolier pré- existant	Hydrocarbure (Fioul)	sol 750 g.kg ⁻¹ nappe 230 g.L ⁻¹ Gazole flottant sur la nappe 50m ²	MPE Traitement de 10 mois
2005	Rhône (69)	Distributeur de carburants l'aviation	Kérosène	270 m ³ Sol + nappe	SVE+ pompage/écrémage Traitement de 8 mois
2002	Rhône (69)	Station d'essence	Hydrocarbure léger SP95/SP98	Environ 550 m ³ Sol + nappe	SVE Traitement de 6 mois
2001	Pont d'Ain (01)	Fuite, site de production de peinture	Xylène	3 200 à 4 000 m ³ Sol + nappe	SVE + Stripping Traitement de 1 an
1990	Chavanay (42)	Déraillement d'un train de wagons-citernes	Hydrocarbure	250 à 300 m ³ Sol + nappe + eaux superficielles	SVE + confinement hydraulique + pompage/écrémage Traitement de 14 mois

Tableau I-3: Accidents mettant en jeu des hydrocarbures ces dernières années en France (ADEME,2014)

I.3. Techniques de remédiation des sites pollués

Les techniques de remédiation des sites pollués peuvent être basées sur quatre principes distincts : les techniques physiques, thermiques, chimiques et biologiques (BRGM, 2010) :

Les méthodes physiques constituent la grande majorité des techniques utilisées (ADEME, 2012). Certaines ont pour principe d'immobiliser la pollution sur place en la confinant, la solidifiant ou en la stabilisant. D'autres transfèrent et concentrent la pollution vers des points de récupération par des flux pour leur transport. Ces techniques combinent la plupart du temps les trois principes d'application : in-situ, sur site et hors site. Les actions sur place servent généralement pour le traitement de l'air et de l'eau ayant servi au transport des polluants.

Les techniques thermiques s'appuient sur les principes de l'incinération, la gazéification ou la pyrolyse à température élevée. Le principe est de porter le matériau contaminé à de hautes températures pour le détruire, l'extraire ou au contraire l'immobiliser. Il existe quelques systèmes de traitement thermique in-situ, mais ces techniques sont habituellement appliquées sur des sols excavés.

Les techniques chimiques sont utilisées pour détruire, fixer ou neutraliser les composés toxiques. Elles font appel à un principe réactionnel, c'est-à-dire l'action d'un solvant, d'un acide ou d'une électrolyse pour enlever ou transformer le contaminant. Ces techniques sont peu appliquées directement aux sols contaminés, mais elles interviennent souvent pour compléter les techniques physiques lors du traitement de l'eau et des gaz résiduels. Cependant, il faut mentionner qu'il existe actuellement sur le marché de plus en plus de traitements chimiques appliqués directement aux sols contaminés

Les techniques biologiques consistent à biodégrader les polluants grâce à l'activité des microorganismes. Ces techniques s'appuient sur le métabolisme et l'activité microbiologique des bactéries pour dégrader les polluants, donc supprimer la cause de pollution. Cette activité peut être aérobie ou anaérobie, mais elle est généralement aérobie, car cet état offre une plus grande efficacité et un meilleur contrôle. Ces techniques sont bien maîtrisées en laboratoire, car elles s'appliquent à des types de sol parfaitement connus avec des polluants bien caractérisés, mais la biodégradation s'avère plus difficile in-situ en raison de la complexité du milieu existant. Toutefois, ces techniques sont largement utilisées, souvent en complémentarité avec une technique physique et les résultats obtenus sont plus que satisfaisants.

Le *Tableau I-4* synthétise les principales techniques physiques, biologiques, chimiques et thermiques connus.

Technique	In-Situ	Sur Site ou Hors Site
Méthodes physiques par évacuation de la pollution	 Ventilation forcé (SVE/Venting) Extraction multiphasique Pompage et traitement Barbotage in-situ (Sparging) Pompage/écrémage 	-Excavation des sols -Tri granulométrique -Lavage à l'eau
Méthodes physiques par piégeage de la pollution	-Confinement par couverture -Confinement vertical -Confinement hydraulique -Solidification/stabilisation	 Encapsulation on site Élimination en centres de stockage des déchets ISDD,ISDND,ISDI Solidification/stabilisation
Méthodes chimiques	-Oxydation chimique in-situ -Réduction chimique in-situ	-Extraction chimiques -Oxydation et réduction chimiques
Méthodes thermiques	-Vitrification -Désorption thermique in-situ	-Incinération -Désorption thermique -Vitrification -Pyrolyse
Méthodes biologiques	 Biodégradation dynamisée BioVenting Biosparging Atténuation naturelle contrôlée Phytorèmédiation 	-Bioréacteur -Biotertre -Compostage -Landfarming
Autres	-Barrières perméables réactives -Electroremédiation	
Traitement des rejets aqueux		 Récupération des produits purs Prétraitement des eaux souterraines Stripping à l'air Photo-oxydation sous UV Adsorption Bioréacteur (procédés intensifs) Séparation par membrane Oxydoréduction Échange d'ions Précipitation, Coagulation-floculation. Jécantation Filtration.
Traitement des rejets gazeux		 Adsorption Absorption (ou lavage) Condensation Procédés d'oxydation thermique Photo-oxydation Réduction thermique Bioréacteurs Méthodes de dépoussiérage

 Tableau I-4: Principales techniques de remédiation des sites polluées (BRGM, 2010)

D'une manière générale, le choix de la technique (ou filière de traitement) se fait par la comparaison de différents scenarios de gestion réalisée via des bilans coûts-avantages. Ces

derniers dépendent de caractéristiques intrinsèques des techniques (rendement, mise en place) et des contraintes spécifiques au site et son environnement, tels que :

- caractéristiques environnementales du site : géologie, hydrogéologie, topographie, hydrologie, météorologie...;
- polluants présents (nature, quantité, comportement physicochimique, toxicité....);
- objectifs de la qualité de milieu (eau, gaz, sol) ;
- délais d'exécution ;
- paramètres liées à l'environnement (odeurs, bruits, poussier...etc.);
- contexte économique et réglementaire ;
- usages présents et futures du site (sensible, non sensible) ;
- critères sociopolitique ;

Le *Tableau I-5* ci-dessous présente la matrice de possibilités d'application des techniques de dépollution par milieu concerné (zone non saturée (ZNS) et zone saturée (ZS)) pour les polluants organiques.

Technique de Réhabilitation Potentielle	Milieu concerné	COV	Hydrocarbure Halogénés	Hydrocarbure non Halogénés	НАР	PCB	Dioxines et Furannes	Pesticides et herbicides
Confinement	-	-		-		-	•	
Confinement – couverture	ZNS	+	+	+	+	+	+	+
Confinement hydraulique	ZS	+	+	+	+	+	+	+
Confinement verticale	ZNS, ZS	+	+	+	+	+	+	+
Excavation et enfouissement	ZNS	+	+	+	+	+	+	+
Procèdes biologiques								
Atténuation naturelle	ZS	+	+	+	+	-	-	+
Biotertre	ZNS	+	-	+	+	-	-	+
BioVenting	ZNS	+	+	+	+	-	-	-
Biosparging- bioSlurping	ZNS, ZS	+	+	+	+	-	-	+
Landfarming	ZNS	+	-	+	+	-	-	+
Traitement sous forme de boue	ZNS	+	+	+	+	-	?	+
Andain	ZNS	+	-	+	+	-	-	+
Procèdes chimiques								
Oxydation chimique	ZNS, ZS	+	+	+	+	-	-	+
Dé halogénation chimique	ZNS	+	+	-	-	+	+	-
Lavage chimique	ZNS	+	+	+	+	-	-	-
Extraction par solvants	ZNS	+	+	+	+	+	+	+
Amendements en surface	ZNS	-	-	-	-	-	-	-
Procèdes physiques								
Air Sparging	ZS	+	+	+	-	-	-	-
Extraction multiphasique	ZNS, ZS	+	+	+	-		-	-
Pompage et traitement	ZS	+	+	+	-		-	-
Extraction sous vide SVE/Venting	ZNS	+	+	+	-		-	-
Barrière perméable réactive	ZS	+	+	+	+	+	+	+
Lavage	ZNS	-	+	+	+	+	-	+
Procédés de solidification et de stabi	ilisation							
Liants Hydraulique (Ciment)	ZNS	-	-	?	+	+	+	?
Vitrification	ZNS	+	+	+	+	+	+	+
Procédé Thermique	7010							
Incinération	ZNS	+	+	+	+	+	+	+
Desorption	ZNS	+	+	+	+	+	-	+

Tableau I-5: Matrice de possibilités de dépollution pour les polluants organiques (BRGM, 2010)

+ : envisageable ; - : non envisageable

I.3.1. Extraction Sous Vide (SVE)

L'extraction sous vide connue sous le nom « Soil Vapor Extraction » (SVE) dans la littérature, consiste à créer un gradient de pression dans le sous-sol par l'application d'une dépression dans un puits d'extraction de l'ordre de quelques centaines de millibar. Ceci induit à un écoulement contrôlé d'air qui entrainera avec lui les contaminants volatils résiduels dans la partie non saturée ou partiellement saturée du sol. La volatilisation et le flux convectif d'air sont les principaux mécanismes d'élimination des contaminants résiduels, dissous ou adsorbés dans le

sous-sol. La SVE est une technique physique, in-situ, et représente une méthode alternative à la méthode traditionnelle d'excavation du sol pour la restauration des sites pollués.

Cette technique est efficace dans une grande variété de paramètres. Elle a un avantage économique très apprécié. En effet, en plus qu'elle soit une technique non destructive du soussol, son coût est très faible par rapport aux autres techniques de dépollution (environ $15 \in$ par tonne de sol traité). L'ADEME (2012) a estimé dans sa synthèse de l'année 2010 que cette technique est utilisée dans plus de 60% des cas lorsqu'il y a traitement in-situ envisagé et hors confinement, et dans plus de 28% des cas de toutes les techniques de traitement confondues hors confinement (*cf. Annexe A*).

I.3.2. Pompage-Traitement

Le pompage-traitement consiste à l'extraction des eaux souterraines des puits de captage et les traiter ex-situ par l'élimination des contaminants par plusieurs méthodes physico-chimiques : la dépression appliquée dans le puits et l'écoulement des eaux souterraines vers le captage induisent à la création d'un gradient hydraulique. Le pompage vise à réduire la masse des contaminants dans la phase non-aqueuse libre et celle dissoute dans la phase aqueuse, mais aussi à réduire la mobilité des panaches de contaminants par le confinement hydraulique. Le principal mécanisme d'élimination des contaminants est le flux convectif de l'eau et la dissolution des composés dans la nappe (partie saturée du sous-sol).

La technique de pompage-traitement peut être utilisée dans une grande variété de paramètres hydrauliques allant de faible à forte perméabilité. L'efficacité de cette technique diminue avec la diminution de la perméabilité et l'hétérogénéité de la nappe.

Le rapport de l'ADEME (2012) montre que le coût de cette technique varie selon la méthode de traitement des eaux extrait sur site. Ainsi l'adsorption sur charbon actif ou par un stripping coute $5 \in$ par m³ d'eau traitée et un traitement physicochimique coute $30 \in$. En général, la technique de pompage-traitement a un coût faible, et elle représente 48% des techniques de traitement des eaux souterraines utilisées en France en 2010 (*cf. Annexe A*).

I.3.3. Extraction MultiPhasique (MPE)

I.3.3.a. Définition

L'extraction multiphasique ou « Multiphase extraction » (MPE) s'adresse aux contaminations dans les zones saturées et non-saturées, par récupération des contaminations dissoutes, volatiles, adsorbées et PLNA résiduelles. Les principaux mécanismes d'élimination des contaminants dans cette technique englobent la volatilisation vers la phase gazeuse, la dissolution vers la phase aqueuse et les flux convectifs des trois phases (gazeuse, aqueuse et PLNA).

En général, si les deux techniques, l'extraction sous vide et le pompage-traitement sont les techniques applicables pour la remédiation du site dans ses parties respectives ZNS et ZS, la MPE peut être considérée comme une option alternative qui peut les remplacer.

L'extraction multiphasique consiste à appliquer une importante dépression (par rapport à celle appliquée en SVE) dans un puits ou dans une tranche qui traverse la zone non saturée, la frange capillaire et la zone saturée du sous-sol. Cette dépression provoque l'écoulement du liquide et le gaz du sous-sol vers le puits. Le gaz extrait se traite de la même façon que dans la SVE. La phase aqueuse extraite se traite sur site et elle est ensuite soit réinjectée dans la nappe soit renvoyée en décharge.

Sous l'effet du gradient hydraulique la PLNA libre surnageant sur la surface de l'eau se dirige aussi vers le puits d'extraction. L'eau et la PLNA retenues par les forces capillaires dans la frange capillaire peuvent aussi se déplacer vers le puits mais sous certaines conditions. Le rabattement de la nappe induit à élargir la zone non saturée qui peut être traitée par la partie SVE de l'extraction multiphasique (U.S.ACE, 1999)

Le rapport de L'ADEME (2012) (*cf. Annexe A*) estime le taux d'utilisation de cette technique en France en 2010 à 6% des techniques de remédiation des eaux souterraines (7,5% hors le confirment hydraulique). Son coût varie entre 5 et $30 \notin m^3$ de liquide traité pour une moyenne de $25 \notin m^3$. L'US.ACE (1999) considère cette technique prometteuse et en plein croissance par rapport aux techniques in-situ conventionnelles.

On peut résumer les capacités de l'extraction multiphasique (US.EPA, 1996) de la façon suivante :

- réhabilitation simultanée des sols et des eaux souterraines ;
- réhabilitation de la frange capillaire et de la zone à saturation élevée ;
- récupération de la PLNA libre surnageant ;
- augmentation du taux de récupération des eaux souterraines par rapport aux pratiques classiques de pompage ;
- augmentation du rayon d'influence de chaque puits de captage.

Le système de la MPE est composé en général (*cf. Figure I-1*) d'un puits de captage et d'un tube rigide plein placé à l'intérieur du puits. L'extrémité du conduit, placée au niveau de la surface de la nappe, permet l'extraction des liquides par un système de pompage. La phase libre surnageant est extraite grâce au cône de rabattement induit par le pompage de la phase liquide. Les gaz peuvent éventuellement être extraits par la mise en dépression de l'ensemble du système. Enfin un système de traitement des effluents vient en dernière étape du procédé.

Les techniques de traitement des effluents extraits se résument de la façon suivante :

- traitement des effluents liquides : après le passage à une séparation liquide/liquide, ils sont traités en général par stripping, l'adsorption sur filtre à charbon actif ou par une méthode physico-chimique classique ;
- traitement des effluents gazeux : ils sont traités par adsorption sur charbon actif ou biofiltres pour les concentrations faibles (moins de 100 ppm). Pour les concentrations élevées (plus de 500 ppm) c'est l'incinération, la condensation ou l'oxydation catalytique qui sont utilisés.

La Figure I-1 schématise un système typique de l'extraction multiphasique.



Figure I-1: Schéma descriptif de la technique d'extraction multiphasique (BRGM, 2010)

I.3.3.b.Les différentes configurations de la MPE

L'extraction multiphasique peut être conçue et mise en œuvre en plusieurs configurations en fonction de la profondeur de la nappe et les caractéristiques du site pollué. On distingue trois types (US.EPA, 1999):

I.3.3.b.1. Extraction DiPhasique «TPE: Two Phase Extraction »

Dans cette configuration les effluents liquides et gazeux sont extraits du même conduit dont l'extrémité se place au niveau de la surface liquide-air en appliquant un vide important (de 610 à 900 cmCE) par une pompe à vide (pompe à anneau, pompe à jet ou pompe soufflante) (*cf. Figure 1-2*). Les effluents extraits sont séparés sur site par un séparateur liquide-gaz, suivi par un séparateur PLNA-aqueuse. Les phases sont ensuite traitées séparément. Cette technique

s'adresse normalement au traitement des solvants halogénés dissous dans la phase aqueuse en l'absence de PLNAL surnageant.

Cette configuration est considérée comme la plus rentable économiquement par rapport aux autres, car une seule pompe à vide est utilisée, et aussi la quantité d'eau extraite est moins importante. Ce qui diminue la taille et la capacité des équipements du traitement de l'effluent aqueux.

Kittel *et al.*(1995) ont montré que pour assurer la continuité de l'aspiration de la phase liquide sous forme de gouttelettes dans le puits, il faut avoir une vitesse minimale de la phase gazeuse de 275 m.min⁻¹ dans le conduit d'extraction. Cette vitesse est à prendre en compte dans la conception d'un tel système d'extraction. En outre, cette configuration est limitée par une profondeur maximale de la nappe de 10 m, car théoriquement le vide maximal qu'on puisse appliquer dans la pompe est limité par la pression atmosphérique.

I.3.3.b.2. Extraction Double Phase «DPE: Dual-Phase Extraction »

Dans cette configuration, il n'y a pas de limite par rapport à la profondeur de la nappe, car ici les effluents gazeux et liquides du sous-sol sont extraits vers la surface dans des conduits séparées mais avec le même puits (*cf. Figure I-2*). La phase liquide s'extrait par une pompe submersible installée en bas du puits dans la nappe ou vers la surface, par contre la phase gazeuse s'extrait par une pompe à vide (applique un vide de 100 à 400 cmCE) installée à la tête du puits. Une sonde de détection du niveau de l'eau est nécessaire dans cette configuration pour éviter la cavitation dans la pompe submersible. Ce système peut être considéré tout simplement comme une combinaison de l'extraction sous vide et du pompage-traitement.

L'atout de ce système est que les phases liquides et la phase gazeuse sont extraites du même puits par des conduits séparés. Ce qui permet d'utiliser des systèmes indépendants pour l'extraction, la mesure et le contrôle de l'écoulement de chaque fluide. Ce qui n'est pas possible dans la configuration TPE, et qui devient important en particulier dans le cas d'un réseau de plusieurs puits d'extraction reliés au même système d'extraction (même pompe d'extraction) pour assurer le vide et les débits dans chaque puits.

I.3.3.b.3. BioSlurping

Cette configuration est considérée souvent comme représentante de la MPE. Elle a la même configuration d'Extraction DiPhasique (un conduit et une seule pompe). L'extrémité du conduit se place à la surface PLNA-eau. Ce système est conçu de manière à maximiser la récupération de la PLNA libre et minimiser la récupération des phases gazeuse et aqueuse. Ainsi, une sonde de détection de la phase liquide est nécessaire dans ce système. Le BioSlurping est destiné plutôt à la récupération du surnageant (la PLNAL flottante) et l'augmentation de la biodégradation aérobic in-situ des composés organiques par l'augmentation du flux d'air qui apporte de l'oxygène aux microorganismes.



Extraction DiPhasique TPEExtraction Double Phase DPEBioSlurpingFigure I-2: Schéma montrant les trois configurations de l'extraction multiphasique (US. ACE, 1999)

I.3.3.c. Application de la MPE

La MPE peut être très efficace et à un coût modéré pour la remédiation des sites dans une gamme appropriée de paramètres hydrologiques et de concentration de contaminants. Si elle est

appliquée hors cette gamme, cette technique devient inefficace et non rentable (Suthersan, 1997).

Le *Tableau I-6* résume les paramètres importants de l'applicabilité de la MPE. La conductivité hydraulique a une grande influence sur l'efficacité de cette technique car elle représente la capacité de la nappe à transmettre de l'eau. La MPE est bien applicable dans une gamme de conductivité hydraulique comprise entre 10⁻⁷ et 10⁻⁵m.s⁻¹ (sable fin à limon fin) (US.EPA, 1999). La transmissivité de la nappe qui est le produit de la conductivité hydraulique par l'épaisseur de la nappe est aussi un paramètre important. Pour assurer l'efficacité de cette technique la transmissivité doit être inférieure à 6,3 m³.Jour⁻¹.m⁻¹ (Suthersan, 1997).

Le résultat du pompage classique dans une zone à faibles conductivité et faible transmissivité est l'augmentation du rabattement de la nappe et donc la limitation du rayon d'influence du puits du pompage classique. En outre, la zone à faible conductivité tente à avoir une grande frange capillaire. Les fluides dans cette frange sont retenus dans les pores par les forces capillaires qui sont des pressions négatives. Le vide appliqué par MPE vainc ces forces et enlève les fluides retenus dans cette zone. Cela peut être considéré comme un avantage particulier pour la récupération de la PLNAL car cette phase a tendance à s'accumuler dans la zone capillaire (US.EPA, 1999).

L'applicabilité de la MPE est également régie par la volatilité ou la pression de vapeur des contaminants, car le mécanisme principal d'élimination des contaminants de la zone non saturée par la partie SVE de la MPE est la volatilisation et le flux convectif de l'air. La MPE est donc applicable pour les COVs comme les produits pétroliers (BTEX) et les solvants halogénés et non halogénés (BRGM, 2010).

Paramètre	Gamme d'applicabilité
Conductivité hydraulique	Modérée à faible de 10^{-05} à 10^{-07} m.s ⁻¹
Transmissivité	Moins de 6,3 m ³ .jour ⁻¹ .m ⁻¹
sol	Sableux à argileux
perméabilité à l'air	Modérée à faible < 1 darcy
Rabattement/taux de récupération	Production rapides ou forte rabattement dans les puits faible taux de récupération des eaux réalisée avec un pompage classique.
Zone de contamination	Zone saturée, zone non-saturée, frange capillaire
Les contaminants traités	COVs halogénés, COVs aromatiques - hydrocarbures pétroliers totaux (TPH), PLNAL surnageant
pression de vapeur	> 1mm. Hg à 20° C
Constante de Henry	> 2. 10 ⁻⁰⁴ atm.m ³ .mol ⁻¹ à 20° C > admin. 0,01 [-] à 20° C

 Tableau I-6: Paramètres de l'applicabilité de l'extraction multiphasique (US.EPA, 1999)

I.3.3.d.Avantages et inconvénients de la MPE

Le Tableau I-7 résume les avantages et les inconvénients de cette technique (BRGM, 2010).

Avantages	Inconvénients
- Technique fiable et approuvée.	- Applicable en préférence dans le cas d'une nappe peu
- Mise en œuvre relativement simple et rapide	profonde (profondeur < 10m)
- Applicabilité à de nombreux polluants (PLNAL en	- Cette technique n'est valable que pour les PLNAL
phase pure).	- Traitement non applicable pour de petites épaisseurs
- Remplace avantageusement le couplage de	de surnageant (< 1 cm)
techniques classiques (pompage/traitement et SVE/	- Débits de pompage souvent importants ; il est donc
Venting) dans les milieux peu perméables et	primordial de bien optimiser le nombre et
hétérogènes et aussi pour ses délais relativement courts	l'emplacement des points d'extraction afin de limiter
- Plus avantageux que le Sparging pour confiner l'air	les coûts de fonctionnement
et les eaux souterraines	- Efficacité limitée à un aquifère de faible perméabilité
- Stopper la migration des polluants par son aspect du	$(10^{-7} \text{m.s}^{-1})$ non homogène et/ou fracturé.
confinement hydraulique	- Risque de dissémination de la pollution sans la
- Envisageable sous des bâtiments et peu de	maîtrise totale du sens d'écoulement des eaux
perturbation des sols	souterraines.
- La position des puits d'extraction et des crépines	- La forte teneur en matière organique est néfaste au
permet de cibler précisément les zones à traiter	processus
- Éliminer la phase flottante, les gaz et les eaux,	- L'humidité élevée diminue le mouvement de l'air
permet de diminuer considérablement le coût et le	- La variation importante de la profondeur du toit de la
temps de traitement	nappe constitue un obstacle important au bon
	fonctionnement du procédé

Tableau I-7: Les avantages et les inconvénients de la MPE

I.3.3.e. La conception et le dimensionnement du système MPE

I.3.3.e.1.Introduction

Comme avec d'autres approches de remédiation in-situ, il est très important que la conception de composants à la surface (séparateurs, système de contrôle, traitement et décharge), et celui des composants du sous-sol (puits et pompes) fonctionnent ensemble tout au long du processus de conception. De même, une bonne conception doit incorporer des éléments de contrôle suffisants à la surface et de la surveillance du sous-sol pour fournir la rétroaction nécessaire de modifier les paramètres de fonctionnement du système.

L'objectif ultime d'un système MPE est d'atteindre la remédiation souhaitée d'une manière rentable et en temps opportun. La MPE peut être mise en œuvre dans une variété de configurations, selon l'objectif de la remédiation pour les sols, les eaux souterraines, ou la récupération de la PLNA. Par exemple, un système MPE qui est destiné à éliminer le panache de l'eau contaminée, et éliminer les contaminants dans la zone non saturée par SVE exigera une conception de système différent d'un système MPE qui est destiné à éliminer la PLNA en phase libre ou dissoute dans la nappe.

Ainsi, on peut distinguer deux principales applications de MPE : la MPE avec rabattement de la nappe (c'est-à-dire la déshydratation de la partie saturée) destinée à améliorer la SVE et le bioVenting et la MPE sans rabattement destinée à la récupération de PLNAL surnageant.

Pour concevoir une telle application on a besoin de :

- comprendre les caractéristiques d'écoulement et de transport/transfert dans le sous-sol : du sol (perméabilité, porosité et courbe de rétention du sol), et les caractéristiques physiques de la PLNA (quantité, composition, et sa distribution dans le sous-sol, paramètres physiques de transport/transfert entre les différentes phases) ;
- un modèle d'écoulement pour prédire l'écoulement du liquide et du gaz dans la zone de traitement et dans le puits pour :
 - spécifier le rayon d'influence de chaque puits et assurer la couverture des puits installés de la zone de traitement ;
 - spécifier la taille et la capacité des pompes et des équipements du traitement des effluents, ainsi que le coût d'installation et le coût opératoire du système.

 un modèle conceptuel pour le transport /transfert de masse qui détermine les mécanismes de transport et les processus de transfert entre la phase gazeuse, la phase dissoute, la PLNA et par la biodégradation. Ainsi il détermine le temps et l'efficacité du traitement.

Cependant, les deux applications ont des paramètres de conception communs. A savoir :

- le vide appliqué : un vide adéquat à appliquer dans les puits de MPE doit être choisi de manière à répondre au mieux aux objectifs de remédiation. Le vide appliqué et les flux associés dictent le type et la taille des pompes ;
- les flux des phases extraites : les taux d'extraction souhaités et/ou attendus de chaque fluide (gaz, eau, PLNA) doivent être déterminés à partir de la configuration mise en place et des modèles de mécanisme de traitement. Par exemple, le débit d'air pour atteindre un taux de change de volume poreux désiré PVER (en anglais : Pore Volume Exchange Rate). Dans la plupart des cas un débit d'extraction d'un fluide imposé (PLNA par exemple) va générer en parallèle un flux d'autres fluides (gaz et phase aqueuse) qui nécessite une gestion et un traitement à la surface ;
- l'emplacement des puits dans le champ de captage : une configuration du champ de captage qui permettra d'atteindre le taux d'extraction est nécessaire pour répondre mieux aux objectifs de remédiation. Cela a un impact considérable sur le coût du système MPE ;
- l'emplacement de la crépine du puits : le choix de la longueur et la profondeur de la crépine dépend de la profondeur et de l'épaisseur de la zone contaminée. Il faut prendre en compte également dans la conception, les effets de changements de la perméabilité dus à la stratification du sol dans la zone contaminée et le rabattage de la nappe phréatique au fil du temps.

I.3.3.e.2. Conception de la MPE avec rabattement de la nappe (DPE)

L'objectif premier de cette application du traitement est d'éliminer les contaminants par SVE ou bioVenting, par réduction de la saturation dans la zone de traitement pour permettre au gaz de circuler. Ceci est accompli par le rabattement de la nappe phréatique par un drainage gravitaire. Le vide appliqué au niveau de la zone saturée augmente ainsi le drainage gravitaire du liquide en augmentant la vitesse d'écoulement de l'eau souterraine vers le puits.

Cependant, le vide appliqué à la partie non saturée empêche le drainage du liquide en abaissant la pression d'air dans la zone capillaire ce qui provoque la montée de la nappe. Le vide appliqué

dans la zone non saturée devrait être aussi élevé que nécessaire pour assurer un débit des eaux souterraines nécessaires pour réduire la saturation dans la frange capillaire, mais pas très élevée pour éviter la submersion. Cependant, il est nécessaire d'obtenir une répartition de vides dans le sous-sol autour du puits capable de surmonter les pressions capillaires pour drainer la frange capillaire qui a souvent une pression d'entrée d'air modérée pour des sols perméables. Ceci n'est pas le cas des sols à faible perméabilité (10⁻⁶ à 10⁻⁷m.s⁻¹), où il est très difficile de réaliser le vide nécessaire par un nombre raisonnable de puits.

Les débits d'extraction d'air et de liquide changent pendant le fonctionnement du système MPE. Ainsi il est nécessaire de concevoir le système d'extraction et l'unité de traitement pour les deux phases gazeuse et liquide pour les débits d'extraction les plus importants ; généralement pour le gaz après le rabattement de la nappe (débit stationnaire) et pour le liquide au démarrage du système (débit transitoire).

Pour la meilleure conception d'un tel système, c'est-à-dire déterminer le vide à appliquer, l'emplacement des puits et les crépines et les débits d'extraction des fluides, un modèle approprié à la conception de la MPE est indispensable (*cf.*la synthèse des modèles, *Tableau I-18*). Celui-ci a normalement besoin des caractéristiques du site, des contaminants et des données de l'essai sur un pilote. En cas d'indisponibilité d'un tel modèle, une méthode alternative peut être exploitée. Elle est basée sur des solutions approximatives d'écoulement radial unidimensionnel de la MPE et qui suppose une zone de traitement homogène, isotropique et ne prenant pas en compte la variation spatiale de la saturation dans la zone. Elle permet d'estimer les paramètres de conception suivants pour un seul puits :

a) Le débit d'extraction de l'air pour une zone d'influence d'un puits :

Il peut être calculé par l'équation suivante (US.EPA, 1997):

$$Q_g = \frac{\pi r_{inf}^2 b \varphi}{t_{xc}}$$
(I-1)

Où :

- Q_g : débit volumique du gaz extrait à la pression atmosphérique [L³.T⁻¹];
- r_{inf} : rayon de l'influence du puits (ZOI) [L] ;
- b : épaisseur de la zone non saturée [L] ;
- φ : porosité du sol [L³.L⁻³] ;
- t_{xc} : temps requis pour l'échange d'un volume poreux (=1/PVER) [T].

Afin de prédire le débit d'air extrait, les valeurs du rayon d'influence r_{inf} du puits et du taux d'échange de volume poreux PVER sont supposées. Le rayon d'influence d'un puits de SVE va de 4 à 20 m (DiGiulio *et al.*, 2001a). Les PVERs typiques de SVE vont de 300 à 1000 échanges.an⁻¹ (DiGiulio *et al.*, 1992). Dans cette application il est recommandé d'utiliser un PVER d'au moins1000 pour tenir compte de la teneur en gaz inférieure de la zone saturée (asséchée) par rapport à celle de la zone non saturée (US.ACE, 1999).

Ensuite le vide appliqué au puits peut être calculé en se basant sur le débit prévu et la perméabilité du sous-sol estimée. Ici le vide appliqué au puits doit être suffisant pour maintenir une vitesse d'air minimale de 0,01cm.s⁻¹ dans la zone d'influence (ZOI) (DiGiulio *et al.*, 2001b).

A partir de ces estimations, il est donc possible de déterminer le nombre et l'emplacement des puits dans le champ ainsi que le type et la taille du système d'extraction d'air.

b) La distribution de la pression pour un vide donné dans le puits :
 Elle peut être estimée en utilisant la solution pseudo-stationnaire de l'équation d'écoulement unidimensionnel (Julio *et al.*, 2002) :

$$P_{g2} - P_{g1} = \frac{Q_g \,\mu_g}{4 \,\pi \, b \, K} \ln\left(\frac{r_2}{r_1}\right)$$
(I-2)

Où:

 r_1, r_2 : distances radiales [L];

- P_{g_1}, P_{g_2} : pressions de la phase gazeuse à r_1 et r_2 respectivement [M.L⁻¹.T⁻²];
- μ_{g} : viscosité dynamique de la phase gazeuse ~ (1,8.10⁻⁵Pa.s) [M.L⁻¹.T⁻¹] ;
- $\overline{\overline{K}}$: perméabilité intrinsèque [L²].
- c) Le débit d'extraction de l'eau :

Une fois le débit d'air, le vide et le rayon de la zone de traitement estimés, le débit de l'eau extrait peut être estimé à l'aide de l'approximation de Cooper et Jacob (1946) citée par US.ACE (1999) :

(I-3)

$$Z_{w}^{init} - Z_{w} = -\frac{2.3 Q_{w}}{4\pi T_{s}} \log\left(\frac{2.25 T_{s} t_{p}}{r^{2} S_{y}}\right)$$

Dans laquelle :

r : distance radiale [L] ;

 Z_{w}^{init} : hauteur initiale du niveau de la nappe à distance r [L];

 Z_w : hauteur du niveau de la nappe après le rabattement à distance r [L] ;

$Z_w^{init} - Z_w$: rabattement de la nappe à cette distance [L] ;

- Q_w : débit volumique de la phase aqueuse extraite [L³.T⁻¹];
- T_s : transmissivité de la zone saturée [L².T⁻¹];
- *t_p*: temps de pompage[T] ;
- S_y : rendement spécifique de la zone saturée [-].

Nous avons appliqué cette méthode de calcul à trois sols de perméabilités différentes pour une zone de traitement de 1m d'hauteur (correspondant à une frange capillaire de 1 m). Les données sont les suivantes :

- sol de perméabilité modérée : 10⁻¹² m²
- sol de faible perméabilité : 10^{-13} m²
- sol de très faible perméabilité : 10^{-14} m²

La *Figure I-3* montre les résultats obtenus. On remarque que quel que soit le sol, la combinaison de vides appliqués et le rabattement prévu produisent une zone d'assèchement supérieure à 1 m à une distance raisonnable du puits. Il faut noter que dans le cas de distribution du vide pour le sol de très faible perméabilité, la zone de traitement par la SVE/MPE serait très limitée. Il faut donc augmenter le nombre de puits dans les milieux à faible perméabilité pour pouvoir atteindre les objectifs de la MPE.



Figure I-3: Exemples de traitement de trois types de sol par DPE (distribution du vide et la courbe de rabattement a) modérée; b) faible; et c) très faible perméabilité.

I.3.3.e.3. Conception de la MPE avec un rabattement limité (TPE/BioSlurping)

Cette configuration est destinée principalement pour la récupération de la phase liquide non aqueuse légère (PLNAL) surnageante. A cet effet le vide appliqué par la MPE doit être suffisant pour surmonter les forces capillaires dans les pores qui retiennent la PLNAL de manière à forcer l'écoulement de celle-ci vers le puits. Cependant, il est important de ne pas appliquer un vide trop important près du puits. En effet ce vide peut interrompre la continuité de cette phase dans les pores interconnectés qui sont partiellement saturés par la PLNAL. Cette interruption des pores remplis par PLNAL peut se produire à tout moment et l'espace laissé se sature en eau. Dans ces conditions, un puits peut devenir isolé et inefficace pour l'extraction de PLNAL (Ataie-Ashtiani *et al.*, 2001). Ce système est conçu de manière à minimiser la récupération de l'eau, par conséquent, le débit d'extraction de l'eau souterraine est très faible, typiquement inférieure à 7,5 L.min⁻¹ par puits (US. ACE, 1999). Ce débit est fonction du vide appliqué et du rabattement réelle imposé par le tuyau d'aspiration de la pompe à une certaine profondeur de la nappe phréatique. Il est donc important que l'aspiration de la pompe soit positionnée au niveau de la surface de la nappe.

L'emplacement des puits de ce système dans un réseau de MPE est si délicat qu'on ne peut le concevoir qu'en se basant sur des essais sur pilote et par la modélisation de l'écoulement multiphasique. Des modèles préliminaires comme HSSM, OILVOL et BIOVENTINGplus peuvent être consultés au début de la conception d'un tel système pour répondre à des questions, telles que :

- la quantité de PLNAL présente (HSSM et OILVOL),
- le nombre de puits nécessaires pour un tel système (SPILLcad),
- les concentrations approximativement attendues dans le gaz et l'eau extraite et donc le type de système de traitement à envisager (BIOVENTINGplus, BIOSLURP).

I.4. Le sol et ses caractéristiques

Le sol représente la couche superficielle de la croûte terrestre, résultant de la transformation de la roche mère, enrichie par des apports organiques. Ainsi, le sol est défini par un milieu poreux dont le squelette solide, constitué par des minéraux, des composés organiques, ainsi que des pores contenant une phase liquide (l'eau et les solutions) et/ou une phase gazeuse (l'air et les gaz). Tout ça forme des assemblages plus ou moins volumineux et donne au sol sa structure.

I.4.1. Composition du sol

I.4.1.a. La phase solide

Les consistants inorganiques qui composent la majorité de la masse du sol, sont nombreux et leur nature dépond des roches mères dont ils proviennent par désagrégation. En général, les sols sont classés par la distribution de la taille des particules qu'ils renferment. Une norme française **NF EN ISO 14688-2** (AFNOR, 2003) est mise en place pour la classification des sols. Elle est basée sur la taille des particules (la courbe granulométrie de sol) (*cf. Tableau I-8*).

Désignation			Diamètre des grains [mm]
		Bloc grossier	>630
Sols Grossiers		Bloc	200 - 630
		Galet	63 - 200
		Graviers Grossiers	20-63
	Graviers	Graviers Moyens	6,3 – 20
Sola Moyona		Graviers Fins	2,0 - 6,3
Sols Moyens	Sables	Sables Grossiers	0,63 - 2,0
		Sables Moyens	0,2 - 0,63
		Sables Fins	0,063 - 0,2
		Limoneux grossiers	0,02 - 0,063
Sola fina	Limoneux	Limoneux Moyens	0,0063 - 0,02
5015 1115		Limoneux Fins	0,002 - 0,0063
	Argiles	-	≤0,002

Tableau I-8: Classification des sols Selon la norme NF EN ISO 14688-1 (AFNOR, 2003)

Dans la mesure où la plupart des sols naturels sont hétérogènes, plusieurs types de sols peuvent être mélangés ensemble. Les pourcentages relatifs de chaque fraction du sol peuvent être déterminés et un caractère général du sol peut être déduit en utilisant le triangle de texture du sol. La *Figure I-4* représente les limites entre les différents groupes texturaux définis par USDA (2000).



Figure I-4: Triangle de classification textural du sol proposée par USDA (OnePlan, 2000)

Les caractéristiques les plus importantes du sol sont sa capacité de rétention de l'eau et l'adsorption des composés organiques. Les sols argileux sont connus par leur grande surface spécifique, leur permettant de fortes capacités d'échanges cationiques, donc leur forte capacité d'adsorption (Dutheil, 2003). Ils sont aussi connus par leurs propriétés colloïdales et leur forte capacité de rétention d'eau par rapport aux sols sableux et sols limoneux qui ont une capacité d'adsorption négligeable (Chai *et al.*, 2004 ; Walker *et al.*, 1998).

I.4.1.b.La matière organique

La matière organique constitue seulement une petite fraction de l'ensemble des matières dans le sol, mais elle est extrêmement importante. Cette matière organique est constituée d'organismes vivants et des éléments nutritifs qui ont été formés à partir de plantes et d'animaux décomposés.

La matière organique représente environ 0,5% à 10% de la masse du sol et est plus concentrée en surface qu'en profondeur. La teneur en matière organique joue un rôle très important sur l'aptitude du sol à retenir ou à fixer les polluants. L'adsorption des composés organiques dans un sol est principalement liée à la fraction en matière organique du sol (Brusseau *et al.*, 1991 ; Sleep, 1998). Les substances humiques se caractérisent par une forte capacité d'adsorption envers les polluants organiques ce qui rend les opérations de réhabilitation par la MPE/SVE plus lentes et plus coûteuses (Ferraz *et al.*, 2006; Conceic, 2006).



Figure I-5: Schéma de la composition des composés organiques du sol (Sparks, 1995)

I.4.1.c. La phase gazeuse

La phase gazeuse du sol est encore appelée l'atmosphère du sol ; sa composition est souvent voisine de celle de l'air mais peut être très variable dans l'espace et dans le temps. Elle dépend principalement de plusieurs facteurs : la proximité de l'atmosphère, c'est-à-dire la profondeur dans le sol, l'activité biologique et la teneur du sol en eau et en polluant. Ceci est plus important quand les polluants sont instables dans leur phase, c'est-à-dire la dissolution et la volatilisation du polluant comme les composants organiques volatils ou semi volatils retenus dans le sol.

La composition de cette phase est déterminée donc par :

- les échanges avec l'atmosphère par diffusion moléculaire couplée à la volatilisation et à la dissolution ;
- la respiration des organismes vivants ;
- les échanges avec la solution contenue dans le sol ;
- les apports de diverses substances organiques volatiles.

I.4.1.d.La phase liquide

L'eau joue un rôle très important dans tous les phénomènes physiques, chimiques et biologiques qui se produisent dans le sol. A partir du degré de liaison de l'eau aux particules

solides du milieu poreux et de sa mobilité, l'eau dans le sol non saturé est différenciée en quatre catégories :

- eau de constitution : ce sont les molécules d'eau qui forment la partie de la composition chimique des grains du milieu poreux ;
- eau adsorbée ou «hygroscopique» : ce sont les molécules adsorbées à la surface des minéraux, sa quantité correspond à la teneur en phase aqueuse résiduelle θ_{wr} ;
- eau de rétention capillaire ou eau capillaire : ce sont les molécules d'eau retenues dans les microporosités du sol par les forces capillaires. Cette eau est mobilisable par évaporation ou par absorption par les plantes mais ne se déplace pas par l'effet de la gravité (la force gravitationnelle est trop faible par rapport aux forces capillaires);
- eau gravitaire : ce sont les molécules d'eau qui se trouvent en dehors du champ d'attraction des particules. Cette eau remplit les macroporosités du sol. Elle est capable de s'infiltrer et de percoler dans le milieu poreux sous l'effet de la gravité.



Figure I-6: Etat de l'eau dans le sol (Brusturean, 2004)

La teneur en phase aqueuse volumique d'un sol non-saturé varie entre une valeur minimale, la teneur en phase aqueuse résiduelle θ_{wr} et une valeur maximale, la teneur en phase aqueuse à saturation θ_{ws} . Celle-ci est numériquement égale à la porosité, l'ensemble des pores étant alors occupé par la phase du sol. Toutefois, dans les conditions naturelles, un sol ne parvient jamais à saturation totale car il reste toujours des poches d'air occluses où l'air reste piégé.

Lors d'un traitement par extraction multiphasique ou extraction sous vide (MPE/SVE), le flux gazeux dans la zone non saturée se répartit de façon plus homogène dans un sol sec que dans un sol humide où l'eau empêche l'accès du flux gazeux à la porosité. Ainsi l'eau a une influence négative sur le traitement par SVE/MPE (Boudouch, 2009 ; Dutheil, 2003). Dans le même contexte, Conceic (2006) affirme que les fortes teneurs en eau peuvent réduire l'efficacité du procédé par la restriction de l'écoulement de l'air dans les pores du sol et sous l'effet de la dissolution des COVs dans l'eau. D'autre part, la présence d'eau dans les pores du sol diminue

le coefficient de transfert des polluants entre le gaz et la PLNA en réduisant l'aire interfaciale entre ces deux phases (Harper, 1999 ; Yoon *et al.*, 2003).

I.4.2. Propriétés physiques du sol

Parmi les paramètres physiques du sol qui jouent un rôle important lors de sa réhabilitation par un procédé physique comme le SVE ou la MPE, on peut citer : la porosité, la perméabilité, la teneur en matière organique, la saturation en eau, la texture, la granulométrie et la tortuosité.

I.4.2.a. La granulométrie

L'analyse granulométrique permet non seulement d'accéder à la géométrie du milieu mais également de classer quantitativement les milieux poreux et de calculer des paramètres granulométriques. Les dimensions des grains des roches meubles s'étalent sur toute une gamme, en général continue. L'analyse granulométrique a ainsi pour but de trier par tamisage les grains en fourchettes de diamètres conventionnels. Le couple de données granulométriques, diamètre et masse, obtenus après tamisage, est porté sur un graphique semi-logarithmique constituant la courbe granulométrique cumulative. Cette courbe permet de calculer notamment deux paramètres : le diamètre moyen et le diamètre efficace et le coefficient d'uniformité et de courbure.

Le diamètre moyen d_{50} est le diamètre de tamis correspondant au pourcentage de 50% en masse cumulée, et d_{10} est le diamètre efficace correspondant à 10% en masse cumulée.

Le coefficient d'uniformité C_u et le coefficient de courbure C_c sont calculés par les expressions suivantes :

$$C_{u} = \frac{d_{60}}{d_{10}}$$
(I-4)

$$C_c = \frac{d_{30}^{2}}{d_{10} d_{60}}$$
(I-5)

 d_{30} et d_{60} correspondent respectivement à 30% et 60 % de masse cumulée.

Par convention, si C_u est compris entre 1 et 2, la granulométrie est dite uniforme et si C_c est compris entre 1 et 3 le sol est dit bien gradué. Un exemple de courbe granulométrique est représenté dans la *Figure I-7*.



Figure I-7: Courbe granulométrique de deux types différents des sols

I.4.2.b.La porosité



Figure I-8: Représentation schématique des phases du sol

La porosité φ est la propriété du milieu poreux à comporter des vides interconnectés ou non. Elle est exprimée en pourcentage par le rapport du volume des pores V_p [L³] d'un milieu au volume total V_t [L³] de l'échantillon (*cf. Figure I-8*) :

$$\varphi = \frac{V_p}{V_t} = \frac{1 - V_s}{V_t}$$
(I-6)

 V_s étant le volume de la partie solide du milieu poreux.

La porosité totale peut être aussi déduite de la masse volumique sèche apparente du sol $\rho_b = \frac{M_s}{V_t}$ et de la masse volumique des particules du sol $\rho_s = \frac{M_s}{V_s}$:

$$\varphi = 1 - \frac{\rho_b}{\rho_s} \tag{I-7}$$

Pour un sable constitué de grains de quartz ρ_s est de 2,65 g.cm⁻³, tandis que ρ_b est de 1,4 à 1,7 g.cm⁻³.

Il est important de distinguer ici deux types de pores (ouverts et fermés). La porosité ouverte est constituée d'espace porales accessible à l'écoulement alors que la porosité fermée est la partie de l'espace porale qui reste inaccessible à l'écoulement d'un fluide. On distingue la porosité totale; correspondant à la proportion de volumes vides de la matrice et la porosité efficace ; caractérisant la fraction de vide dans laquelle le fluide est mobile (Dridi, 2006).

I.4.2.c. La teneur en phase

La teneur volumique en phase θ_{α} [L³.L⁻³], est le rapport du volume de la phase V_{α} au volume total d'échantillon du sol V_t .

$$\theta_{\alpha} = \frac{V_{\alpha}}{V_{t}}$$
(I-8)

La teneur massique en phase ϖ_{α} [M³.M⁻³], est le rapport de la masse de la phase M_{α} à la masse de sol sec M_s .

$$\boldsymbol{\varpi}_{\alpha} = \frac{\boldsymbol{M}_{\alpha}}{\boldsymbol{M}_{s}} \tag{I-9}$$

La saturation effective \overline{S}_{α} [-], est le rapport du volume de la phase libre (déplaçable) d'un échantillon au volume maximal libre du même échantillon.

$$\overline{S}_{\alpha} = \frac{\theta_{\alpha} - \theta_{\alpha r}}{\varphi - \theta_{\alpha r}} = \frac{S_{\alpha} - S_{\alpha r}}{1 - S_{\alpha r}}$$
(I-10)

 $\theta_{\alpha r}$: teneur volumique résiduelle (irréductible) en phase α [L³.L⁻³];

 S_{α} : saturation en phase α [-], $S_{\alpha} = \frac{\theta_{\alpha}}{\varphi}$;

 $S_{\alpha r}$: saturation résiduelle (irréductible) en phase α [-], $S_{\alpha r} = \frac{\theta_{\alpha r}}{\varphi}$.

I.4.2.d.La tortuosité

La tortuosité du milieu poreux est un facteur prépondérant dans la mesure où il conditionne le coefficient de diffusion effectif dans la phase (gazeuse, aqueuse, PLNA). D'une façon générale, la tortuosité d'un milieu poreux est définie par le rapport entre la longueur de la ligne droite d'un tube tortueux (L) et la longueur du chemin suivi (L_e) (Calvet, 2003) :

$$\tau = \frac{L}{L_e} \tag{I-11}$$

La formulation mathématique du coefficient effectif de diffusion moléculaire $\overline{D}_{\alpha,\beta}^{o}$ de composé β dans la phase α est la suivante (Gaganis *et al.* 2002 ; Katyal *et al.* 1991 ; Lenhard *et al.* 1995):

$$\overline{D}_{\alpha,\beta}^{o} = \theta_{\alpha} \tau_{\alpha} D_{\alpha,\beta}^{o}$$
(I-12)

 τ_{α} : tortuosité du milieu poreux pour la phase α [-] ;

 $D^{o}_{\alpha,\beta}$: coefficient de diffusion moléculaire du composé β dans la phase α [L².T⁻¹].

Plusieurs équations de la tortuosité ont été développées à partir de relations empiriques (Marshall,1959; Millington,1959; Millington *et al.*,1961; Moldrup *et al.*,2000; Penman,1940; Sallam *et al.*,1984) (*cf. Tableau I-9*).

Modèle	Équation
Penman (1940)	$\tau_{\alpha} = 0,66$
Millington (1959)	$\tau_{\alpha} = S_{\alpha}^{\frac{\gamma_{3}}{\alpha}} \varphi^{\frac{1}{3}}$
Marshall (1959)	$\tau_{\alpha} = (S_{\alpha} \varphi)^{\frac{1}{2}}$
Currie (1960)	$\tau_{\alpha} = S_{\alpha}^{\gamma_3} \varphi^{\frac{1}{2}}$
Moldrup <i>et al.</i> (2000) (pour un sol tamisé compacté)	$\tau_{\alpha} = S_{\alpha}^{-1.5} \varphi^{0.5}$

Tableau I-9: Différents modèles empiriques de la tortuosité en milieux poreux non saturé (Dridi,2006)

I.4.2.e. La perméabilité

La perméabilité d'un milieu poreux est la grandeur qui caractérise l'aptitude d'un milieu poreux à se laisser traverser par un fluide, elle s'exprime par une vitesse, elle est définie par la loi de Darcy. La *Figure 1-9* représente l'expérience sur laquelle se base cette loi.



Figure I-9: Loi de Darcy

La loi de Darcy peut se résumer par l'équation suivante : Q_{α}

$$Q_{\alpha} = k_{\alpha} A_{e} \frac{\Delta h_{\alpha}}{L_{m}}$$
(I-13)

Darcy a montré que le débit volumique Q_{α} de la phase α dans un milieu poreux homogène, isotrope monophasique (une seule phase occupe les pores), est proportionnel à la section droite

perpendiculaire à l'écoulement A_e et à la perte de charge aux extrémités de la colonne Δh_{α} et inversement proportionnel à l'épaisseur du milieu L_m . Ce coefficient de proportionnalité k_{α} est appelé la perméabilité de Darcy ou la conductivité hydraulique du milieu poreux.

La perméabilité de Darcy dépend de la masse volumique du fluide ρ_{α} et de sa viscosité μ_{α} , qui dépend de la température, la pression et la variation de la composition du fluide. La perméabilité intrinsèque \overline{K} est un paramètre qui ne dépend que de la caractéristique du milieu poreux (structure, masse volumique) :

$$k_{\alpha} = \frac{\rho_{\alpha} g}{\mu_{\alpha}} \overline{\overline{K}}$$
(I-14)

 μ_{α} : viscosité dynamique de la phase α [M.L⁻¹.T⁻¹].

La loi de Darcy, qui décrit l'écoulement laminaire d'une phase fluide α en milieu poreux, devient :

$$\vec{q}_{\alpha} = \frac{\overline{\vec{K}}}{\mu_{\alpha}} (\nabla P_{\alpha} + \rho_{\alpha} g \nabla z)$$

$$\vec{q}_{\alpha} : \text{ vitesse d'écoulement (vitesse de darcy) [L.T-1] ;}$$
(I-15)

 ∇P_{α} : gradient de la pression de la phase α [M.L⁻¹.T⁻²].

Le rapport de la vitesse de Darcy sur la teneur volumique en phase $\theta_{\alpha} = \varphi S_{\alpha}$, dans l'hypothèse où toute la phase présente dans les pores se déplace, est appelé la vitesse de pore ou vitesse interstitielle \vec{U}_{α} :

$$\vec{U}_{\alpha} = \frac{\vec{q}_{\alpha}}{\theta_{\alpha}} = \frac{\vec{q}_{\alpha}}{\varphi S_{\alpha}}$$
(I-16)

En condition d'écoulement multiphasique (plusieurs phases occupent les pores), l'écoulement de la phase α dépend aussi des teneurs en phases occupantes. Ainsi, un autre terme correctif apparait dans l'équation de Darcy, c'est la perméabilité relative $k_{r\alpha}(\theta_{\alpha})$. Ce terme est fonction du degré de saturation de la phase :

$$\vec{q}_{\alpha} = \frac{\overline{K} k_{r\alpha}(\theta_{\alpha})}{\mu_{\alpha}} \left(\nabla P_{\alpha} + \rho_{\alpha} g \nabla z \right)$$
(I-17)

 $k_{r\alpha}(\theta_{\alpha})$: perméabilité relative de la phase α [-], elle varie entre zéro et l'unité.

La perméabilité intrinsèque peut être estimée à partir de l'analyse granulométrique du milieu poreux en utilisant des équations empiriques reliant la perméabilité intrinsèque \overline{K} à l'analyse granulométrique. Vukovic *et al.* (1992) ont résumé plusieurs méthodes empiriques de différentes études par la formule générale suivante :

$$\overline{\overline{K}} = C_{\varphi} f(\varphi) d_{10}^{2}$$
(I-18)

Où :

 C_{φ} : coefficient de classement de la porosité [-] ;

 $f(\varphi)$: fonction empirique de la porosité [-];

Les paramètres *C* et $f(\varphi)$ dépendent de la méthode d'analyse granulométrique. La porosité φ peut être selon Vukovic et Soro (1992) déduite à partir de la relation empirique du coefficient d'uniformité C_u de la manière suivante:

$$\varphi = 0.255 \ (1 + 0.83^{C_u}) \tag{I-19}$$

Le *Tableau I-10* résume quelques modèles empiriques pour déduire la perméabilité d'un milieu poreux à partir d'analyse granulométrique.

 Tableau I-10: Modèles empiriques pour déduire la perméabilité de l'analyse granulométrique (Odong, 2013)

Modèle	Équation	Contraints
Hazen (1892)	$\overline{\overline{K}} = 6 \times 10^{-4} (1 + 10(\varphi - 0.26)) d_{10}^{2}$	$0,1 \text{ mm} < d_{10} < 3 \text{ mm}$
Kozeny-Carman (Carman. 1937 ; Kozeny, 1927)	$\overline{\overline{K}} = 8.3 \times 10^{-3} \left(\frac{\varphi^3}{1 - \varphi^2}\right) d_{10}^{2}$	d_{10} < 3 mm hors Argile
Breyer (Odong, 2013)	$\overline{\overline{K}} = 6 \times 10^{-4} \log(\frac{500}{C_u}) d_{10}^2$	$C_u << 20$ 0,06 mm $< d_{10} <$ 0,6 mm
Slitcher (Carrier, 2003)	$\overline{\overline{K}} = 10^{-2} \varphi^{3,287} d_{10}^{2}$	0,01mm <d 5="" <="" mm<="" td=""></d>
USBR (Cheng et al., 2007)	$\overline{\overline{K}} = 4,8 \times 10^{-4} d_{20}^{0,3} d_{10}^{2}$	<i>C</i> _{<i>u</i>} <5
I.4.2.f.La Capillarité

La courbure de l'interface entre deux phases dépend des espaces inter-grains et des propriétés des fluides présents. La présence de cette courbure interfaciale est au fait que l'énergie libre entre ces phases devrait être minimale (Leverett,1941). La pression capillaire microscopique est la différence de pression à l'interface entre les molécules de la phase non mouillantes/phase mouillantes (nM/M) et elle est responsable des changements intervenant sur la courbure de l'interface (Reeves *et al.*,1996).

Un tube capillaire cylindrique est pris comme le modèle le plus simple pour l'attraction capillaire dans le sol. Quand un tube capillaire est mis en contact avec une surface liquide (par exemple : eau), l'angle de contact statique entre le matériau du tube et de l'eau est établi. Ainsi la tension interfaciale sur le périmètre du tube devient une force ayant une composante verticale qui tire l'eau vers le haut. La montée capillaire se poursuit jusqu'à ce que la force verticale due à la tension superficielle soit égale au poids de la colonne d'eau, comme il est illustré sur la *Figure I-10*.



Figure I-10: Bilan des forces pour la montée de la phase mouillante dans un tube capillaire

L'équation de l'équilibre (loi de Laplace) est :

$$h_{c} 0,5\pi d_{p}^{2} g \rho_{w} = \sigma_{mw-w} \pi d_{p} \cos\phi$$
 (I-20)

Ainsi :

(I-21)

$$h_c = \frac{4\sigma_{nw-w}\cos\phi}{g\,\rho_w\,d_P}$$

Où :

 h_c : montée capillaire de la phase mouillante [L] ;

- d_{P} : diamètre du tube capillaire ou diamètre de pore [L] ;
- ϕ : angle de contact [rad] ;
- $\sigma_{\rm \tiny nw-w}$: tension interfaciale phase non mouillante/phase mouillante [M.T⁻²] ;
- ρ_w : masse volumique de la phase mouillante/ phase aqueuse [M.L⁻³].

Corey (1977) a étudié dans ses analyses mathématiques de l'équation de Laplace le cas de la présence de deux phases non miscibles dans le milieu poreux, en équilibre capillaire et isotherme. Il a montré que la pression capillaire est la même sur toutes les interfaces qui sont situées à la même hauteur, et que la pression capillaire macroscopique est la différence entre la pression de la phase mouillante et la pression de la phase non mouillante sur cette hauteur :

$$P_{c} = P_{w} - P_{nw} = (\rho_{w} - \rho_{nw}) g h_{c} = \frac{4\sigma_{nw-w}}{d_{p}}$$
(I-22)

Corey (1977) a également montré que le changement de la courbure moyenne de l'interface lié à la pression capillaire macroscopique est accompagné par un changement de saturation des phases. La saturation de la phase mouillante diminue tandis que celle de la phase non mouillante augmente avec la hauteur (*h*). Ceci peut être visualisé par une coupe transversale dans un pore, comme le montre la *Figure I-11*.



Figure I-11: Coupe transversale dans un pore avec différentes saturations des phases (Corey, 1977)

L'augmentation de la pression capillaire à l'interface nM/M de P_{c1} à P_{c2} soit par l'augmentation de la pression de la phase non mouillante ou la diminution de la pression de la phase mouillante, conduit au retrait de l'interface nM/M à une position où sa courbure augmente. Ainsi la saturation de la phase non mouillante augmente tandis que la saturation de la phase mouillante diminue. Cela clarifie la relation directe entre les saturations et la pression capillaire.

I.4.2.f.1. La relation Pression capillaire-Saturation (*P_c-S*)

La relation entre la pression capillaire et la saturation en fluide mouillant est une caractéristique importante d'un milieu poreux (Hillel,1980). Cette caractéristique est appelée la courbe de rétention (souvent appelée la "courbe caractéristique" du sol). Ici quand on parle de la courbe de rétention d'un sol, on considère un sol avec un système diphasique, où la phase mouillante est l'eau et la phase non mouillante est l'air.

Deux types de modèles qui permettent de paramétrer cette relation (P_c -S) peuvent être définis ; ceux à fondement physique et ceux à fondement mathématique.

Les modèles physiques utilisent directement certaines caractéristiques physiques du sol (granulométrie, masse volumique etc.) pour estimer les propriétés hydrodynamiques. Les modèles les plus connus sont le modèle Arya et Paris (1981), le modèle d'Assouline (1998) et le modèle BEST (Doherty *et al.*,2014). Schaap *et al.* (2001) ont développé un logiciel ROSETTA pour estimer les paramètres hydrodynamiques du sol à partir des caractéristiques du sol.

Par contre, les modèles mathématiques se basent sur des relations empiriques à partir d'expériences réalisées en laboratoire sur le milieu poreux diphasique. Les modèles les plus connus sont le modèle Brooks-Corey (1964) et celui de van Genuchten (1980).

Leverett (1941) a suggéré que les relations(P_c -S) d'un système diphasique (eau-air) pourraient être étendues aux systèmes multiphasique. Leverett suppose que la saturation liquide totale $S_l = S_o + S_w$ est fonction de la courbure interfaciale à l'interface liquide total /gaz. Elle est indépendante de la composition de fluides composant la phase liquide totale dans le système. En utilisant cette hypothèse et en considérant que la mouillabilité des phases diminue dans l'ordre: eau>PLNA>air, Parker *et al.* (1987) ont étendu le modèle de van Genuchten à un système triphasique en ajoutant deux paramètres d'échelle β_{go} , β_{ow} . Ces paramètres dépendent de la tension interfaciale PLNA/phase aqueuse σ_{ow} et phase gazeuse/PLNA σ_{go} .

Le *Tableau I-11* résume quelques modèles mathématiques pour déduire la saturation effective pour un système diphasique : $S_w + S_{nw} = 1$ et triphasique $S_o + S_w + S_g = 1$.

Auteur	Modèle	Paramètres
Système diphasique		
Gardner (1958)	$\overline{S}_{w}(h_{c}) = \frac{\theta_{w} - \theta_{wr}}{\theta_{ws} - \theta_{wr}} = 1/(1 + \alpha_{g} h_{c}^{n_{g}})$	α_g , n_g : paramètres du modèle de Gardner
Brooks et al.(1964)	$\overline{S}_{w}(h_{c}) = \frac{\theta_{w} - \theta_{wr}}{\theta_{ws} - \theta_{wr}} = (h_{c} / h_{s})^{\lambda}$	h_s : succion d'entrée d'air λ : indice de distribution de la taille des pores
Brutsaert (1966)	$\overline{S}_{w}(h_{c}) = \frac{\theta_{w} - \theta_{wr}}{\theta_{ws} - \theta_{wr}} = 1 / \left[1 + (h_{c} / \alpha_{b})^{n_{b}} \right]$	α_b et n_b sont les paramètres du modèle de Brutsaert.
van Genuchten (1980)	$\overline{S}_{w}(h_{c}) = \frac{\theta_{w} - \theta_{wr}}{\theta_{ws} - \theta_{wr}} = \left[1 + (\alpha_{vg} h_{c})^{n_{vg}}\right]^{-m_{vg}}$ Genuchten-Mualem $m_{vg} = 1 - \frac{1}{m_{vg}}$ (Mualem, 1976)	α_{vg} , n_{vg} et m_{vg} sont les paramètres du modèle de van Genuchten.
	Genuchten-Burdine $m_{vg} = 1 - \frac{2}{n_{vg}}$ (Burdine, 1953)	
Fredlund et al.(1994)	$\theta_w(h_c) = \theta_s C(h_c) \left[\ln(e + (\frac{h_c}{\alpha_f})^{n_f} \right]^{m_f}$ $C(h_c) = 1 - \frac{\ln(1 + \frac{h_c}{h_f})}{\frac{1}{n_f}}$	α_{f}, n_f et m_f sont les paramètres du modèle de Fredlund. h_r : succion correspondant à la teneur résiduelle
	$\ln(1 + \frac{10^6}{h_r})$	
Système triphasique		
	$\overline{S}_{w}^{gow} = \begin{bmatrix} \left(1 + \left \beta_{wa} \alpha_{vg} h_{ow}\right ^{n_{vg}}\right)^{m_{vg}} & ;h_{ow} > 0\\ 1 & ;h_{ow} \le 0 \end{bmatrix}$	 w: phase aqueuse o: phase PLNA g: phase gazeuse l: phase liquide totale
Parker et <i>al</i> . (1987)	$\overline{S}_{l}^{gow} = \begin{bmatrix} \left(1 + \left \beta_{go} \alpha_{vg} h_{go} \right ^{n_{vg}} \right) & ;h_{go} > 0 \\ 1 & ;h_{go} \le 0 \end{bmatrix}$	β_{go} . β_{ow} : coefficients de finse a l'échelle d'un système diphasique à un système triphasique
	$\overline{S}_{w}^{gow} = \frac{S_{w}^{goa} - S_{wr}}{1 - S_{wr}}$	$\beta_{go} = \frac{\sigma_{gw}}{\sigma_{go}} \cdot \beta_{ow} = \frac{\sigma_{gw}}{\sigma_{ow}}$
	$\overline{S}_{l}^{gow} = \frac{S_{l}^{goa} - S_{wr}}{1 - S_{wr}}$	$\sigma_{gw}, \sigma_{go}, \sigma_{oa}$ tensions interfaciale entre les phases
	$S_l^{gow} = S_w^{gow} + S_o^{gow}$	

Tableau I-11: Expressions des modèles de corrélation (P_c-S)

I.4.2.f.2. La relation Saturation-Perméabilité Relative (S-k_r)

La courbe de conductivité hydraulique est en général estimée indirectement en utilisant des modèles paramétriques. La plupart des modèles sont basés sur l'hypothèse qu'il existe une relation théorique entre la taille des pores et la pression capillaire. La conductivité non-saturée est alors estimée à partir de la courbe de rétention hydraulique.

Le *Tableau I-12* résume quelques modèles mathématiques pour déduire la relation saturation effective-perméabilité relative(S- k_r).

Auteur	Modèle	Paramètres
Système diphasique		
Burdine (1953)	$k_{rw}(\overline{S}_{w}) = \overline{S}_{w}^{2} \left[\frac{\int_{0}^{\overline{S}_{w}} \frac{\partial \overline{S}_{w}}{h_{c}^{2}(\overline{S}_{w})}}{\int_{0}^{\overline{1}} \frac{\partial \overline{S}_{w}}{h_{c}^{2}(\overline{S}_{w})}} \right]$	
	$k_{mw}(\overline{S}_w) = (1 - \overline{S}_w)^2 \begin{bmatrix} \overline{S}_w & \partial \overline{S}_w \\ 0 & \overline{h_c^2(\overline{S}_w)} \\ \frac{1}{\int_0^1 \frac{\partial \overline{S}_w}{\overline{h_c^2(\overline{S}_w)}} \end{bmatrix}$	
Mualem (1976)	$k_{rw}(\overline{S}_w) = \overline{S}_w^{l_m} \left[\frac{\overline{S}_w}{0} \frac{\partial \overline{S}_w}{h_c(\overline{S}_w)}}{\int \frac{1}{0} \frac{\partial \overline{S}_w}{h_c(\overline{S}_w)}} \right]^2$	l_m ; paramètre de Mualem $l_m=0,5$
	$k_{mw}(\overline{S}_w) = (1 - \overline{S}_w)^{l_m} \begin{bmatrix} \overline{S}_w & \partial \overline{S}_w \\ 0 & h_c(\overline{S}_w) \\ \frac{1}{\int} \frac{\partial \overline{S}_w}{h_c(\overline{S}_w)} \end{bmatrix}^2$	
Gardner (1958)	$k_{nw}(h_{c}) = e^{-\alpha_{gm} \cdot h_{c}}$ $k_{mw}(h_{c}) = (1 - e^{-\frac{1}{2}\alpha_{gm} \cdot h_{c}})^{2}$	α_{gm} : Paramètre du modèle Garden-Mualem
Brooks-Burdine	$k_{nw}(\overline{S}_w) = \overline{S}_w^{(3+2/\lambda)}$ $k_{mw}(\overline{S}_w) = (1 - \overline{S}_w)^2 (1 - \overline{S}_w)^{(1+2/\lambda)}$	
Brooks-Mualem	$k_{rw}(\overline{S}_w) = \overline{S}_w^{l+2+2/\lambda}$ $k_{rw}(\overline{S}_w) = (1 - \overline{S}_w)^l (1 - \overline{S}_w^{1+1/\lambda})^2$	
Brutsaert (1966)	$k_{nw}(\overline{S}_{w}) = \overline{S}_{w}^{2} \left[1 - (1 - \overline{S}_{w})^{1 - 2/n_{bb}} \right]$ $k_{mw}(\overline{S}_{w}) = (1 - \overline{S}_{w})^{3 - 2/n_{bb}}$	<i>n</i> _{bb} est un paramètre du modèle Brutsaert- Burdine.

Tableau I-12: Expressions des modèles de corrélation S-k_r

van Genuchten-Burdine van Genuchten- Mualem	$k_{rw}(\overline{S}_{w}) = \overline{S}_{w}^{2} \left[1 - (1 - \overline{S}_{w}^{1/m_{rg}})^{m_{rg}} \right]$ $k_{rwv}(\overline{S}_{w}) = (1 - \overline{S}_{w})^{2} \left[1 - \overline{S}_{w}^{1/m_{rg}} \right]^{m_{rg}}$ $k_{rw}(\overline{S}_{w}) = \overline{S}_{w}^{l} \left[1 - (1 - \overline{S}_{w}^{1/m_{rg}})^{m_{rg}} \right]^{2}$ $k_{rmw}(\overline{S}_{w}) = (1 - \overline{S}_{w})^{l} \left[1 - \overline{S}_{w}^{1/m_{rg}} \right]^{2m_{rg}}$	Burdine $m_{vg} = 1 - \frac{2}{n_{vg}}$ Mualem $m_{vg} = 1 - \frac{1}{n_{vg}}$
Système triphasique		
Kaluarachchi <i>et</i> al.(1992)	$k_{rw} = \overline{S}_{u}^{l_{k}} \left(1 - \left(1 - S_{u}^{1/m_{k}} \right)^{m_{k}} \right)^{2}$ $k_{ro} = \left(\overline{S}_{l} - \hat{S}_{w} \right)^{l_{k}} \left(\left(1 - \hat{S}_{w}^{1/m_{k}} \right)^{1/m_{k}} - \left(1 - \overline{S}_{l_{k}}^{1/m} \right)^{m_{k}} \right)^{2}$ $k_{rg} = \left(1 - \overline{S}_{l} \right)^{l_{k}} \left(1 - \left(1 - \overline{S}_{l}^{1/m_{k}} \right)^{m_{k}} \right)^{2}$	<i>l_k, m_k</i> sont les paramètres du modèle.

L'écoulement d'un gaz a une particularité par rapport à celui des liquids, Klinkenberg (1941) a montré que, pour les matériaux fins (Høier et *al.*, 2009), le glissement des molécules de gaz sur les surfaces solides entraîne une hausse des débits d'écoulement de gaz par rapport à ceux prévus par la loi de Darcy. Ce phénomène est appelé l'effet Klinkenberg et il est représenté par la relation suivante :

$$\overline{\overline{K}} = \overline{\overline{K}}_{\infty} \left(1 + \frac{b_k}{P_g} \right)$$
(I-23)

Où :

 \overline{K}_{∞} : perméabilité à une très grande pression de la phase gazeuse [L²];

 b_k : paramètre empirique du modèle Klinkenberg [M.L⁻¹.T⁻²];

 P_{g} : pression de la phase gazeuse [M.L⁻¹.T⁻²].

Baehr *et al.* (1991) démontrent que l'effet Klinkenberg peut être négligé pour les matériaux granulaires dont la dimension des grains est supérieure à 0,001 mm.

I.4.2.f.3. L'hystérésis

En raison de la complexité des pores, la séquence de drainage des pores n'est pas la même que celle du mouillage, mais elle dépend de l'historique des séquences drainage/ imbibition (Leverett,1941). Ainsi la courbe de pression capillaire a un effet d'hystérésis (*cf. Figure I-12*). Selon Dassargues (1996) ce phénomène d'hystérésis est dû à plusieurs facteurs:

 la présence de la phase non mouillante piégée dans les pores en quantité variable en séquence d'imbibition;

- l'angle de contact varie selon la direction dans laquelle le ménisque se déplace. Il dépend également du fait que le milieu étais déjà mouillé auparavant ou non ;
- l'effet de la distribution irrégulière de la dimension des pores faisant en sorte que la phase mouillante circule d'un passage étroit vers un passage plus large (l'effet de bouteille d'encre).



Figure I-12: Courbes de pression capillaire – saturation: effet d'hystérésis (Benremita, 2002)

Le Tableau I-13 résume quelques modèles mathématiques concernant l'hystérésis.

Auteur	Modèle	Paramètres
Scott <i>et al.</i> (1983)	$S_{w}^{*} = \frac{S_{w\Delta} - S_{wr}(1 - \overline{S}_{w}^{dr}(P_{mw-w}, \Delta))}{\overline{S}_{w}^{dr}(P_{mw-w}, \Delta)}$ $S_{wr}^{*} = \frac{S_{w\Delta} - S_{ws}}{1 - \overline{S}_{w}^{im}(P_{mw-w}, \Delta)}$	dr: indique drainage im: indique imbibition S_w^* remplace S_w en séquence drainage S_{wr}^* remplace S_{wr} en séquence imbibition
Lenhard et al.(1989)	$\begin{split} \widetilde{S}_{w}(P_{mw-w}) &= \frac{(\widetilde{S}_{w}^{im}(P_{mw-w}) - \widetilde{S}_{w}^{im}(P_{mw-w,\Delta}))(\widetilde{S}_{w\Delta}^{dim} - \widetilde{S}_{w\Delta}^{ind})}{\widetilde{S}_{w}^{i}(P^{dim}_{mw-w,\Delta}) - \widetilde{S}_{w}^{im}(P^{imd}_{mw-w,\Delta})} + \widetilde{S}_{w\Delta}^{id} \\ o\hat{u} \overline{S}_{w} &= \overline{S}_{w} + \frac{S_{mwt}}{1 - S_{wr}} \end{split}$	<i>dim</i> : séquence drainage-imbibition <i>imd</i> : séquence imbibition-drainage S_{mvt} : saturation en NM piégé \tilde{S}_{w} : remplace \bar{S}_{w} en VG

Tableau I-13: Modèles d'hystérésis

La complexité de ces phénomènes et le manque de données disponibles habituellement pour les caractériser conduisent le plus souvent à négliger ce phénomène ou à le simplifier dans la plupart des modèles d'écoulement multiphasique (BRGM,2012).

I.5. Les composés organiques volatils dans le sous-sol

I.5.1. Introduction

Le BRGM définie la pollution des sous-sols selon trois grandes familles de polluants (Lemière *et al.*, 2001) :

- polluants organiques : hydrocarbures, solvants, BTEX, Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP), Polychlorobiphényles (PCB);
- polluants minérales : cyanures, nitrates, sulfates et métaux lourds (Cr, Co, Si, Mo...etc.);
- polluants phytosanitaires : pesticides, herbicides, insecticides, tensioactifs militaires.



Figure I-13: Les principaux polluants constatés sur les sites inventoriés de France (BASOL,2014)

Dans cette étude on s'intéresse en particulier à la pollution des sous-sols par des composés organiques qui représentent selon l'inventaire BASOL plus de 50% des sites pollués en France. D'autant plus que l'extraction multiphasique ou l'extraction sous vide, objectifs de cette étude, sont des techniques adaptées à la réhabilitation des sites pollués par des composés organiques volatiles COVs et semi volatile SCOVs.

Une fois que le polluant organique arrive dans le sous-sol, et en fonction de ses propriétés physico-chimique, il peut se retrouver sous forme :

- d'une phase gazeuse constituée d'air et de vapeurs de produits organiques ;
- d'une phase liquide aqueuse dissoute dans les pores ;
- d'une phase solide adsorbée sur les particules du sol ;
- d'une Phase Liquide Non Aqueuse (PLNA) dite phase libre.

Schématiquement, la répartition de ces phases dans le sous-sol peut être schématisée par la *Figure I-14* ci-dessous.



Figure I-14: Les différentes phases d'une pollution organique dans le sous-sol contaminé (Dutheil, 2003)

Les principales propriétés intrinsèques des polluants organiques influant sur leurs comportements dans le sous-sol sont décrites dans le *Tableau I-14*.

Paramètre	Symbole	Unité	Critères (à 20– 25°C)	Interprétation	Incidence
Solubilisation	-	-	-	-	-
Solubilité dans phase			$S_{w,\beta} < 150$	⇒Insoluble	Une forte solubilité constitue un facteur
aqueuse	$S_{\scriptscriptstyle w,eta}$	$[mg.L^{-1}]$	$150 < S_{w,\beta} < 10^4$	⇒Peu soluble à soluble ⇒Très soluble	aggravant des
X7 1 (11 (1			$S_{w,\beta} > 10$		r
Volatilisation					T. (1 1
Pression de vapeur saturante	$P^o_{g,eta}$	[Pa]	$P_{g,\beta}^o < 133$ $P^o > 133$	⇒Non volatil ⇒Volatil	dont le polluant migre
			$T_{g,\beta} > 155$ $T_{e,\beta} < 80$		libère par volatilisation
Point d'ébullition	$T_{e,\beta}$	[°C]	$80 \le T_{e,\beta} < 200$	⇒indicatif	propriété est
			$T_{e,\beta}\!\geq\!200$		pour évaluer
			$K_{H_{\beta}} < 100$	\Rightarrow Faiblement volatil	l'exposition par
Constante de Henry	$K_{H_{eta}}$	[Pa. m ³ .mol ⁻¹]	$100 \leq K_{H_{\beta}} < 500$	\Rightarrow Volatil	issues du sous-sol
	-		$K_{H_{\beta}} \ge 500$	⇒ Très volatil	
Migration verticale	des vapeur	:S			X (1 1 1)
Masse volumique du mélange saturé de (air+composé β)	$rac{ ho_{g,eta}}{ ho_{air}}$	[-]	$ ho_{g,\beta} / ho_{air} < 1$ $ ho_{g,\beta} / ho_{air} \ge 1$	 ⇒ Mouvement ascendant ⇒ Accumulation en surface de la nappe 	dont le polluant migre dans la ZNS. dont il se libère par volatilisation naturelle. Cette propriété est notamment importante pour évaluer l'exposition par inhelation de uppour
					issue du sous-sol
Migration verticale	du fluide				
Masse volumique de la phase PLNA	$ ho_{o}$	[kg.m ⁻³]	$\rho_o < 1000$ $\rho_o > 1000$	 ⇒ Flottant au toit de la nappe ⇒ Écoulement vertical 	PLNAL ou PLNAD (Phase Liquide Non Aqueuse Dense)
			$P_0 = 1000$	→ Dhua fluida qua l'aqu	Influent sur les vitesses
			μ_o < 0,9	⇒ Fluidité de l'eau	de migration de la
Viscosité	μ_o	[cP]	$0.9 \le \mu_o < 2$	⇒ Fluidité de l'huile	phase libre et sur le degré de saturation de
			$\mu_o \ge 2$	ou moindre	la phase résiduelle
Piegeage (par adsor	ption) dan	s la phase s	solide		Influe one la stantion
Coefficient de partage	K .		$\log K_{_{ow,\beta}} < 2$	⇒ Compose hydrophile	d'un composé par la
Coefficient de partage	$K_{oc,\beta}$	$\log K_{ow,\beta}$	$2 \leq \log K_{_{ow,\beta}} < 4$	⇒ Hydrophile à hydrophobe	sols sur sa mobilisation
(organique/eau)	$=0,63K_{ow,\beta}$		$\log K_{ow,\beta} \ge 4$	⇒ Composé hydrophobe	d'infiltration

Tableau I-14: Critères	d'appréciation	du comportement	t des produits	organiques	(Lemière et al.,	2001)
------------------------	----------------	-----------------	----------------	------------	------------------	-------

1.5.2. Le devenir de polluant organique PLNA dans le sous-sol

Lors du déversement d'un polluant organique immiscible dans le milieu poreux, la PLNA migre verticalement sous l'action de la gravité. Cette migration verticale est accompagnée d'un étalement latéral du fait des forces capillaires générées dans le sous-sol. Elle laisse derrière elle des traces sous forme de gouttelettes huileuses piégées dans les pores constituant une zone à saturation résiduelle. Cette zone est enveloppée d'un panache gazeux formé par la vaporisation des composants les plus volatils (Mercer *et al.*,1990) (*cf. Figure I-15*). Ces vapeurs se trouvent en équilibre avec les composés dissous dans l'eau résiduelle, où sont transférés vers l'atmosphère par diffusion moléculaire.

Cet écoulement s'arrête si le volume de polluant est insuffisant pour maintenir une saturation supérieure à la saturation résiduelle.

Physiquement ce mouvement est contrôlé par deux forces principales : la gravité et la capillarité, ainsi que par la quantité de polluant déversée, ses propriétés pétrophysiques (densité, viscosité, tension interfaciale) et par les caractéristiques du milieu poreux (porosité, texture, teneur en PLNA) (US.EPA, 1991).

Sous l'effet des hétérogénéités structurales ou texturales du milieu telles que la présence de fractures ou l'existence des zones à perméabilités différentes, les polluants organiques s'accumulent sous forme de flaques au-dessus des zones les moins perméables et migrent latéralement jusqu'à atteindre les bords de la couche où une pression d'entrée suffisante leur permet de vaincre les forces capillaires qui s'opposent à leur migration verticale (Cotel,2008).

Lorsque le volume du produit déversé dépasse la capacité de rétention de la zone non saturée, le polluant atteint le toit de la frange capillaire. Une fois la pression hydrostatique développée dépasse la pression d'entrée du milieu, le polluant déplace la frange capillaire et continue à migrer verticalement tant que la capacité de rétention est dépassée jusqu'à arriver à la surface de la nappe (saturation en eau 100%) (Mercer *et al.*,1990). En fonction de la densité relative, la PLNAL flotte sur la nappe et forme une lentille surnageant à la surface de la nappe. A ce titre plusieurs équations sont développées pour estimer l'épaisseur maximale de la lentille surnageant de PLNAL, on peut citer :

Équation de Pantazidou et al. (1993)

$$h_{max} = \frac{1}{\rho_o g} \left[\frac{4 \left(\sigma_{ow} + \sigma_{go} \right)}{d_p} - \rho_w g h_w \right]$$
(I-24)

Équation de Schroth et al. (1995)

$$h_{\max} = \frac{4\left(\sigma_{gw} - \sigma_{ow} - \sigma_{go}\right)}{d_p g \left(\rho_w - \rho_o\right)}$$
(I-25)

Où:

 h_{max} : épaisseur maximale de la lentille PLNAL [L];

 h_w : élévation du bas de lentille du niveau de l'eau ;

 d_p : diamètre de pore [L] $d_p = 0.42 d_{50}$ selon Ng *et al.* (1978).

Cependant, la PLNAD (Dense) dépasse la surface de la nappe et une fois atteint la couche imperméable, le polluant va migrer dans le sens horizontal et s'y répandre sous forme de panache au fond de la nappe. En outre il est constaté à ce titre que la saturation résiduelle est nettement plus importante en milieu saturé qu'en zone non-saturée (Benremita,2002). Pour un sable moyen saturé de type H_2F , la saturation résiduelle est de l'ordre de 0,11- 0,12 en trichloroéthène (TCE) contre 0,04-0,05 pour le même sable non saturé (Mercer *et al.*,1990).

Dans la nappe, le corps d'imprégnation se dissous lentement à cause de sa faible solubilité ; le soluté est alors véhiculé par la nappe et forme un panache de polluant sur des superficies non négligeables (Hofstee *et al.*,1998) (*cf. Figure I-15*).



Figure I-15: Coupe longitudinale d'un sol pollué par un PLNAL (USGS,2014)

1.5.3. Mécanisme de transport des polluants dans le sous-sol

Le transport des polluants dans le sous-sol peut être affecté par plusieurs processus de différentes natures chimiques, biologiques ou physiques. Dans cette étude, nous nous concentrons sur le transport des composés organiques dans les deux zones du sol (ZNS et ZS) par les processus physiques ou dits mécaniques dominants.

Les principaux mécanismes de transport pour un composé β dans la phase donnée α (aqueuse, gazeuse, PLNA) sont la convection (ou advection) et la dispersion hydrodynamique (constituée de la diffusion moléculaire et de la dispersion mécanique). Ainsi le flux total d'un soluté est la somme des flux dus à ces trois processus. Il est exprimé par :

$$F_{\alpha,\beta}^{T} = F_{\alpha,\beta}^{0} + F_{\alpha,\beta}^{d} + F_{\alpha,\beta}^{c}$$
(I-26)

 $F_{\alpha,\beta}^{T}$: flux total du composé β dans la phase α [M.L⁻².T⁻¹];

 $F_{\alpha,\beta}^0$, $F_{\alpha,\beta}^d$ et $F_{\alpha,\beta}^c$: respectivement les flux du composé β transportés par la diffusion moléculaire, la dispersion mécanique et la convection dans la phase α [M.L⁻².T⁻¹].

I.5.3.a. Diffusion moléculaire

La diffusion moléculaire est un résultat du mouvement des molécules chimiques sous l'effet de la concentration. Ce processus fait déplacer un composé d'un endroit avec une concentration plus élevée à un autre endroit avec une concentration plus faible. Le transport diffusif peut être décrit par la loi de Fick :

$$F^{0}_{\alpha,\beta} = -\overline{D}^{o}_{\alpha,\beta} \nabla C_{\alpha,\beta} = -\tau_{\alpha} D^{o}_{\alpha,\beta} \nabla C_{\alpha,\beta}$$
(I-27)

 $C_{\alpha,\beta}$: concentration du composé β dans la phase α [M.L⁻³].

La diffusion moléculaire est le mécanisme de transport le plus important dans les zones à faible perméabilité ou isolées. Les zones à faible perméabilité qui ont accumulé des polluants organiques sur de longues périodes (particulièrement pour les composés à faible solubilité) peuvent se comporter à long terme comme des sources secondaires de polluants.

I.5.3.b.Dispersion mécanique (cinématique)

La dispersion mécanique ou dispersion cinématique est un mécanisme de mélange et dissémination dû à l'hétérogénéité des vitesses d'écoulement du fluide dans le milieu poreux. L'effet de la dispersion mécanique sur le transport du polluant étant similaire à l'effet de la diffusion moléculaire. Le flux dispersif peut être décrit par l'intermédiaire d'une loi similaire à la loi de Fick :

$$F_{\alpha,\beta}^{d} = -D_{\alpha,\beta}^{d} \nabla C_{\alpha,\beta}$$
(I-28)

 $D_{\alpha\beta}^{d}$: tenseur de coefficient de dispersion cinématique de composé β dans la phase α [L².T⁻¹].

Le coefficient de dispersion mécanique est proportionnel à la vitesse effective de la phase α . Il est décrit par l'équation :

$$D_{\alpha\beta}^{d} = \alpha_{T} \left| \vec{U}_{\alpha} \right| \delta_{ij} + (\alpha_{L} - \alpha_{T}) \frac{U_{\alpha i} U_{\alpha j}}{\left| \vec{U}_{\alpha} \right|}$$
(I-29)

 α_L : dispersivité longitudinale [L] ;

- α_T : dispersivité transversale [L] ;
- $U_{\alpha i}, U_{\alpha i}$: composantes de la vitesse de pore pour la phase α dans la direction *i et j* [L.T⁻¹];
- $\left| \vec{U}_{\alpha} \right|$: valeur absolue de la vitesse de pores pour la phase α [L.T⁻¹] ;
- δ_{ii} : symbole de Kroncker (égal à 1 si i=j, et 0 dans le cas contraire).

La dispersivité est une propriété importante du transport des polluants, mais il est assez difficile de la mesurer expérimentalement. Elle peut être estimée à partir des courbes de percée des traceurs en utilisant les solutions analytiques de l'équation de conservation de masse (Gujisaite, 2008).

Ainsi le coefficient général qui regroupe les deux processus (diffusion moléculaire et dispersion cinématique) sous le nom dispersion hydrodynamique devient :

$$\overline{\overline{D}}_{\alpha,\beta} = \tau_{\alpha} D_{\alpha,\beta}^{o} \delta_{ij} + \alpha_{T} \left| \vec{U}_{\alpha} \right| \delta_{ij} + (\alpha_{L} - \alpha_{T}) \frac{U_{\alpha i} U_{\alpha j}}{\left| \vec{U}_{\alpha} \right|}$$
(I-30)

La tortuosité du milieu poreux pour la phase α calculée par une équation empirique (*cf. I.4.2.d*).

Une relation empirique liant le coefficient de dispersion et le nombre de Péclet *Pe* a été établie par Pfunnkuch (1963) pour connaître le régime d'écoulement dans l'aquifère. En fonction de ce nombre, cinq régimes d'écoulement sont mis en évidence, correspondant à des répartitions variables entre les rôles joués par la diffusion moléculaire et la dispersion cinématique, et pour chacun d'eux, une relation empirique entre $D_{\alpha\beta}^o$, $D_{\alpha\beta}^d$ et $Pe_{\alpha,\beta}$.

Selon la nature du coefficient de diffusion qui apparaît, un nombre de Péclet est défini. Ainsi on distingue :

Le nombre de Péclet de diffusion moléculaire :

$$Pe_{\alpha,\beta(mol)} = \frac{\left|\vec{U}_{\alpha}\right| d_{50}}{D_{\alpha,\beta}^{o}}$$
(I-31)

Le nombre de Péclet de dispersion hydrodynamique :

$$Pe_{\alpha,\beta(dyn)} = \frac{\left|\vec{U}_{\alpha}\right| d_{50}}{D_{\alpha,\beta}^{d}}$$
(I-32)

Thèse, INSA de Lyon, 2015



Figure I-16: Représentation des différents régimes d'un déplacement miscible d'après (Pfunnkuch, 1963)

I.5.3.c. Convection (advection)

La convection est définie comme le processus par lequel le contaminant se déplace avec la phase dans laquelle il est présent. Elle se décrit par l'équation suivant :

$$F_{\alpha,\beta}^{c} = \vec{q}_{\alpha} C_{\alpha,\beta}$$
(I-33)

Le flux convectif de la phase dans le sous-sol est induit par les gradients de pression. La convection augmente avec la perméabilité intrinsèque (Moldrup *et al.*,1998)

Comme déjà indiqué auparavant, l'écoulement général de fluide dans un milieu poreux est décrit par la loi de Darcy. Ainsi le flux convectif du composé β dans la phase α décrit par la relation :

$$F_{\alpha,\beta}^{c} = \vec{q}_{\alpha} C_{\alpha,\beta} = \frac{\overline{K} k_{r\alpha}}{\mu_{\alpha}} (\nabla P_{\alpha} - \rho_{\alpha} g \nabla z) C_{\alpha,\beta}$$
(I-34)

Dans les conditions naturelles du sous-sol, où les gradients de pression pour les phases gazeuse et aqueuse au sein du sous-sol sont faibles ainsi que leurs vitesses d'écoulement, le transfert par convection des polluants organiques est très faible et peut être négligé devant la diffusion moléculaire. La *Figure I-17* montre les différents processus et mécanismes de transport de la PLNA dans le sous-sol.



Figure I-17: Différents mécanismes et processus de transport du polluant PLNA dans le sous-sol (ADEME,2007)

I.5.3.d.Convection induite par effet de densité de la phase gazeuse

En considérant l'air comme un gaz parfait, sa masse volumique ρ_a est donnée par la relation suivante :

$$\rho_{air} = \frac{P_{air} M_{air}}{R_{gp} T}$$
(I-35)

Où :

 M_{air} : masse molaire de l'air (29,0 g.mol⁻¹);

 R_{gp} : constante des gaz parfaits (R_{gp} =8,314103 J.mol⁻¹.K⁻¹)

 P_{air} : pression de l'air (en Pa)

Lorsqu'un composé organique volatile s'évapore dans l'air, la masse volumique du mélange gazeux à l'équilibre est plus importante que celle de l'air seul. Sa détermination passe par la

connaissance de la masse molaire d'un mélange gazeux $M_{g-\beta}$ dont l'équation est la suivante dans le cas d'un mélange binaire :

$$M_{g-\beta} = \omega_{g,\beta} M_{\beta} + (1 - \omega_{g,\beta}) M_{air}$$
(I-36)

 M_{β} : masse molaire du composé β [M.mol⁻¹];

 $\omega_{e,\beta}$: fraction molaire du composé β dans la phase gazeuse [-].

A partir de cette formulation, Falta *et al.* (1989) ont développé une formulation de calcul de la masse volumique du gaz en fonction de la pression partielle ou en fonction de la concentration massique du composé dans le mélange :

$$\rho_{g} = \frac{P_{g,\beta} \left(M_{\beta} - M_{air} \right) + P_{air} M_{air}}{R_{g\beta} T} = C_{g,\beta} \left(1 - \frac{M_{air}}{M_{\beta}} \right) + \rho_{air}$$
(I-37)

 $P_{g,\beta}$: pression partielle du composé β dans la phase gazeuse [M.L⁻¹.T⁻²].

Des études (Falta *et al.*,1989 ; Sleep *et al.*,1989) ont montré que des phénomènes convectifs non négligeables peuvent être engendrés sous l'effet du gradient de la masse volumique de la phase gazeuse (effet gravitaire). Ces phénomènes sont aidés par la faible viscosité de la phase gazeuse qui provoque une grande mobilité sous un faible gradient (Pankow et Cherry, 1996).

Mendoza *et al.* (1990) ont montré qu'à partir d'une masse volumique de mélange 1,15 fois supérieure à celle de l'air non chargé, le phénomène de convection gravitaire ne peut pas être négligé.

Les facteurs influençant de ce phénomène sont la masse molaire et la volatilité des composés, ainsi que la perméabilité du milieu poreux. Falta *et al.* (1989) ont développé une expression analytique pour estimer la vitesse de convection verticale maximale $q_{g,\beta}^{\max}$ du composé β sous l'effet de leur densité :

$$q_{g,\beta}^{max} = \frac{k_{rg}\overline{K} g P_{g,\beta}^{o}}{\mu_{g}R_{gp}T} (M_{\beta} - M_{air})$$
(I-38)

I.5.4. Processus de transfert de masse entre phases

Les propriétés physiques et chimiques du composé organique déversé dans le sol contrôlent, dans une grande mesure, la répartition et donc la distribution dans les différentes phases décrites qui sont en nombre de quatre : évaporée dans l'air de sol, dissoute dans l'eau interstitielle, adsorbée sur les particules du sol, et la PLNA.

La répartition d'un composé organique volatil dans les quatre phases peut être décrite par plusieurs processus de transfert ainsi que plusieurs paramètres qui contrôlent ces processus (*cf. Figure I-18*). La phase PLNA est une source potentielle du composé. Tandis que l'évaporation dans la phase vapeur, à l'équilibre, est contrôlée par sa pression de vapeur et sa constante de Henry, la dissolution dans la phase aqueuse, à l'équilibre, est liée à la solubilité de ce composé, et l'adsorption sur la phase solide est contrôlée par les coefficients d'adsorption du sol.



Figure I-18: Répartition entre phases des COV dans un sol pollué

I.5.4.a. Transfert de masse entre PLNA et phase gazeuse

Les composés organiques volatils sont caractérisés par leur pression de vapeur saturante élevée qui dépasse 133 Pa. La pression de vapeur est définie comme la pression partielle exercée par le composé dans un mélange de gaz à l'équilibre avec la phase liquide du composé à une température donnée. En effet, la température a une forte influence sur la pression de vapeur d'un composé. Pour la plupart des composés organiques, la pression de vapeur augmente trois à quatre fois pour chaque augmentation de température de 10 °C (Sallam *et al.*,1984). Cette relation entre la pression de vapeur et la température peut être décrite par l'équation d'Antoine :

$$P_{g,\beta}^{o}(T) = \exp\left(A - \frac{B}{T+C}\right)$$
(I-39)

Où T est la température [K] et A, B et C sont des constantes empiriques [-].

Dans le cas d'un mélange de plusieurs composés, la composition du mélange a un effet sur la pression partielle du composé. Ce phénomène est décrit par la loi de Raoult qui exprime la pression de vapeur du composé β à l'équilibre dans un mélange et le partage entre la phase organique et la phase gazeuse. Si la vapeur se comporte comme un gaz parfait, et la solution liquide est idéale cette loi se formule comme suit :

$$P_{g,\beta} = \omega_{g,\beta} P_{g,\beta}^{o}$$
(I-40)

Ainsi dans ces conditions, la concentration à l'équilibre du composé β ($\overline{C}_{g,\beta}^{Sat}$ [M.L⁻³]) dans le mélange gazeuse peut être décrite par :

$$\overline{C}_{g,\beta}^{Sat} = \omega_{g,\beta} P_{g\beta}^{o} \frac{M_{\beta}}{R_{gp} T} = \omega_{g,\beta} C_{g,\beta}^{Sat}$$

$$(I-41)$$

$$C_{g,\beta}^{Sat} : \text{ concentration à l'équilibre/à la saturation du composé } \beta \text{ pur dans la phase gazeuse}$$

$$[M.L^{-3}];$$

 $\omega_{g,\beta}$: fraction molaire du composé β dans la phase gazeuse [-].

Dans les conditions naturelles du sous-sol, la diffusion moléculaire est le mécanisme dominant de transport. Il est observé une forte volatilité et une faible solubilité de la PLNA ainsi qu'un coefficient de diffusion moléculaire des COVs dans la phase gazeuse plus important que celui dans la phase aqueuse d'un rapport 10^4 à 10^5 fois (BRGM, 2008; Sleep *et al.*,1989). Par conséquent, une grande partie de la masse déversée dans le sous-sol, se transforme en vapeurs et participe à la création d'un large panache de vapeur qui enveloppe la zone à saturation résiduelle (Bohy,2003). Ce processus de diffusion de la phase vapeur dépend de la porosité du sol, de la saturation en eau, de la masse déversée, de la température et des propriétés du composé chimique (Lyman *et al.*,1990).

Ici, le transfert de masse entre les deux phases peut être basé sur l'hypothèse de présence d'un équilibre locale (LEA : Local Equilibrium Assumption). Ce modèle simplifie le comportement de transfert en considérant qu'il n'y a pas de résistance au transfert de masse entre les différentes phases, et qu'ainsi, les équilibres de partage entre ces phases sont atteints à tout instant et peuvent être simplement décrits par des équations linéaires (Rathfelder *et al.*,1991; Benson,1992; Katyal *et al.*,1991 ; Kaluarachchi *et al.*,1992) :

$$K_{o-g,\beta} = \frac{C_{o,\beta}}{C_{g,\beta}} = \frac{\rho_o}{\omega_{g,\beta} C_{g,\beta}^{Sat}}$$
(I-42)

 $K_{q-q,\beta}$: étant le coefficient d'équilibre du composé β entre PLNA/phase gazeuse [-].

Par contre dans le cas de traitement de sous-sol par MPE ou SVE. l'application d'une dépression au sous-sol engendre un écoulement de la phase gazeuse d'une vitesse de pore minimale dans ce rayon d'influence de l'ordre 0,01cm.s⁻¹ (Gierke *et al.*,1992).Ainsi la convection devient le processus de transport dominant, et comme la convection est un processus plus rapide par rapport à la diffusion, un retard au rétablissement des équilibres entre phases est observé (Abriola, 1989 ; Dutheil,2003 ; Wilkins *et al.*, 1995). Ce retard est dû à des résistances au transfert de masse qui peuvent devenir limitant au plan cinétique (Armstrong *et al.*,1994;Wilkins *et al.*,1995; Nuske *et al.*, 2014; White *et al.*, 2000) :

$$E_{o-g,\beta} = -\lambda_{o-g,\beta} \left(\overline{C}_{g,\beta}^{Sat} - C_{g,\beta}\right)$$
(I-43)

 $\lambda_{o-g,\beta}$: coefficient cinétique global de transfert PLNA/phase gazeuse du composé β [T⁻¹].

Wilkins *et al.* (1995), en s'appuyant sur des données expérimentales d'une colonne simulant l'extraction sous vide, ont développé une corrélation empirique pour déduire le coefficient cinétique de transfert de masse PLNA/gaz en état stationnaire :

$$\lambda_{o-g,\beta} = 10^{-0.42} D_{g,\beta}^{o-0.38} U_g^{0.62} d_{50}^{0.44}$$
(I-44)

Yoon *et al.* (2002) ont montré que la zone interfaciale disponible entre PLNA et la phase gazeuse diminue avec la volatilisation progressive de la phase PLNA, ce qui provoque une diminution progressive du coefficient de transfert de masse global qui peut être exprimé en fonction de la saturation volumique de la PLNA :

$$\lambda_{o-g,\beta} = \lambda_{o-g,\beta}^{init} \left(\frac{S_o}{S_o^{init}} \right)^{\beta_y}$$

(**I-45**)

Où :

 $\lambda_{o-g\beta}^{init}$: coefficient initial de transfert de masse [T⁻¹] ;

 β_y : constante empirique du modèle Yoon (2002)[-];

 S_{a}^{init} : saturation initiale en phase PLNA [-].

I.5.4.b.Transfert de masse entre phase PLNA et phase aqueuse

Le contact des polluants organiques piégés dans le sous-sol (ZS, ZNS) avec l'eau de précipitation entraîne la dissolution de certains composés (*cf. Figure I-18*). Ces composés seront ensuite véhiculés par la nappe sous forme d'un panache vers le captage d'eau potable sous l'effet de gradient de pression. Ce mode de transport constitue le principal mode de contamination de la nappe. La prédiction de la concentration des composés dissous dans le panache devient alors nécessaire pour l'optimisation et l'efficacité des opérations de remédiation comme l'extraction multiphasique et le pompage- traitement.

Le taux de dissolution dépend des solubilités effectives, des diffusivités de chaque constituant dans le mélange, de la distribution de la PLNA dans le milieu poreux et de la vitesse de l'écoulement de la nappe. Pour un mélange, la concentration du composé β dans la phase aqueuse à l'équilibre, peut être exprimée aussi par la loi de Raoult en fonction de la solubilité pour la solution idéale (Broholm *et al.*,1995) :

$$S_{w,\beta}^{eff} = \omega_{w,\beta} S_{w,\beta}$$
(I-46)

Où :

 $\omega_{w,\beta}$: fraction molaire du constituant β dans la phase aqueuse [-] ;

 $S_{w\beta}$: solubilité du composé pur β dans la phase aqueuse [M.L⁻³] ;

 $S_{w,\beta}^{e\!f\!f}$: solubilité effective du composé β la phase aqueuse [M.L⁻³].

Les mécanismes de transport (dispersion et convection), intervenant à différentes échelles du milieu poreux, conduit à des concentrations inférieures ou égales à la concentration d'équilibre. Au niveau de l'interface PLNA/eau, les concentrations dans la phase aqueuse sont égales à la solubilité ou à la solubilité effective de chaque constituant (Soga *et al.*,2004). Par contre dans le

panache d'un site réel, les concentrations sont inférieures à leurs concentrations d'équilibre (la solubilité dans l'eau). Cela peut être expliqué par la dissolution sélective des composés en mélange et par le flux convectif.

Pour décrire le transfert de polluants organiques vers la phase aqueuse, l'hypothèse de l'équilibre local a été utilisée couramment dans les anciens modèles ou les modèles simplifiés (Miller *et al.*,1990; Kaluarachchi *et al.*,1990; Kaluarachchi *et al.*,1990; Kaluarachchi *et al.*,1992). Cependant, Powers *et al.* (1991) ont montré par l'observation des données expérimentales que cette hypothèse n'est pas valide à l'échelle du terrain. En fait à l'échelle du pore, l'équilibre thermodynamique est respecté, mais il ne l'est pas à l'échelle macroscopique (échelle VER). Ce constat a encouragé certains auteurs à développer des modèles appropriés pour décrire ce transfert par la cinétique de la dissolution (Sleep *et al.*,1989; Mayer *et al.*,1992; Powers *et al.*,1991; Brusseau,1992). Ces modèles utilisent une cinétique du premier ordre, qui est exprimée par la relation suivante :

$$E_{o-w,\beta} = \lambda_{o-w,\beta} \left(S_{w,\beta}^{eff} - C_{w,\beta} \right)$$
(I-47)

 $\lambda_{o-w,\beta}$: coefficient cinétique global de transfert PLNA/phase aqueuse du composé β [T⁻¹]; $C_{w,\beta}$: concentration du composé β dans la phase aqueuse [M.L⁻³].

Ce coefficient dépend de la saturation en PLNA, sa composition, de la géométrie des pores, de la vitesse d'écoulement de la phase aqueuse et de la densité.

Des corrélations empiriques ont été développées afin d'estimer le coefficient de transfert de masse. Ces corrélations sont liées aux données expérimentales par des nombres adimensionnels comme le nombre de Sherwood modifié $Sh_{o-w,\beta}^m$, le nombre de Reynolds Re_w , le nombre de Schmidt $Sc_{w,\beta}$ et le nombre de Péclet $Pe_{w,\beta}$:

$$Sh_{o-w,\beta}^{m} = \frac{\lambda_{o-w\beta} d_{50}^{2}}{D_{w\beta}^{o}}$$
 (I-48)

$$Sc_{w,\beta} = \frac{\mu_w}{\rho_w D_{w,\beta}^o}$$
(I-49)

$$\operatorname{Re}_{w} = \frac{\left|\vec{U}_{w}\right| \rho_{w} \, d_{50}}{\mu_{w}} \tag{I-50}$$

$$Pe_{w,\beta} = \frac{\left|\vec{U}_{w}\right| d_{50}}{D_{w,\beta}^{o}}$$
(I-51)

Thèse, INSA de Lyon, 2015

Auteur	Modèle	Paramètre
Miller et al. (1990)	$Sh_{o-w\beta}^{m} = 12(\varphi - \theta_{o}) \operatorname{Re}_{w}^{0.75} \theta_{o}^{0.6} Sc_{w\beta}^{0.5}$	θ_o teneur en PLNA,
Powers <i>et al</i> .(1994)	$Sh_{o-w\beta}^{m} = 4,13 Re_{w}^{0.5898} d_{o}^{0.673} C_{u}^{0.369} \left(\frac{\theta_{o}}{\theta_{o}^{init}}\right)^{\varepsilon_{\beta}}$ $\varepsilon_{p} = 0,518 + 0,1148d_{o} + 0,1 C_{u}$	$d_o = \frac{d_{50}}{d_m}$ taille de grain normalisée. d_m diamètre de grain d'un sable moyen \mathcal{E}_p paramètre empirique de modèle
Imhoff et al. (1994)	$Sh_{o-w\beta}^{m} = 340Re_{w}^{0.71}\theta_{o}^{0.87}\left(\frac{x_{I}}{d_{50}}\right)^{-0.31}$	x_I la distance de l'entrée de la colonne.

 Tableau I-15: Modèles empiriques de transfert PLNA/phase aqueuse (Miller et al., 1998)

I.5.4.c. Transfert de masse entre phase aqueuse et phase gazeuse (stripping)

La volatilisation d'un produit dissous dans l'eau est régie par la loi de Henry. Cette loi suppose un équilibre thermodynamique locale à l'interface des deux phases à chaque instant, et met en relation la pression partielle du composé β dans la phase gazeuse et sa concentration dissous dans la phase liquide :

$$P_{g,\beta} = K_{H,\beta} C_{w,\beta}$$

$$K_{H,\beta} : \text{constante de Henry du composé } \beta [\text{M.L}^2.\text{T}^{-2}.\text{mol}^{-1}].$$
(I-52)

Il existe une autre forme de cette relation qui relie directement la concentration d'un composé β dans la solution avec sa concentration dans la phase gazeuse exprimée par une constante de Henry adimensionnelle, également appelée « coefficient de partage air-eau »:

$$C_{g,\beta} = H_{\beta} C_{w,\beta}$$
(I-53)

 H_{β} : constante de Henry adimensionnel du composé β [-].

Comme dans le cas de la pression de vapeur saturante, la constante de Henry varie fortement avec la température. L'augmentation de la température conduit à l'augmentation de la constante de Henry. Gosset (1987) a développé une relation empirique permettant de calculer la constante de Henry de quelques COVs chlorés pour des températures comprises entre 10 et 35°C:

$$ln(K_{H,\beta}) = A' - \frac{B'}{T}$$
 (I-54)

Où : A' et B' sont des constantes empiriques [-].

Ce processus de transfert est considéré comme un des mécanismes potentiels de contamination du sous-sol. Étant donné la dispersion importante des polluants dans la phase gazeuse dans la zone non saturée, la pollution de la nappe peut s'étendre sur de grandes distances à partir de la zone affectée (Baehr,1987; Klenk *et al.*,2002; Jellali *et al.*,2003).

Plusieurs auteurs ont utilisé des modèles cinétiques pour simuler ce transfert de masse afin de modéliser l'extraction sous vide (Gierke *et al.*,1992; Armstrong *et al.*,1994; Nguyen *et al.*,2013) :

$$E_{g-w,\beta} = \lambda_{g-w,\beta} \left(H_{\beta} C_{w,\beta} - C_{g,\beta} \right)$$
(I-55)

 $\lambda_{g-w,\beta}$: coefficient cinétique global de transfert phase aqueuse/phase gazeuse du composé β [T⁻¹].

Gidda (2003) a trouvé que le coefficient de transfert aqueuse/gazeuse est lié à la concentration du composé β dans la phase aqueuse :

$$\lambda_{g-w,\beta} = \lambda_{g-w,\beta}^{init} (C_{w,\beta})^{\zeta}$$
(I-56)

Où :

 $\lambda_{g-w,\beta}^{init}$: coefficient initial de transfert phase aqueuse/phase gazeuse du composé β [T⁻¹]; ζ : constante empirique du modèle Gidda (2003) [-].

Chao *et al.* (1998) ont développé une corrélation empirique pour déduire ce coefficient. Ils se sont inspirés des données expérimentales mesurées sur une colonne (9,5cm en diamètre et 40 cm en hauteur) polluée par plusieurs COVs et simulant le principe du Stripping :

$$Sh_{g-w,\beta}^{m} = 10^{-4,71} Pe_{g,\beta}^{0,84} d_{o}^{1,71} H_{\beta}^{-0.61}$$
(I-57)

I.5.4.d. L'échange avec la matrice de solide

I.5.4.d.1. Transfert de masse entre phase aqueuse et phase solide

Les échanges phases aqueuse/solide sont généralement regroupés sous les termes de sorption et de désorption. Ce phénomène dépend des caractéristiques physico-chimiques du polluant

(solubilité, diffusivité), la nature de l'interface solide (surface spécifique et teneur en matière organique), la teneur en eau et la température (Rutherford *et al.*, 1992).

Les modèles de sorption utilisent souvent l'hypothèse de l'équilibre local, en supposant un transfert instantané du polluant entre les phases aqueuse et solide.

Sous cette hypothèse, deux types d'isothermes sont généralement utilisés : isotherme linéaire et non linéaire.

On résume ici, les modèles les plus connus dans la littérature :

Modèle	Forme	
Linéaire	$C_{S,\beta} = K_{d,\beta} \ C_{w,\beta}$	Solutés hydrophobes, non ioniques Sol riche en matière organique concentrations < ½ solubilité (Karickhoff et <i>al.</i> , 1985)
Non linéaire		
Freundlich	$C_{S,\beta} = K_{d,\beta} C_{w,\beta}^{1/n}$	Composés ioniques et fortement polaires
Langmuir	$C_{S,\beta} = C_{S,\beta}^{\max} \frac{K_{d,\beta} C_{w,\beta}}{1 + K_{d,\beta}}$	concentrations élevées du soluté

Tableau I-16: Différents modèles de transfert phase aqueuse /phase solide (sorption)

Où :

 $C_{S,\beta}$: concentration du composé β fixé sur la phase solide [M.M⁻¹];

 $K_{d,\beta}$: coefficient de sorption du sol pour le composé β [L³.M⁻¹];

 $C_{s,\beta}^{\max}$: capacité maximale de la sorption du sol pour le composé β [M.M⁻¹].

Le modèle linéaire décrit correctement la sorption en particulier dans les sols riches en matière organique et avec des solutés hydrophobes et non ioniques à faibles concentrations. Karickhoff *et al.* (1985) ont suggéré d'adopter une isotherme linéaire dans des systèmes où la concentration en soluté est inférieure à la moitié de la solubilité.

L'INERIS dans le cadre du programme TRANSPOL a développé une base des données **SORP-BIO** (INERIS,2009) et a mis à la disposition des simulateurs de valeurs de coefficient de sorption $K_{d,\beta}$ (pour les différents modèles de sorption) et de paramètre de la biodégradation $t_{1/2,\beta}$ (temps de demi-vie du composé β) de plusieurs composés HAP pour différents types des sols. Par ailleurs, le coefficient de sorption sur le sol $K_{d,\beta}$ peut être calculé à partir de la teneur du sol en carbone organique du sol f_{oc} [-] et du coefficient de partage carbone organique/eau $K_{oc,\beta}$ du composé β [L³.M] :

$$K_{d,\beta} = f_{oc} K_{oc,\beta}$$
(I-58)

En se basant sur cette équation, Karickhoff *et al.*, (1979) ont constaté que le carbone organique réagi comme un solvant dans l'eau, ainsi ils ont estimé par des expériences menées sur des solvants immiscibles (complétés par des HAP et COHV qui ont une solubilité de 1 à 1000 mg.L⁻¹) le coefficient d'adsorption $K_{d,\beta}$ à partir du coefficient de partage octanol/eau $K_{ow,\beta}$ [L³.L⁻³] du composé. $K_{ow,\beta}$ étant disponible dans la littérature pour un grand nombre de composés organiques. Ils ont établi la relation suivante :

$$K_{oc,\beta} = 0.63 K_{ow,\beta}$$
 (I-59)

Cette relation reste valable pour une grande variété de sols et des composés organiques représentant une très large gamme de solubilité dans l'eau.

Les études de sorption réalisées ont montré un comportement en deux étapes : une étape initiale courte et rapide suivie d'une étape longue et lente. De ce fait, Brusseau *et al.*,(1989)mettent en question la validité de l'hypothèse de l'équilibre local. Cela conduit au développement de modèles cinétiques qui prennent en compte la vitesse à laquelle le contaminant est sorbé ou désorbé.

$$E_{w-s,\beta} = \lambda_{w-s,\beta} \left(K_{d,\beta} C_{w,\beta} - C_{s,\beta} \right)$$
(I-60)

 $\lambda_{w-s,\beta}$: coefficient cinétique global de transfert phase aqueuse/phase solide pour le composé β [T⁻¹].

Brusseau et Rao. (1989) ont étudié l'effet de plusieurs composés organiques, qui ont un coefficient de partage eau-sol *log* $K_{d,\beta}$ entre -1,5 et 5,5 sur la cinétique de sorption. Ils ont établi une corrélation empirique permettant d'évaluer la cinétique d'adsorption à partir du coefficient de partage :

$$log(\lambda_{w-s,\beta}) = 0,301 - 0,668 log(K_{d,\beta})$$
(I-61)

La plupart des COVs ont un effet d'hystérésis. La phase de sorption ne se comporte pas de la même manière pour la désorption, cette dernière prend plus de temps et d'énergie. Cela se traduit par une diminution de cinétique de sorption, ce qui peut expliquer la chute d'efficacité d'un système d'extraction dans la dernière phase de décontamination (la phase de diffusion) surtout dans les sols riches en matière organique (Kaleris,2002).

I.5.4.d.2. Transfert de masse entre phase gazeuse et phase solide

Goss (2004) a étudié en détails le processus d'adsorption des vapeurs des COVs sur la surface minérale et organique du sol sec. Il a trouvé que cet échange sur la surface gaz-solide diminue avec l'augmentation de l'humidité relative RH de vapeur et la teneur en eau dans le sol car il y a une compétition entre les molécules d'eau et les molécules de polluants organiques vis-à-vis des sites d'adsorption sur et dans les grains de sol (Moldrup *et al.*,1998 ; Poulsen *et al.*,1999).

Yoon *et al.* (2003) ont utilisé un modèle linéaire pour décrire l'adsorption gazeuse sur le solide :

$$C_{s,\beta} = K'_{d,\beta} C_{g,\beta}$$
(I-62)

 $K'_{d,\beta}$ est le coefficient de partage gazeux/phase solide du composé β [L³.M⁻¹].

Le modèle de transport vapeur/solide est utilisé dans une simulation à deux dimensions de transport de COV pour évaluer l'effet de sorption de la vapeur sur le transport de TCE dans la zone non saturée dans les deux scénarios : naturelle et l'extraction sous vide. Les résultats de simulation montrent que la sorption vapeur-solide peut entraîner une augmentation des temps de traitement, en particulier dans les régions arides (Zhao,2007).

I.5.4.e. La biodégradation des COVs

La biodégradation est un des mécanismes de transformation des contaminants dans les deux zones du sous-sol (saturée et non saturée), dans laquelle la substance sert de substrat (source de carbone et/ou d'énergie) pour les microorganismes. La majorité des composés organiques sont biodégradables sous des conditions adéquates (Cho *et al.*,1997).

Il existe deux mécanismes de biodégradation dans le sous-sol ; l'un aérobie (en présence d'oxygène) dans la zone non-saturée apte à une dégradation totale de substance. L'autre anaérobie (en l'absence totale d'oxygène ou à une teneur très faible) plutôt dans la zone saturée pour une dégradation partielle de substance.

La biodégradation dépend de deux facteurs principaux : la biodisponibilité de substance (solubilité, coefficient de sorption et l'accessibilité de microorganismes) et les conditions du milieu poreux (température, humidité, pH, concentration en O_2 et la disponibilité de nutriments essentiels N et P).

Différents modèles cinétiques permettent de décrire mathématiquement ces processus et de les intégrer aux modèles analytiques ou numériques de transport de polluants dans les sous-sols. Trois modèles sont principalement utilisés :

- le modèle de dégradation de premier ordre (le plus couramment utilisé) ;
- le modèle de dégradation instantanée ;
- le modèle de Monod.

La biodégradation est intégrée dans l'équation de transport par l'application d'un terme soustracteur comprenant la constante de biodégradation λ_{β} pour le composé β . Ce modèle peut être décrit par :

$$C_{w,\beta} = C_{w,\beta}^{init} e^{\lambda_{\beta} t}$$
(I-63)

Où :

t : temps [T] ;

 $C_{w,\beta}^{init}$: concentration initiale au temps t = 0du composé β en phase aqueuse [M.L⁻³];

 λ_{β} : constante de désintégration du composé β [T⁻¹] définie par :

$$\lambda_{\beta} = \frac{\ln 2}{t_{1/2,\beta}} \tag{I-64}$$

 $t_{1/2,\beta}$: temps de demi-vie du composé β [T].

Ce processus naturel peut jouer un rôle important dans la remédiation du sous-sol contaminé par des hydrocarbures. La plupart des sols contiennent des micro-organismes, si on les considère dans des conditions adéquates (des nutriments basiques, alimentation adéquate en oxygène), ils peuvent dégrader plusieurs hydrocarbures. C'est le cas de plusieurs techniques de traitement comme le bioVenting, le bioSlurping et le biosparging. Ces techniques créatives utilisent les principes de Venting (ventilation forcée) et l'extraction multiphasique, en apportant du flux d'air dans le sous-sol pour stimuler la biodégradation.

I.6. Modèle d'écoulement et de transport en milieux poreux

I.6.1. Introduction

Historiquement, les modèles d'écoulement multiphasique et de transport dans les milieux poreux ont été développés pour l'industrie pétrolière, pour l'amélioration des techniques d'extraction d'huile et/ou de gaz. Face à des problèmes de pollution des milieux souterrains récents, les chercheurs se sont intéressés au développement de modèles numériques pour mieux appréhender les mécanismes et les conditions de contaminations surtout par des composés organiques. Les modèles pétroliers ignorent les processus de transport des composés entre les phases du sol (aqueuse, gazeuse et solide), la biodégradation de ces composés et ainsi l'apparition/disparition des phases, qui est souvent une voix importante pour la contamination/décontamination du sous-sol.

Les modèles numériques permettant de simuler une pollution/décontamination du sous-sol diffèrent selon la technique de résolution numérique utilisée (analytique, éléments finis, volumes finis, équations différentielles) et selon que le modèle prend en compte ou pas les éléments suivants :

- la zone non saturée et/ou la frange capillaire et/ou la nappe ;
- l'écoulement (monophasique, diphasique, multiphasique, les modèles de *p-S-k* et le traitement de l'hystérésis);
- le transfert de masse entre les phases (Équilibre locale, cinétique premier ordre, cinétique, réaction chimique) ;
- le nombre des composés à traiter (un composé, multiple limité, non limité) ;
- la biodégradabilité des composés organiques ;

- le type de milieu (poreux, fissuré, à double porosité) ;
- la dimension spatiale (lD, 2D, 3D);
- l'échelle (échelle microscopique, échelle de laboratoire, échelle de terrain, GMS (Groundwater Modelling System).

I.6.2. Modèles d'écoulement et de transport cité dans la littérature

La plupart des modèles existants ont été construits dans le cadre de la recherche pour comprendre et reproduire les phénomènes de pollution et décontamination du sous-sol basés sur l'industrie pétrolière, mais aussi pour tester les méthodes de résolution numérique.

Le BRGM (2008) classe les modèles de simulation des pollutions en quatre niveaux selon leurs niveaux de simplification pour la mise en œuvre de la modélisation:

- niveau 1 : écoulement monophasique eau et transport pour les polluants miscibles ;
- niveau 2 : écoulement diphasique eau-huile sans traiter le transport entre phases ;
- niveau 3 : écoulements triphasiques eau, air et huile sans transport ;
- niveau 4 : écoulements triphasiques avec transport.

L'application d'un modèle numérique aux problèmes de pollutions à l'échelle du terrain passe nécessairement par une validation sur une variété d'expériences de laboratoire.

Gierke et *al.*, (1990) ont développé un modèle pour étudier la contribution relative de la convection et la dispersion du gaz et de l'eau, le coefficient de transfert de masse air/eau et aux interfaces d'eau mobile/immobiles dans des colonnes de sol.

Sleep et Sykes (1989) ont simulé le transport des COVs dans un milieu poreux non saturé. Ce modèle résout deux équations d'écoulement pour les phases aqueuse et gazeuse. Le transfert de masse entre phases par dissolution, volatilisation et partage eau/gaz a été représenté par des expressions de cinétique de premier ordre.

Kaluarachchi et Parker (1990) ont développé un modèle pour le transport de plusieurs espèces PLNA dans un système triphasique. Deux équations d'écoulement pour la phase aqueuse et organique ont été résolues. Les équations de transport des constituants ont été résolues séquentiellement après le calcul de l'écoulement en utilisant l'hypothèse d'équilibre local. Falta et *al.*, (1992) ont développé un modèle d'écoulement multiphasique multicomposés en résolvant trois équations d'écoulement pour les phases (aqueuse, PLNA et gazeuse) et quatre équations de transport sous des conditions non isotherme (y compris une équation pour la conservation de l'énergie) sous l'hypothèse de l'équilibre local. Les propriétés physicochimiques des fluides ont été calculées en se basant sur la méthode des équations d'état. Ils ont traité l'apparition et la disparition de phases et le passage d'un système triphasique à un système diphasique.

Zhao (2007) a développé un modèle 3D-SVE pour étudier et simuler la technique d'extraction sous vide afin d'évaluer le temps de traitement des sites exposés à cette technique. Ses équations (1'écoulement de la phase gazeuse + 3 équations de transport) sont résolues par l'équation aux dérivées partielles dans l'interface du logiciel de résolution numérique FEMLAB multiphysique (actuellement connu sous le nom de COMSOL). Le transfert de masse entre les quatre phases (aqueuse, PLNA, gazeuse et solide) est représenté par des expressions de cinétique de premier ordre. Le modèle est calibré et validé par rapport aux données expérimentales, une étude de la sensibilité des paramètres a aussi été réalisée.

Afin d'illustrer les approches de modélisation utilisées, une synthèse sélective des principaux modèles numériques issus de la littérature est présentée dans le *Tableau I-17*.

A partir de ce tableau, nous pouvons remarquer plusieurs tendances communes dans la modélisation de l'écoulement et du transport des systèmes multiphasiques :

- plusieurs modèles d'écoulement bi- et triphasiques ont été publiés pour des géométries biet tridimensionnelles ;
- la plupart des modèles d'écoulement et de transport utilisent des formes des relations constitutives *P-S-k* de van Genuchten ou Brooks et Corey et ne traite pas l'effet de l'hystérésis;
- la majorité des modèles utilise l'hypothèse de l'équilibre local pour représenter l'échange de masse entre phases ; néanmoins, quelques modèles utilisent une cinétique de transfert de premier ordre sont également présentés.

Modèle	Phase Mob/Immob	composés	Composé dans phase	Dim	p-S-k	Enterphase transfert
Abriola et <i>al.</i> , (1985)	w, o/g,s	1	w,g,o	1	Со	Équilibre
Corapcioglu et al. (1987)	w/g, o, s	multi	none	1	autre	Équilibre
Sleep et al. (1989)	g/w,o	2	w,g	2	VG/BC	Cinétique
Kaluarachchi et al. (1990)	w,o/g,s	multi	w,g,o	2	VG	Équilibre
Falta et al.(1992)	w, g, o/s	multi	w,g,o	1	VG/P	Équilibre
Guarnaccia et al. (1992)	W,0	multi	none	2	h-VG/KP. LVGN	Cinétique
Mayer et al. (1992)	w,o	1	w,o	2	VG/P	Cinétique
Adenekan et al. (1993)	w,g,o/s	ns	w,g,o,s	3	C/P	Équilibre
Sleep et <i>al</i> . (1993)	w,g,o	multi	w,g,o	3	BC. VG/BC. P	Équilibre
Brown et <i>al</i> . (1994)	w,m,o/s	multi	none	3	BC	Équilibre
Reeves et al. (1994)	w,o	multi	w,g,o	2	VG/P	Équilibre
Van Geel et <i>al.</i> (1994)	w, g,o	1	w,g,o	2	h-VG/LP	Équilibre
Sleep (1998)	w,o	multi	none	1	t P-S/E	Équilibre
White et <i>al</i> . (1995)	w,o/g,s	1	0,8	3	h-VG. LP	Équilibre
Wilkins et <i>al</i> . (1995)	g/w,o,s	1	g,w,o,s	1	none	Cinétique
Fischer et <i>al</i> . (1996)	g,w	1	g,w	3	none	Cinétique
Harper (1999)	g/w,o,s	multi	g,w,o,s	1	BC	Cinétique
Rathfelder et al.(2000)	g/w,o,s	1	g,w,o,s	2axy	none	Cinétique
Yoon et <i>al.</i> (2002)	g/w,o	1	g,w,o	2	none	Cinétique
Class et al. (2002)	w, g,o	multi	w,g,o,s	3	-	Cinétique
Gidda (2003)	g/w,o,s	1	-	1	none	Cinétique
Rahbeh et <i>al</i> . (2007)	g/w,o,s	1	g,w,o,s	2	BC	Cinétique
Zhao (2007)	g/w,o,s	multi	w,g,o	3	BC.	Cinétique

Tableau I-17: Synthèse des modèles d'écoulement et transport dans le milieu poreux

 α Phase: w = aqueuse. o =:PLNA/huileuse. g = gazeuse. m = (micro-) émulsion et s = solide.

b p-S-k. (modèle pression- saturation-perméabilité). BC (brooks et Corey). C (Corey). t (tableau).

VG (Van Genuchten). h-VG (VG hystérétique). P (Parker) LP (Lenhard et Parker). C (Coats).

Il existe un nombre important de logiciels commerciaux ou open-source disponibles à ce jour pour l'écoulement et/ou le transport dans les milieux poreux. Jennings et al.,(2002) ont énuméré et brièvement résumé environ 30 modèles développés dans les années 1990 seulement. Peu de ces modèles sont capables de simuler l'écoulement multiphasique et le transport multicomposés dans des conditions de terrains réels. Un résumé d'une variété des logiciels actuellement disponibles est présenté dans le *Tableau I-18*.

	dans le sous-sol					
Modèle	Description	Résolution numérique	Paramètre de sortie	Référence		
ARMOS	Écoulement et récupération de PLNA	2D. EF	Champs (P, q) vs. temps. mass PLNA vs temps	Environmental Systems & Technologies Inc.		
MISER	Simule le SVE/BV. écoulement air dans ZNS. un composé. Équilibre local	2D. EF	Champs (P,q, C) pour phase gazeuse	(Rathfelder et <i>al.</i> , 2000)		
MOTRANS	Écoulement multiphasique dans ZNS et ZS	3D. EF	Champs de (P, S, q) pour chaque phase	Environmental Systems & Technologies.Inc.		
MOFAT	Écoulement multiphasique transport multicomposés. Équilibre non locale. Pas de biodégradation	2D 2D axy.EF	Champs de(P, S, q, C,) chaque phase vs. temps. mass PLNA (adsorbé, dissout, totale restant)	Draper Aden Environmental Modeling		
NAPL3D Simulator	Écoulement Multiphasique Équilibre locale. Pas de biodégradation	2D. EF	Champs de (P. S.q, C) chaque phase vs. Temps. Masse PLNA (dissout. adsorbé. évaporé)	(Guarnaccia et <i>al.</i> , 1997)		
STOMP	Écoulement Multiphasique. Transport Multicomposés. Transport de chaleur. Équilibre non locale. Biodégradation 1 ^{er} ordre	3D. ED	Champs (P, S, q, C) chaque phases vs. temps. masse PLNA (adsorbé.dissout.dégradé.totale restant)	(White et <i>al.</i> , 2000)		
TOUCH2/ T2VOC	Écoulement Multiphasique. Transport multicomposés. Transport de chaleur. Équilibre locale. Biodégradation 1 ^{er} ordre	3D.ED	Champs (P, S, q, C) chaque phases vs. temps. Débit.masse PLNA (adsorbé, dissout, dégradé, totale restant)	(Falta et <i>al.</i> , 1992) Berkeley Lab Software Center		
UTCHEM	Écoulement multiphasique. Transport multicomposés. Salinité. Émulsion. Transport de chaleur. Équilibre non locale. Biodégradation cinétique	3D. 3D	Champs (P, S, q, C, volume totale) chaque phases vs. temps.Débit.masse PLNA (adsorbé, dissout, dégradé, totale restant) nombres adimensionnel	University of Texas		
MUEFTE	Écoulement Multiphasique. Transport Multicomposés Transport de chaleur. Équilibre locale.	3D. EF	Champs (P, S, q,C) chaque phases vs. temps. masse PLNA (adsorbé, dissout, dégradé. totale)	(Helmig, 1997) Université de Stuttgart		
SIMUSCOPP	Écoulement Multiphasique. Transport Multicomposés Transport de chaleur. Équilibre locale. Biodégradation cinétique	3D.VF	Champs (P, S, q, C) chaque phases vs. temps. masse PLNA (adsorbé, dissout, dégradé, totale restant)	Co-développé par IFP, BURGÉAP et ENI.		
PolluSIM triphasique	Écoulement Multiphasique. Transport Multicomposés Transport de chaleur. Équilibre locale. Biodégradation cinétique (Monod)	3D.VF	Champs (P, S, q, C) chaque phases vstemps.Débit ,masse PLNA (adsorbé, dissout, dégradé, totale restant)	Institut Français du Pétrole IFP		
Bioslurp	Écoulement multiphasique transport multicomposés en ZS et ZNS	3D. FE	Champs (P, S, q,C) pour phase gazeuse	Draper Aden environmentalMo deling		
BIO- VENTING- PLUS	Design d'injection/extraction d'air pour SVE et Bioventing	Ana	Débit d'air, ZOI, nb de puits, quantité de PLNA récupérée, temps et coût de traitement	Environmental Systems& Technologies.Inc		
Vent 2D	Distribution de la phase gazeuse transport Multicomposés	2D.EF	Champs (P,q, C) phase gazeuse vs temps	(Benson, 1992)		
HSSM	Dépistage de déversement de PLNAL dans ZNS. Frange capillaire. ZS	2D. Ana	Profile de Saturation. lentille de PLNAL surnageant, quantité libre de PLNAL surnageant	US.EPA		

Tableau I-18: Logiciels de modélisation d'écoulement multiphasique et du transport de polluants

.

ED; équations différentielles. VF ; volumes finis. EF ; éléments finis ; Ana ; Analytique

MISER est un simulateur 2D pour simuler le SVE / BioVenting développé par Abriola *et al.* (1997). MISER traite un contaminant avec un seul composé et utilise des coefficients de transfert cinétique linéaire. Il est associé à un simulateur par les éléments finis pour résoudre les équations d'écoulement diphasique (aqueux et gazeux) et le transport à l'échelle du terrain. Des étalonnages intermodaux ont été effectués, mais il n'a pas été calibré par rapport aux données connues de réelles opérations de SVE.

MOFAT est un modèle aux éléments finis à deux dimensions pouvant traiter les écoulements triphasiques (eau, PLNA et gaz) et le transport multicomposés (pouvant aller jusqu'à 5 composés différents). Ce code a été développé pour l'Environmental Protection Agency aux États-Unis par Katyal *et al.* (1991). Ce code a été utilisé avec deux interfaces différentes permettant de construire le maillage, d'écrire le fichier d'entrée et de visualiser les données de sortie. Les saturations et en particulier les concentrations en composés dissous dans la phase aqueuse sont calculées par le code.

UTCHEM et SIMUSCOPP sont des simulateurs spécialisés d'ingénierie du pétrole. Ils sont capable de modéliser les processus de SVE et MPE (Delshad *et al.*,1996). Le logiciel UTCHEM, est ouvert au public et inclus dans le système GMS. Ce logiciel est développé pour la résolution de l'écoulement multiphasique (même pour 4 phases et prend en compte la salinité et la phase microémulsion) et de transport multicomposés avec des réactions chimiques dans les deux zones saturée et non saturée dans des conditions non isothermes. Par contre il n'est pas bien adapté pour simuler les processus de la SVE et la MPE en raison de sa spécialisation dans les paramètres de réservoir de pétrole. De même, le SIMUSCOPP est un logiciel modifié d'un simulateur pétrolier. Il peut simuler l'écoulement triphasique, transfert de masse pour plusieurs composés organique en condition d'équilibre. Cependant, il n'y a pas beaucoup de nouveaux rapports sur son applicabilité et la disponibilité dans la littérature.

STOMP est un simulateur d'ingénierie multifonction spécialisé dans les technologies de restauration des sols et les eaux souterraines des composés organiques. Le simulateur résout numériquement l'écoulement et le transport isotherme et non isotherme dans le milieu poreux à saturation variable par un régime de différences finies.

L'INERIS (BOUR,2003) a testé 5 codes différents de modélisation (HSSM, TOUGH2, SIMUSCOPP, UTCHEM et MOFAT) dans le cadre du programme TRANSPOL dans le but de les utiliser dans l'Évaluation Détaillée des Risques EDR, pour la simulation d'un cas-type théorique de pollution inspiré d'un cas réel de pollution par les déversements d'hydrocarbures.

CHAPITRE II. : MATÉRIELS ET MÉTHODES
Chapitre II.: MATERIELS ET METHODES

II.1.	INTRODUCTION	109
II.2.	LE COMPOSE ORGANIQUE VOLATIL UTILISE	110
II.3.	CARACTERISATION DES SABLES	111
II.3.1.	PROPRIETES PHYSIQUES	112
II.3.1.A.	L'ANALYSE GRANULOMETRIQUE DES SOLS	112
П.З.1.в.	LA MASSE VOLUMIQUE ET LA POROSITE	113
II.3.1.C.	CARACTERISTIQUES HYDRAULIQUES DES SOLS	113
II.3.1.c.1.	LA PERMEABILITE DES SOLS	113
II.3.1.c.1.1	. METHODE DU PERMEAMETRE A CHARGE CONSTANTE	113
II.3.1.C.1.2	. LA PERMEABILITE A L'AIR	115
II.3.1.c.2.	LA COURBE DE RETENTION	117
II.3.1.C.2.1	. CELLULE DE RICHARDS	118
II.3.1.C.2.2	. ENTONNOIR DE BÜCHNER (HANG WATER APPARTUS)	119
II.4.	DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX	124
II.4.1.	LA COLONNE DE DRAINAGE	124
II.4.2.	MONTAGE EXPERIMENTAL POUR L'ETUDE DU TRANSFERT DE MASSE	125
II.4.2.A.	LA COLONNE	125
П.4.2.в.	L'ANALYSE DU GAZ EXTRAIT (PID)	127
II.4.2.C.	LE CALCUL DE LA MASSE EXTRAITE DE POLLUANT	127
II.4.2.d.	L'ANALYSE DU SOL APRES LA DEPOLLUTION	128
II.4.3.	LE PILOTE MPE	128
II.4.4.	EXPERIENCE D'INFILTRATION DE POLLUANT UTILISEE PAR NEUMANN (1992)	131
II.4.4.A.	DESCRIPTIF DE L'EXPERIENCE	131
П.4.4.в.	LES EXPERIENCES REALISEES	133
II.5.	CONCLUSION	134

II.1.Introduction

Dans ce chapitre, les caractéristiques et propriétés des sols et du polluant utilisés sont présentées. Les dispositifs expérimentaux utilisés pour la caractérisation des sols sont décrits. L'analyse granulométrique est effectuée selon la norme en vigueur en France. Deux méthodes de mesure de la perméabilité sont utilisées : une méthode à l'air et une méthode par le perméamètre à charge constante. Les courbes de rétention sont obtenues par le dispositif de la méthode dite « de Richards » et par le dispositif du « Hang Water Apparatus ». Chaque méthode étant plus appropriée en fonction de la taille des grains des échantillons.

Ensuite deux dispositifs expérimentaux sont présentés : un pour l'étude du drainage et l'autre pour l'étude du transfert de masse entre le polluant et la phase gazeuse au cours du procédé SVE. Le dispositif d'étude de transfert de masse permet d'évaluer la concentration du polluant gazeux extrait avec le temps grâce au PID (détecteur à photo-ionisation) relié avec le dispositif d'extraction ainsi que de déterminer le temps nécessaire de réhabilitation du sol (le temps nécessaire pour extraire la quasi-totalité de la quantité des polluants).

Pour l'étude de l'écoulement multiphasique, un pilote réalisé au laboratoire est décrit ainsi qu'une expérience issue de la littérature.

II.2.Le Composé Organique Volatil utilisé

Dans cette étude nous avons choisi d'utiliser le toluène comme composé organique volatil.

Le toluène (ou méthylbenzène) N°CAS : 108-88-3 Formule chimique : C₇H₈

- CH₃

La principale utilisation du toluène est l'industrie des carburants. Il est utilisé en mélange avec le benzène et le xylène pour améliorer l'indice d'octane de l'essence automobile (de 5 à 7%). Il représente 10,5% en fraction massique dans le gasoil.

Ce composé volatil peut causer des problèmes respiratoires et un dysfonctionnement du système nerveux. Ses propriétés chimiques sont regroupées dans le *Tableau II-1*. Ces propriétés rendent le toluène très susceptible de migrer dans l'eau, mais aussi très favorable à la technique d'extraction multiphasique.

Paramètre	Symbole	Valeur
Facteur de conversion (à 20°C et 101,3 kPa)	-	1ppm= 3,83 mg.m ⁻³
Seuil olfactif		2,14 ppm
Masse molaire	M_{β}	92,14 g.mol ⁻¹
Point d'ébullition	$T_{e\beta}$	110,6°C
Pression de vapeur saturant (données HYSYS)	P^o_{geta}	$log(P_{g,\beta}^{o}) = 76,4511 - \frac{6995}{T} - 9,1635 \ln T + 6,225.10^{-6}T^{2}$ en kPa; <i>T</i> températures en K
Masse volumique à 20°C	$ ho_{o}$	0,867 g.cm ⁻³
Densité de vapeur saturant (air = 1)	$ ho_{\!{}_{g,eta}}/ ho_{\!a\!ir}$	3,14
Masse volumique de mélange air/ vapeur saturant	$ ho_{g,eta}$	1,28 g.L ⁻¹
Tension superficielle à 20°C	$\sigma_{\scriptscriptstyle go}$	28,510 ⁻³ N.m ⁻¹
Viscosité dynamique à 20°C	μ_{o}	0,5910 ⁻³ Pa.s
Solubilité dans l'eau à 20°C	$S_{\scriptscriptstyle W,\beta}$	0,515 g.L ⁻¹
Partage octanol/eau à 20°C	Log $K_{ow,\beta}$	2,69
Partage carbone organique/eau à 20°C (INERIS, 2005) (Rahbeh et al., 2007)	$K_{oc,\beta}$	100 L.kg ⁻¹ 182 L.kg ⁻¹
Constante de Henry à 20°C	$K_{H_{eta}}$	$537 \text{ Pa.m}^3 \text{.mol}^{-1}$
Constante de Henry adimensionnelle (US.EPA, 1991)	H_{eta}	0,27
Coefficient de diffusion moléculaire dans l'air à 25°C	$D^o_{_{g,eta}}$	$8,7 \ 10^{-6} \text{m}^2.\text{s}^{-1}$
Coefficient de diffusion moléculaire dans l'eau à 25°C	$D^o_{_{w,eta}}$	$8,6\ 10^{-10} \mathrm{m}^2.\mathrm{s}^{-1}$

 Tableau II-1: Paramètres physico-chimiques du toluène (INERIS, 2005)
 Internet

II.3. Caractérisation des sables

Certains paramètres des équations de l'écoulement et du transport tels que la porosité, la courbe de rétention d'eau (donc les paramètres de van Genuchten), la perméabilité intrinsèque, la dispersivité mécanique, sont nécessaires pour simuler les essais. Il est donc essentiel de les connaître.

La sélection des sols a été effectuée de manière à travailler sur un milieu homogène. Deux types de sable Hostun ont été sélectionnés : un sable fin HN34 et un sable moyen HN0,4/0,8.

II.3.1. Propriétés physiques

II.3.1.a. L'analyse granulométrique des sols

La *Figure II-1* représente les courbes des fréquences cumulés (moyenne statistique), données par le fournisseur SIBELCO et celle obtenue par des essais que nous avons effectués au LGCIE-DEEP selon la Norme X.11-507, pour les deux types de sable **HN34** et **HN0,4/0,8**. Le diamètre moyen d_{50} des particules est de 212 µm, et 610 µm pour HN34 et HN0,4/0,8 respectivement. Le coefficient d'uniformité est de 1,63 et 1,46 respectivement.



Figure II-1: Courbes granulométriques des sables utilisés

Le *Tableau II-2* présente la composition chimique donnée par le fournisseur de ces deux sables. Ces données n'ont pas pu être vérifiées.

Éléments chimiques	Pourcentage sable HN34 (%)	Pourcentage sable HN0,4/0,8 (%)
SiO ₂	> 97,96	> 98,94
Fe ₂ O ₃	< 0,1	< 0,07
Al ₂ O ₃	<0,8	<0,35
K ₂ O	< 0,56	< 0,16
CaO	< 0,06	< 0,05

Tableau II-2: Composition chimique des sables (données fournisseur)

II.3.1.b. La masse volumique et la porosité

Les deux types de sables utilisés en l'occurrence le HN34 et le HN0,4/0,8 se composent de plus de 98% de silice qui a une masse volumique de 2,65 g.cm⁻³. Ainsi les sables ont la même masse volumique ρ_s c'est à dire celle de la silice selon le fournisseur.

La masse volumique apparente ρ_b des sols utilisés a été mesurée expérimentalement (une moyenne de 5 essais). La méthode utilisée consiste à compacter le sable sec délicatement à l'aide d'un récipient à fond plat dans une colonne de dimensions connues. La masse volumique apparente est calculée en rapportant la masse obtenue au volume de la colonne. Cette masse volumique des sols est maintenue pendant tous les essais expérimentaux afin d'éviter l'influence du tassement sur les propriétés hydrodynamiques.

La porosité est en relation étroite avec la masse volumique des granulés ρ_s du sol et sa masse volumique apparente ρ_b selon l'*équation (I-7)* du *chapitre I*.

La teneur en eau volumique à saturation (maximale) θ_{ws} a été déterminée pour 5 échantillons différents pour chaque sable. La valeur moyenne trouvée est de 0,39 et 0,40 pour HN34 et HN0,4/0,8 respectivement. Ces valeurs sont proches aux porosités estimées à partir de la masse volumique sèche apparente qui est de 0,4 pour le HN34 et 0,42 pour le HN0,4/0,8. Néanmoins, lorsque nous saturons un sol, il est difficile de remplir toute la porosité existante sans avoir de l'air piégé dans les petits pores non accessibles à l'eau (porosité fermée).

II.3.1.c. Caractéristiques hydrauliques des sols

II.3.1.c.1. La perméabilité des sols

Deux méthodes différentes de mesure de la perméabilité des sols ont été utilisées : la méthode du perméamètre à charge constante et la méthode de la perméabilité à l'air.

II.3.1.c.1.1. Méthode du perméamètre à charge constante

Nous avons réalisé cette expérience au laboratoire LTDS à l'ENISE pour mesurer la conductivité hydraulique à saturation pour les deux types de sable. Elle repose sur

l'application de la loi de Darcy aux observations de la circulation d'un débit d'eau à travers un échantillon de sol.

Le montage utilisé (*Figure II-2*) pour la mesure de la conductivité hydraulique se compose d'une colonne en PVC de 7,5 cm de diamètre et une hauteur totale de 19 cm. La colonne est remplie de sable. Deux plaques perforées maintiennent le sable dans la colonne. L'entrée et la sortie de la colonne sont reliées à deux réservoirs d'eau. Un manomètre permet de mesurer la perte de charge (charge hydraulique h) à travers le sable



Figure II-2: Perméamètre à charge constante

Trois essais identiques ont été menés pour chaque type de sable afin de s'assurer de la reproductibilité des essais. Les conductivités hydrauliques obtenues sont de 3,22 10^{-04} m.s⁻¹ pour le sable HN34 et 3,15 10^{-03} m.s⁻¹ pour le sable HN0,4/0,8. Ainsi leurs perméabilités intrinsèques sont de (3,28±0,09) 10^{-11} m² et (3,21±0,08) 10^{-10} m², respectivement.

II.3.1.c.1.2. La perméabilité à l'air

Le dispositif se compose (*Figure II-3*) en une colonne en PVC de 30 cm de hauteur et 8 cm de diamètre. La colonne est percée dans quatre endroits afin de permettre l'introduction des capteurs de pressions. La distance qui sépare chacun des quatre trous est de 5 cm. Les capteurs de pression sont reliés à une centrale d'acquisition, elle-même relié à un ordinateur pour enregistrer les pressions. Une pompe à vide « KNF Neuberger N840 FT-18 » permet l'écoulement descendant de l'air à travers la colonne. Un débitmètre placé en bas de la colonne donne des débits allant de 0 à 40 L.min⁻¹ dans les conditions normales de température et de pression (1,013 bar et 20°C). Le réglage du débit est assuré par une vanne placée juste après la pompe à vide.

Deux couches de graviers de 5cm ont été introduites en haut et en bas de la colonne, afin de s'assurer d'une bonne dispersion de l'air et en particulier à l'entrée. Le sol est mis en place à sec et compacté délicatement afin d'avoir la même masse volumique apparente. Trois débits différents ont été testés pour chaque type de sable. Le calcul de la perméabilité à l'air se fait en utilisant la loi de Darcy :

$$\overline{K} = Q_g \frac{\mu_g}{A_e} \frac{1}{\nabla P_g}$$
(II-1)
$$\overbrace{capteurs de pression}^{\text{systeme}} \overbrace{capteurs de pression}^{\text{systeme}} \overbrace{capteurs}^{\text{systeme}} \overbrace{capteurs}^{\text$$

pompe à vide

Figure II-3: Colonne de mesure de la perméabilité à l'air

Les deux *Tableau II-3* et *Tableau II-4* résument les essais du perméamètre à charge constante pour les deux sables HN34 et HN0,4/0,8.

Test	Débit	La perte de charge moyenne	Perméabilité intrinsèque $\overline{ar{K}}$
	[L.min ⁻¹]	[Pa]	[m ²]
1	13,2	1062	3,7 10 ⁻¹¹
2	17,9	1423	3,76 10 ⁻¹¹
3	23,8	1868	3,8 10 ⁻¹¹
		Moyenne Écart type	3,76 10 ⁻¹¹ ± 0,05 10 ⁻¹¹

Tableau II-3: Essais de la perméabilité à l'air pour le sable HN34

 Tableau II-4: Essais de la perméabilité à l'air pour le sable HN0,4/0,8

Test	Débit	La perte de charge moyenne	Perméabilité intrinsèque $\overline{\overline{K}}$
	[L.min ⁻¹]	[Pa]	[m ²]
1	18,8	161	3,49 10 ⁻¹⁰
2	27,4	233	3,51 10 ⁻¹⁰
3	34,3	285	3,59 10 ⁻¹⁰
		Moyenne Écart type	$3,53 \ 10^{-10} \\ \pm \ 0,06 \ 10^{-10}$

Le *Tableau II-5* regroupe nos résultats obtenus par le perméamètre à eau et celui à l'air et ceux donnés par les relations de Breyer (2003) et de Hazen (1892) (*cf. paragraphe.I.4.2.e*).

Tableau II-5: Comparaison entre les différentes méthodes de mesure de la perméabilité intrinsèque

Méthode	Sable HN34	Sable HN0,4/0,8
Perméamètre à l'eau	3,28±0,09 10 ⁻¹¹	3,21±0,08 10 ⁻¹⁰
Perméamètre à l'air	3,76±0,05 10 ⁻¹¹	3,53±0,06 10 ⁻¹⁰
Relation Breyer (2003)	2,84 10 ⁻¹¹	2,98 10 ⁻¹⁰
Relation Hazen (1892)	2,64 10 ⁻¹¹	2,78 10 ⁻¹⁰

On remarque que les résultats de la méthode de mesure par le perméamètre à l'air sont légèrement supérieurs à ceux du perméamètre à l'eau. Les valeurs du littérateur sont légèrement inférieures.

II.3.1.c.2. La courbe de rétention

Les courbes de rétention d'eau, sont associées à la perméabilité et aux comportements mécaniques. Elles jouent donc un rôle important dans la modélisation des sols non saturés. La qualité de la modélisation reste tributaire d'une bonne évaluation des courbes de rétention.

Les différentes méthodes de détermination de la courbe de rétention en laboratoire consistent à établir une série d'équilibres entre le volume de l'eau dans l'échantillon (la teneur en eau) à des pressions capillaires données. Le système 'eau du sol' est généralement en contact hydraulique avec la masse d'eau via une plaque céramique poreuse saturée ou une membrane saturée (papier filtre). A chaque équilibre la teneur en eau est déterminée et associée à une valeur de h_c , cette teneur est donnée par :

$$\theta_w(h_c) = \frac{M_s^i - M_s}{V_t \rho_w}$$
(II-2)

Où :

 $\theta_w(h_c)$: teneur en eau volumique [L³·L⁻³] correspondant à la monté capillaire h_c [L];

 M_s^i : masse du sable mouillé mesurée à l'instant t_i [M].

Chaque paire de données (θ_w , h_c) est un point da la courbe de rétention. Les données peuvent être obtenues en drainage ou en imbibition. Cependant la courbe obtenue représente les courbes initiales de l'hystérésis.

A partir de ces données expérimentales (θ_w , h_c), le code de modélisation inverse **RETC** (RETention Curve program for unsaturated soils) (van Genuchten *et al.*, 1991) est utilisé pour obtenir les paramètres de la courbe de rétention selon différents modèles. Ce logiciel sert à caler les paramètres de la courbe de rétention et de la conductivité hydraulique des sols non saturés à partir de données expérimentales et les principales formulations de la littérature (*cf.1.4.2.f.1*).

Dans ce travail deux méthodes sont utilisées pour déterminer la courbe de rétention caractéristique des sables : La cellule dite « de Richards » et l'entonnoir de Büchner« Hang Water Appartus ».

II.3.1.c.2.1. Cellule de Richards

Cette expérience a été effectuée au LTDS à l'ENISE pour le sable HN34. Le dispositif expérimental (*Figure II-4*) comporte essentiellement une enceinte, bien étanche, alimentée d'air comprimé à pression réglable et contrôlée au moyen d'un manomètre à eau en forme de U. Il permet la vérification de la pression de l'air au sein de l'enceinte.

A l'intérieur de la cellule, une plaque en céramique (B01M3) est placée, ayant une pression d'entrée d'air de 1 bar, une porosité de 0,45et une conductivité hydraulique de 8,6 10⁻⁷ m.s⁻¹. Elle ne peut être désaturée que sous des pressions beaucoup plus fortes que celles appliquées aux sols. La plaque est isolée dans sa partie inférieure par une membrane élastique imperméable, assurant la continuité de l'eau entre la plaque et la conduite de sortie.



Figure II-4: Cellule de Richards

D'abord la plaque est émergée dans un bac d'eau à la pression atmosphérique pendant vingtquatre heures pour la saturer. On la place ensuite dans l'enceinte en lui ajoutant une quantité d'eau à sa surface supérieure (~50mL d'eau). Par la suite, on applique une série de pressions allant de 40 à 100 cmCE, par palier de 20 cmCE. Une fois le drainage atteint une valeur d'environ 50 mL, on commence la procédure de drainage du sol. Au départ, l'échantillon du sol a un volume et une masse connus. Il est pesé à l'état de saturation puis placé sur la plaque poreuse. On augmente ensuite la pression d'air jusqu'à une certaine valeur (la pression d'entrée d'air pour le sol) qui demeure constante durant toute la premier étape et pour une durée de quelques heures. Une fois le débit du drainage réduit à zéro, la pression est augmentée pour la prochaine étape de drainage. Ce processus est arrêté lorsque la différence du volume d'eau drainée entre deux paliers successifs devient nulle (la saturation résiduelle). A la fin de l'expérience, l'échantillon est retiré puis pesé avant et après le séchage dans une étuve portée à une température de 105°C pendant vingt-quatre heures. Ainsi, la teneur résiduelle est déduite (selon la norme X 31-102).

La *Figure II-5* représente l'essai de drainage et la simulation sur le RETC et Sur COMSOL *Annexe B*) pour le sable HN34.La simulation donne les valeurs de paramètres de van Genuchten suivantes : $\alpha_{vg}=2,8 \text{ m}^{-1}$, $n_{vg}=5,8$ et $S_{wr}=0,172$ avec un bon indicateur de concordance de NRMSE (Normalized Root Mean Squared Errors) de 0,27 % et un bon coefficient de corrélation R~1 (NRMSE et R sont définis dans *III.5*)



Figure II-5: Courbe de rétention (drainage) pour le Sable HN34 trouvé par le dispositif de la cellule de Richards et le logiciel RETC

II.3.1.c.2.2. Entonnoir de Büchner (Hang Water Appartus)

Ce dispositif est utilisé dans la littérature par plusieurs auteurs (Sharma *et al.*, 2003 ; Ahmed, 2009; Neumann, 1992) sous le nom de « Hang Water Apparatus » pour évaluer la relation

 P_s -S entre différent couplage des phases non mouillante/mouillante (air-eau, air-PLNA, PLNA-eau).

Le dispositif est composé d'un entonnoir de Büchner de 87 mL muni d'un papier filtre d'une porosité de 11 µm. L'ensemble est relié par un tube souple à une burette graduée (*Figure II-6*).

Le système est testé avant la mise en place du sol, pour s'assurer de l'étanchéité du papier filtre par rapport à l'air. Pour ce faire une dépression de 120 cmCE a été appliquée pendant 24 heures en baissant le niveau de l'eau dans la burette de 120 cm au-dessous de l'entonnoir de Büchner. Ce niveau n'ayant pas changé, l'étanchéité du papier filtre a été donc confirmée.

L'échantillon du sable est pesé à sec (environ 75 g) et posé dans l'entonnoir sur le papier filtre. Il est très important d'assurer un bon contact entre l'échantillon et le papier filtre en tassant faiblement le sable. L'échantillon du sable est laissé se saturer pendant 24 heures. Pour cela la burette est remplie d'eau jusqu'à quelques centimètres au-dessus du niveau de l'échantillon (*cf. Figure II-6*). Le volume de l'eau pour la saturation est calculé par la différence de niveau sur la burette. Un film de nylon perforé est posé sur l'entonnoir et le haut de la burette afin de minimiser l'évaporation de l'eau.

Pour réaliser la courbe de drainage, le niveau de sortie de l'eau (la burette graduée) est abaissé de 0 à 110 cm par palier, ainsi une succion est créée au niveau du papier filtre et l'échantillon se draine jusqu'à ce qu'il atteigne une nouvelle position d'équilibre. La teneur en eau de l'échantillon à cet équilibre correspondant à une valeur de potentiel de la pression capillaire. Elle est déterminée en comparant le volume de l'eau initial introduit à la saturation et le volume de l'eau extrait à chaque équilibre.



Figure II-6: Dispositif Entonnoir de Büchner (Hang Water Apparatus)

En réalisant la procédure inverse, c'est-à-dire, en remontant par paliers le niveau de sortie d'eau à partir d'un échantillon non saturé, il est possible de déterminer la courbe d'imbibition (humidification).



Figure II-7: Courbe de rétention (drainage et imbibition) pour le Sable HN34 obtenue par le dispositif Hang Water

La pression d'entrée d'air pour l'échantillon du sable HN34 est de 28 cmCE (2,8 kPa) et la saturation résiduelle en eau dans le sable est de 16,3%. Cette saturation est atteinte à une pression capillaire d'environ 83 cmCE (8,3kPa). L'hystérésis est évidente entre les courbes de drainage et de mouillage, et l'écart est d'environ 11 cmCE (1,1 kPa) de pression capillaire 50% de saturation d'eau (*cf. Figure II-7*). La simulation des deux courbes par le logiciel RETC donne des résultats satisfaisants.et les valeurs de paramètres de van Genuchten obtenues sont :

- $\alpha_{vo} = 2,55 \text{ m}^{-1} \text{ et } n_{vo} = 6,61 \text{ pour le drainage avec une NRMSE de 3,2% et R=0,996 ;}$
- $\alpha_{vg} = 3.7 \text{ m}^{-1}$, $n_{vg} = 6.4 \text{ et } S_{gr} = 0.035 \text{ pour l'imbibition avec une NRMSE de 4.2% et R=0.995}$.

Par ailleurs, les résultats expérimentaux et simulés de la courbe de drainage par cette méthode sont comparés à ceux obtenu par la cellule de Richards sur le même type de sable HN34. On remarque une bonne concordance en général. Cela peut affirmer la validité de cette méthode pour les sols sableaux. Les valeurs des paramètres de van Genuchten assimilés sont très proches : $\alpha_{vg} = 2,55 \text{ m}^{-1}$ et $n_{vg} = 6,61$, contre $\alpha_{vg} = 2,8 \text{ m}^{-1}$ et $n_{vg} = 5,8$. La légère différence, peutêtre due à la précision de mesure du volume d'eau drainé, le temps pour atteindre l'équilibre et le nombre de points à simuler.



Figure II-8: Courbe de rétention (drainage et imbibition) pour le Sable HN0,4/0,8 obtenue par le dispositif Hang Water

La pression d'entrée d'air pour l'échantillon du sable HN0,4/0,8est de 9 cmCE (0,9kPa) et la saturation résiduelle en eau dans le sable est de 14,2%. Cette saturation est atteinte à une

pression capillaire d'environ 72 cmCE (7,2 kPa). L'écart entre les deux courbes est d'environ 4 cmCE (0,4 kPa) de pression capillaire et à 50% de saturation d'eau (*cf. Figure II-8*). La simulation des deux courbes par le logiciel RETC donne des résultats satisfaisants et les valeurs de paramètres de van Genuchten sont :

- $\alpha_{vg} = 7,74 \text{ m}^{-1}$ et $n_{vg} = 4,27$ pour le drainage avec une NRMSE de 4,5%, R=0,993 ;
- $\alpha_{vg} = 13 \text{ m}^{-1}$, $n_{vg} = 4,7 \text{ et } S_{gg} = 0,048 \text{ pour le mouillage avec une NRMSE de 6,3%, R=0,986.}$

Le Tableau II-6 récapitule les principales caractéristiques des sols utilisés dans ce travail.

Tubieuu 11-6. Curaciensiques principales aes sois anuses					
	Paramètres	Sable HN34	Sable HN0,4/0,8	Méthode	
	<i>d</i> ₅₀ [mm]	0,212	0,61		
	<i>C_u</i> [-]	1,63	1,46	Courbe granulométrie	
	C _c [-]	1,04	1,09	(essai et donnée de fournisseur)	
	Classification	79% sable fin 21% sable moyen	55% sable moyen 45% sable grossier		
	$ ho_b$ [g.cm ⁻³]	$1{,}59\pm0{,}04$	$1,53 \pm 0,06$	Moyenne de 5 essais	
	ρ_s [g.cm ⁻³]	2,65	2,65	Fournisseur	
	$\overline{\overline{W}}$ [,2]	3,28±0,08 10 ⁻¹¹	3,21±0,08 10 ⁻¹⁰	Perméamètre à l'eau	
	K [M]	3,76±0,05 10 ⁻¹¹	3,53±0,06 10 ⁻¹⁰	Perméamètre à l'air	
	φ[-]	$0,\!40\!\pm0,\!015$	$0,42 \pm 0,023$	Moyen 5 essais	
	$ heta_{s}$ [-]	0,39±0,02	0,40±0,03	Entonnoir de Büchner	
	$ heta_{\scriptscriptstyle wr}$ [-]	0,064	0,057	Entoimon de Ducinier	
••• • ••••	α_{vg} [m ⁻¹]	2,55	7,74	Entonnoir de Düchner	
ramage	n _{vg}	6,61	4,27	Entonnon de Buchner	
	α_{vg} [m ⁻¹]	3,7	13		
bibition	n_{vg}	6,4	4,7	Entonnoir de Büchner	
	θ_{gt} [-]	0,014	0,019		
Drainage	α_{vg} [m ⁻¹]	2,8	-		
	n _{vg}	5,8	-	Cellule de Richards	
	$ heta_{wr}$ [-]	0,067	-		

Tableau II-6: Caractéristiques principales des sols utilisés

D

In

II.4.Dispositifs expérimentaux

II.4.1. La colonne de drainage

La colonne de sable disposée verticalement, est constituée d'un tube en PVC de 9cm de diamètre et 106cm de longueur. Elle est équipée de deux grilles fines pour assurer l'homogénéité de drainage vers l'orifice de sortie dont le diamètre intérieur vaut 0,5 cm. Trois tensiomètres de type (UMS T5) situés sur les côtés la colonne à différentes profondeurs 20, 50 et 80 cm par rapport au fond de la colonne (*cf. Figure II-9*) permettent de mesurer en fonction linéaire, le potentiel de pression ainsi que la charge hydraulique jusqu'à 100 kPa ou la pression capillaire jusqu'à -85 kPa. Les capteurs sont connectés à une centrale d'acquisition (DL6), elle-même connecté à un ordinateur muni d'un logiciel d'analyse des résultats. Ces capteurs sont étalonnés et calibrés selon le manuel d'utilisation avant chaque essai.

Le remplissage de la colonne se fait en compactant le sol après l'avoir divisé en 10 couches de 10 cm. La masse du sol dans chaque couche a été calculée (environ 1 kg) en se basant sur la masse volumique apparente souhaitée.

Le haut de la colonne est fermé par un couvercle muni d'un orifice de 0,5 cm de diamètre.

Avant toute expérience la colonne doit être saturée en eau. Il faut donc chasser l'air et minimiser l'effet de la teneur en air résiduel (l'air piégé dans les petits pores). Ce rôle est joué par la saturation de la colonne par le CO_2 . Pour ce faire le bas de la colonne est relié à une bouteille de CO_2 assurant l'alimentation de la colonne. Une fois la colonne saturée en CO_2 l'eau est injectée par une pompe péristaltique pour la saturer cette fois-ci en eau. Le CO_2 étant soluble dans l'eau, la saturation de la colonne est ainsi assurée.

Une fois la colonne de sable saturée, et les tensiomètres indiquant des valeurs positives, la phase de drainage peut commencer. Le niveau de sortie de l'eau est fixé à 4 cm et la masse de l'eau drainée cumulée est mesurée par une balance comme indiqué sur la figure ci-dessous.



Figure II-9: Colonne de drainage

II.4.2. Montage expérimental pour l'étude du transfert de masse

II.4.2.a. La colonne

La colonne est constituée d'un tube en acier de 10 cm de diamètre intérieur, de 15cm de hauteur et de 1,3 cm d'épaisseur. Le fond de la colonne est constitué d'un disque d'acier de 1,3 cm d'épaisseur soudé à la colonne. Un couvercle métallique de même épaisseur permet la fermeture de la colonne par boulonnage. L'étanchéité est assurée par un joint torique. Le sable est placé entre deux couches des graviers (de diamètres de 2 à 4 mm) de 1,6 cm d'épaisseur, afin de répartir le flux de gaz de façon homogène. Une grille métallique (0,05 cm) sépare les graviers du sol et de la colonne.

Le remplissage de la colonne et la réalisation de la pollution ont été effectués de façon à ce que la perméabilité et la porosité du sol, en même temps que la pollution soient homogènes. La colonne est remplie de sol en quatre couches. Chaque quart de la masse (environ 300 g) de sable est déposé dans la colonne et compacté en le pilonnant de façon régulière à l'aide d'un récipient métallique à fond plat. La pollution et le mouillage de chaque couche par le toluène et l'eau se fait par introduction du volume correspondant au taux de pollution et la teneur en eau souhaités. Le liquide est déversé à la pipette en quatre points de la surface de la couche, régulièrement disposés grâce à l'utilisation d'un gabarit. La colonne est tournée de 45° chaque fois avant le remplissage et la pollution de l'autre couche pour assurer l'homogénéité de la dispersion de la pollution et l'eau dans le sol. La pollution est réalisée le plus rapidement possible afin qu'il y ait le moins d'évaporation possible du polluant, ensuite la colonne est fermée hermétiquement par le couvercle métallique et un joint. L'échantillon est laissé au repos pendant au moins deux jours pour assurer la réparation homogène du polluant.

En fonction de l'opération souhaitée, l'extraction sous vide ou le Venting, la colonne est reliée soit à une pompe à vide « KNF Neuberger N840 FT-18 » soit à une bouteille d'azote. Afin de limiter les éventuels processus d'adsorption, les tuyaux utilisés sont en Téflon (PTFE) et/ou en acier.

La sortie de la colonne est reliée à un cyclone et un débitmètre volumique à boule muni d'une vanne de régulation assurant un débit de 0 à 40 L.min⁻¹. Un analyseur PID utilisant la méthode de détection par photo-ionisation permet de mesurer la concentration des polluants en phase gazeuse de l'air extrait (*cf. Figure II-10*). Par ailleurs l'air ou l'azote sont humidifiés avant d'entrer dans la colonne afin d'éviter l'évaporation de l'eau (pour les essais 2 et 4).



Figure II-10: Dispositifs expérimentaux pour la mesure de transfert de masse

II.4.2.b. L'analyse du gaz extrait (PID)

La concentration en contaminants du gaz extrait est mesurée par un Détecteur à Photo-Ionisation modèle DL102.

Le modèle PID DL102est équipé d'une lampe de 10,6 eV qui fournit une réponse globale en lecture directe de plus de 200 composés ionisables (des COVs), et capable de mesurer une concentration totale des polluants allant jusqu'à 3000 ppm. Cette gamme de concentration est étendue en utilisant une option du fournisseur par une sonde de dilution permettant d'aller à une concentration de plus de 40000 ppm. L'analyseur est muni d'une pompe de prélèvement d'un débit de 200 mL.min⁻¹, d'un microprocesseur qui permet d'afficher et enregistrer automatiquement les données qui peuvent être récupérées plus tard sur PC via une interface informatique (Texmate-Viewer). La station de charge comporte une liaison vers le PC de type RS232. Le *Tableau II-7* résume les principales caractéristiques du PID utilisé.

Modèle	PID DL102
Autonomie [h]	12
Précision [ppm]	0,1 si [polluant] < 100 et 1 si [polluant] > 100
gamme de mesure (ppm)	à 3000.(à 40000 avec sonde de dilution)
Temps de réponse [s]	2pour t90
Choix de l'intervalle d'enregistrement	De 2s à 10min
Capacité d'enregistrement	>7000 point

Tableau II-7: Caractéristiques du PID utilisé

Avant toute expérimentation, les PID suivent un processus de vérification. Pour le calibrage du PID, le choix du gaz de référence recommandé par le constructeur, l'isobutylène, a été respecté. Cette vérification est à nouveau réalisée à la fin de chaque expérience. Toutes les valeurs sont consignées et permettent ainsi de constater une éventuelle dérive des appareils et de déclencher ainsi des opérations de maintenance-nettoyage de la lampe et/ou de la chambre d'ionisation.

II.4.2.c. Le calcul de la masse extraite de polluant

A partir de la mesure de la concentration du polluant dans le flux de gaz à la sortie et de la mesure du débit volumique total du gaz extrait, il est possible de calculer le débit massique instantané du polluant extrait :

$$\dot{m}_{g,\beta}^{i} = C_{g,\beta}^{i} Q_{g}^{CNTP}$$
(II-3)

 \dot{m}_{g}^{i} : débit massique du composé β en phase gazeuse à l'instant t_{i} [M.T⁻¹];

$$C_{g,\beta}^{i}$$
: concentration massique du composé β à l'instant t_{i} [M.L⁻³];

 Q_g^{CNTP} : débit volumique du gaz extrait aux CNTP [L³.T⁻¹].

La masse cumulée pour une durée donnée de traitement est obtenue par l'intégration du débit massique instantané en polluant extrait sur la durée du traitement. La méthode d'intégration souvent employée est la méthode des trapèzes et elle est surtout convenable pour les tests où la fréquence de mesure de la concentration du gaz extrait est élevée.

La masse cumulée est calculée comme suit :

$$\dot{M}_{g,\beta} = Q_g^{CNTP} \sum_{i=1}^n \left(\frac{\left(C_{g,\beta}^i + C_{g,\beta}^{i-1} \right) \left(t_i - t_{i-1} \right)}{2} \right)$$
(II-4)

Où :

 $\dot{M}_{g,\beta}$: masse cumulée du composé β extrait par le flux gazeux [M] ;

n : nombre de mesures sur la durée du traitement.

II.4.2.d. L'analyse du sol après la dépollution

La détermination de la quantité de toluène et de l'eau qui restait dans le sol après chaque traitement s'effectue en introduisant un échantillon du sol, dans une étuve chauffée à 105 °C pendant 24 heures. La différence de masse de l'échantillon avant et après la mise en étuve est considérée comme étant la masse du polluant dans le sol pour les pilotes 1 et 3 et le somme de polluant et de l'eau pour les pilotes 2 et 4.

$$M_l = M_s^i - M_s \tag{II-5}$$

 M_1 : masse du liquide totale (polluant/eau) restant dans le sol [M].

II.4.3. Le Pilote MPE

Ce dispositif est conçu durant la troisième année de la thèse pour étudier l'infiltration des polluants organiques dans le sable et le procédé d'extraction multiphasique, mais

malheureusement des problèmes d'ordre technique ont un peu compliqué l'obtention de certains résultats. Ce qui nous a contraint dans certains cas d'utiliser les résultats expérimentaux trouvés dans la littérature.

Le dispositif consiste en une cellule de sable (type Hele-Show) de 85 cm de hauteur, 65 cm de longueur et 8 cm d'épaisseur. Elle a été construite en polypropylène d'une épaisseur de 2 cm, le polypropylène est choisi afin de limiter l'effet de sorption et l'agressivité de la PLNA (les BTEX agressent les matériaux en plastique). L'une des faces du dispositif (65 cm de hauteur, 52 cm de longueur et 4 mm d'épaisseur) est en verre permettant un suivi visuel de la pollution ou la dépollution du sol (*cf. Figure II-11*).

Le bas de la cellule est relié à un réservoir d'eau dont la hauteur est maintenue constante par un système d'alimentation schématisé dans la *Figure II-11*.



Figure II-11: Dispositif de l'extraction multiphasique MPE

Le volume de la cuve est déterminé en remplissant cette dernière par de l'eau jusqu'à une hauteur de 80 cm. La masse nécessaire du sable HN0,4/0,8 est pesée à sec pour avoir la masse volumique apparente souhaitée. La cuve est ensuite remplie de sable par couches successives de 8 cm de hauteur. Le remplissage et le compactage du sable sont faits de telle sorte à éviter la stratification des couches et éviter la présence de vide entre les couches

Le sable est ensuite saturé en eau par le bas grâce à une pompe péristaltique à un débit très faible de moins de 3 mL.min⁻¹.

Après la saturation, la cuve est reliée au réservoir haut à charge constante, et laissée drainer pendant une journée.

Avant de commencer l'infiltration, un entonnoir est placé en haut au centre de la cellule, l'ouverture de l'entonnoir est placée dans le sable à une profondeur de 5 cm pour minimiser l'évaporation du polluant. Cet entonnoir est relié à un réservoir de toluène teinté en rouge par un colorant organique : le *Sudan III* (Alfa Aesar) d'une concentration de 0,8 g(Sudan)/L de toluène, par une pompe péristaltique à un débit fixe de 71,4 mL.min⁻¹ pendant 14 minutes.

Des photos sont prises toutes les deux minutes au cours de l'infiltration par une caméra numérique de qualité de 12 méga pixels, ces photos sont ensuite comparées aux résultats du modèle numérique.

Cette installation, n'a pas pu donner l'ensemble des résultats souhaités à cause de certains problèmes de construction qui font que le polluant pendant l'infiltration, au lieu de s'étaler sur la surface de la nappe il passe entre le sable et les parois de la cuve comme le montre la *Figure II-12*.

L'autre problème rencontré est la déformation de la cuve. En effet cette déformation due au poids du sable risque de casser la vitre. Ainsi des supports en métal sont ajoutés pour limiter cette déformation.

Les premières expériences réalisées ont permis le suivi de l'écoulement de la pollution dans le sol jusqu'à l'atteinte de la frange capillaire. Quand la phase PLNA atteint les côtés du dispositif, elle coule d'une manière gravitaire à travers un espace de liaison entre la vitre et les parois du dispositif, l'expérience est alors arrêtée.

L'autre problème rencontré est l'écoulement du polluant sur les parois quand il arrive au contact de la frange capillaire comme illustré dans la *Figure II-12*. La vitre étant collée sur les parois extérieures d'une épaisseur de 2 cm, crée au niveau des coins un volume mort où le sable n'est pas accessible. Quand la phase PLNA (qui flotte sur la frange capillaire) arrive à ces coins, elle cesse de flotter, descend et engendre la formation de doigts dans la frange et la nappe de l'eau (fingering).



Figure II-12: Photo montrant la défaillance du dispositif MPE

Ces problèmes d'ordre expérimental nous ont poussés à utiliser les résultats des travaux de Neumann (1992) qui a utilisé une cuve similaire et effectué des expériences de drainage et d'infiltration. D'autant plus que nos résultats restent qualitatifs contrairement à ceux de Neumann qui a mesuré la pression capillaire et la saturation en plusieurs endroits de la cuve.

Même si nous n'avons utilisé que les résultats expérimentaux de Neumann pour vérifier notre modèle, nous avons jugé utile de faire une description détaillée de son installation.

11.4.4. Expérience d'infiltration de polluant utilisée par Neumann (1992)

II.4.4.a. Descriptif de l'expérience

Une cellule de sable a été conçue pour effectuer la modélisation «en deux dimensions» d'infiltration de PLNAL dans le sol (cellule type Hele-Show). La cellule a 120 cm de hauteur, 120 cm de longueur et 10 cm d'épaisseur. Elle a été construite en Plexiglas d'une épaisseur de 0,635 cm (¼ pouce) (*cf. Figure II-13*). La hauteur et la longueur du réservoir ont été choisies de sorte que les effets de parois latérales peuvent être réduits au minimum dans les expériences.

Un réservoir d'eau de 5cm de hauteur est placé au-dessous du sable au fond de la cellule. Le réservoir et le sable sont séparés par un plancher perforé et une membrane géotextile. La

sortie du réservoir est reliée à une vanne et un manomètre permettant de déterminer la hauteur de la nappe d'eau au cours de l'expérience.

Le sable utilisé est un sable de silice de qualité 30/50. Des expériences sont effectuées au cours de son étude sur ce sable afin de déterminer ses caractéristiques physiques.

Le Tableau II-8 résume les caractéristiques et les tests menés.

	Paramètres	sable 30/50	Méthode
	<i>d</i> ₅₀ [mm]	0,41	
	<i>d</i> ₁₀ [mm]	0,33	
	<i>d</i> ₆₀ [mm]	0,42	ASTM 2487
	<i>C</i> _{<i>u</i>} [-]	1,3	
	C _c [-]	1	
	$ ho_s$ [g.cm ⁻³]	2,65	ASTM D854
	$ ho_b$ [g.cm ⁻³]	$1,533 \pm 0,035$	8 tasts (tassamant diffárants)
	φ[-]	$0,421 \pm 0,013$	o tests (tassement unrefents)
	$\overline{\overline{K}}$ [m ²]	3,46 10 ⁻¹¹	4 ASTM D2434+ 4 charge constant
	$ heta_{\scriptscriptstyle S}$ [-]	0,408	Funnal da Buchnar
	$ heta_{\scriptscriptstyle wr}$ [-]	0,046	Fuilliei de Bucilliei
Ducinaga	α_{rg} [m ⁻¹]	3,01	Eurnal da Puahnar
Drainage	n _{vg}	12,01	Fuiniei de Buchner
mbibition	α_{rg} [m ⁻¹]	5,19	Funnel de Buchner
	n _{vg}	4,365	Fuiniei de Duciniei

Tableau II-8: Caractéristique du sable 30/50

10 sondes de tensiomètre P1-P10, mesurant la pression capillaire, et 16 sondes R1-R16 mesurant la saturation en phase aqueuse par la conductivité électrique, ont été installées selon une grille carrée de 7,5cm de côté (*cf. Figure II-13*). Les sondes ont été concentrées au centre du réservoir où se trouve le panache PLNAL. Les données des sondes ont été enregistrées par un système d'acquisition de type Sciemetrics relié à un ordinateur.



Figure II-13: Dispositif expérimental de Neumann (Neumann, 1992)

II.4.4.b. Les expériences réalisées

Chaque expérience d'infiltration de PLNAL est précédée par un simple drainage pour atteindre le niveau de la nappe d'eau souhaité (fixé à 21 cm de hauteur). Le drainage dure entre 2 et 3 heures. Les données des capteurs de tensiomètre et de conductivité sont enregistrées pendant le drainage.

La PLNAL utilisée dans les expériences est le Soltrol 130 (Chevron Phillips).Cette huile a été choisie en raison de sa densité, sa faible solubilité et sa très faible volatilité à l'air.

Paramètre	Valeur
No. CAS	68551-17-7
Masse volumique à 20°C	0,753 g .cm ⁻³
Viscosité dynamique à 20°C	1,45 10 ⁻³ Pa.s
Tension superficielle à 20°C	19,1 10 ⁻² N.m ⁻¹
Tension interfaciale (Soltrol-eau) à 20 $^{\circ}\mathrm{C}$	29,5 10 ⁻² N.m ⁻¹
Pression de vapeur à 38°C	346 Pa (très faible)
Densité de vapeur saturant (air = 1)	3
Solubilité dans l'eau	Négligeable

Tableau II-9: Propriétés physico-chimiques du Soltrol 130

Quatre tests d'infiltration de Soltrol 130 ont été effectués dans cette étude. Le volume de la PLNAL versée est estimé de sorte qu'il soit suffisant pour former une lentille bien définie sur la surface de la nappe d'eau, et qui se propage assez latéralement pour atteindre l'ensemble des sondes placées dans la cellule. Le volume utilisé est de 2,68 L pour le test 1 et 2,22 L pour les autres tests.

Neumann constate dans son rapport que les tests 2 et 4 donnent des résultats cohérents, où la répartition des Soltrol est homogène, et ces deux tests sont modélisables.

La hauteur de la nappe a été définie comme une condition aux limites (charge constante) en laissant l'eau s'écouler librement à travers le réservoir inférieur sur un tube de sortie fixé à la hauteur de la nappe souhaitée. L'eau en sortie a été recueillie lors de l'expérience d'infiltration pour surveiller le volume total d'eau déplacée. La sortie a été suivie plusieurs heures après la fin d'infiltration de la PLNAL.

Le Soltrol 130a été teint en rouge avec du *Soudan IV*, afin permettre le suivi de l'évolution visuelle du panache avec le temps, en le traçant sur la paroi transparente de la cuve avec un marqueur.

II.5.Conclusion

Avant de faire des expériences de MPE il faut faire un bon choix du sol et du polluant et les caractériser. Dans ce travail le choix est fait sur deux sables d'Hostun : un fin et un moyen HN34 et le HN0,4/0,8 comme sol et sur le toluène comme polluant. Il s'agit de sables ayant une distribution granulométrique homogène. Les perméabilités intrénsiques sont respectivement de l'ordre de 3,5 10⁻¹¹ m² et 3,3 10⁻¹⁰ m² déterminées par deux méthodes expérimentales. Les courbes de rétention de l'eau déterminées par la méthode de la cellule de Richards et par la méthode du Hang Water Apparatus ont permis, en utilisant le logiciel RETC, de déterminer les paramètres de van Genuchten.

Un descriptif du pilote mis en place et du protocole utilisé pour les 4 essais de transfert de masse entre PLNA et phase gazeuse a été détaillé dans ce chapitre.

Ainsi nous pouvons faire les expériences de drainage, d'infiltration et de transfert de masse au cours de SVE/Venting avec les dispositifs décrits et les confronter aux résultats des modélisations. Les résultats expérimentaux obtenus par Neumann (1992) nous permettront aussi de vérifier la partie écoulement multiphasique de notre modèle.

CHAPITRE III. : MODÉLISATION

Chapitre III.: MODELISATION

III.1.	INTRODUCTION	137
III.2.	HYPOTHESES SIMPLIFICATRICES	138
III.3.	L'ECHELLE REPRESENTATIVE DU MILIEU SOUTERRAIN	139
III.4.	LA MISE EN EQUATIONS	139
III.4.1.	L'EQUATION DE LA MASSE GLOBALE (L'ECOULEMENT MULTIPHASIQUE)	140
<i>III.4.2</i> .	LOI DE DARCY POUR UN SYSTEME MULTIPHASIQUE	140
III.4.3.	L'EQUATION DE CONSERVATION DE MASSE PAR ESPECE (EQUATION DE TRANSPORT)	140
<i>III.4.4</i> .	L'ETAT DE LA PHASE	141
III.4.5.	RELATIONS CONSTITUTIVES	141
III.4.5.A.	LE SYSTEME DIPHASIQUE (AQUEUSE ET GAZEUSE)	142
Ш.4.5.в.	LE SYSTEME TRIPHASIQUE (PHASE AQUEUSE, PLNA ET PHASE GAZEUSE)	142
III.4.6.	LE TRANSFERT DE MASSE ENTRE PHASES	144
III.4.6.A.	TRANSFERT DE MASSE PLNA/PHASE GAZEUSE (VOLATILISATION)	145
Ш.4.6.в.	TRANSFERT DE MASSE PLNA/ PHASE AQUEUSE (SOLUTION)	145
III.4.6.C.	TRANSFERT DE MASSE PHASE AQUEUSE/PHASE GAZEUSE (STRIPPING)	145
III.4.6.D.	TRANSFERT DE MASSE PHASE AQUEUSE/PHASE SOLIDE (SORPTION)	145
III.5.	ÉVALUATION GLOBALE DU MODELE	146
III.6.	OUTIL DE MODELISATION COMSOL	147
III.7.	CONCLUSION	148

III.1. Introduction

La modélisation conceptuelle d'une MPE doit être fondée sur la compréhension de ses processus à modéliser ainsi que de leurs relations mutuelles avec la conception du système MPE. Cette modélisation décrit les différents processus physico-chimiques au cours de la MPE traduits par des formulations mathématiques robustes. Les processus prédominants de la MPE sont l'écoulement multiphasique, le transport multicomposés et le transfert non-équilibré entre phases dans le sol (Albergaria *et al.*,2008). Le modèle doit donc prédire en plus de ces processus, la distribution de la PLNA dans le sol. Il doit avoir la capacité de :

- déterminer la configuration optimale de la MPE (DPE, TPE, bioSlurping) à mettre en place ;
- prédire les débits d'air et déterminer le vide à appliquer pour la meilleure conception ;

- prédire les débits d'extraction de l'eau souterraine ;
- évaluer les différents emplacements des puits et les crépines afin d'obtenir le nombre et les emplacements optimaux ;
- estimer la masse et la concentration des contaminants à éliminer du sol au cours du temps dans les différentes phases (aqueuse, gazeuse, libre et solide), et déterminer ainsi le temps de traitement et l'efficacité de la MPE.

III.2. Hypothèses simplificatrices

Les processus impliqués dans les opérations de la MPE sur les terrains agissent simultanément et sont inter dépendants. La compréhension pertinente et l'adoption des hypothèses simplificatrices pour la simulation mathématique sont toujours nécessaires pour obtenir des solutions précises sur l'efficacité de l'opération dans le temps pour un cas d'application particulier. Généralement, la modélisation des processus d'écoulement multiphasique et du transport est basée sur les hypothèses physiques simplificatrices suivantes :

- l'eau est le fluide mouillant préférentiel, la phase PLNA est le fluide mouillant intermédiaire, la phase gazeuse est le fluide non-mouillant; la mouillabilité diminue dans l'ordre de l'eau à la PLNA au gaz (Parker *et al.*,1987);
- la sorption sur la phase solide ne se produit que par la phase aqueuse (Kaluarachchi *et al.*,1990);
- le milieu poreux est incompressible et la porosité est constante ;
- la loi de Darcy est valable pour un système d'écoulement multiphasique ;
- le système est isotherme et a une température T [K];
- la migration vers la phase gazeuse due à l'évaporation de l'eau est négligeable ;
- l'hystérésis dans la courbe de rétention est négligeable et le processus est considéré toujours comme du drainage ;
- les masses volumiques de l'eau et de la phase PLNA sont constantes ;
- la sorption par la phase gazeuse est négligée ;
- le modèle de la biodégradation est négligé.

III.3. L'échelle représentative du milieu souterrain

Pour résoudre un problème de la physique en utilisant les outils mathématiques de solution qu'offrent les équations différentielles, il est nécessaire d'avoir un milieu continu pour établir des relations aux dérivées partielles. Dans les milieux poreux, les propriétés physiques (porosité, perméabilité, ...) sont discontinues au niveau microscopique. La dérivation de solutions de problèmes d'écoulement doit donc toujours faire appel, implicitement ou explicitement, à la définition d'un Volume Élémentaire Représentatif (VER) (J.-F. Daian,2013). A l'intérieur du VER les propriétés moyennes des fluides et des matériaux sont supposées uniformes et continues. Le VER doit être suffisamment grand (ADEME,2007) pour que des propriétés globales moyennes puissent être définies sans que les fluctuations d'un pore à l'autre ne soient significatives. Le VER doit cependant être suffisamment petit pour que les variations d'un paramètre dans le domaine d'étude puissent être représentées par des fonctions continues.

III.4. La mise en équations

Généralement, la modélisation de la MPE consiste en la mise en équations des processus par des formulations mathématiques et en résolvant le système par des équations différentielles régissant numériquement avec un code informatique pour un scénario réel ou simplifié de la MPE. D'une manière générale, le système des équations mathématiques pour l'écoulement multiphasique et le transport isotherme des contaminants dans les milieux poreux résultent de la combinaison de plusieurs principes et lois physiques tels que :

- la conservation de la masse globale ;
- la conservation de la masse par espèce ;
- la loi de Darcy et son application étendue au sein de l'écoulement multiphasique ;
- les équations d'état ;
- les relations constitutives ;
- le transfert de masse entre phases.

III.4.1. L'équation de la masse globale (l'écoulement multiphasique)

En termes de principe de la continuité, la forme générale d'une équation différentielle partielle continue pour l'écoulement s'exprime par :

$$\frac{\partial (\varphi S_{\alpha} \rho_{\alpha})}{\partial t} + \nabla [\rho_{\alpha} \vec{q}_{\alpha}] = Q_{\alpha}^{s} + \sum_{\beta} E_{\alpha,\beta} + \sum_{\beta} R_{\alpha,\beta}$$
(III-1)

 Q_{α}^{s} : terme puits/ source de la phase α [M.L⁻³ T⁻¹] ;

 $\sum_{\beta} E_{\alpha,\beta}$: terme de somme des transferts vers la phase α pour tous les composés [M.L⁻³.T⁻¹]; $\sum_{\beta} R_{\alpha,\beta}$: terme de somme des réactions géochimiques dans la phase α pour les composés [M.L⁻³.T⁻¹].

Dans le cas d'un sol pollué par une PLNA, trois équations de bilan globale de masse sont incorporées dans le système d'équations aux dérivées partielles, et pour chaque phase mobile présente dans le sol (gazeuse, aqueuse, PLNA).

III.4.2. Loi de Darcy pour un système multiphasique

Le débit d'écoulement (vitesse de Darcy) dans un système multiphasique est calculé par la loi de Darcy :

$$\vec{q}_{\alpha} = \frac{\overline{K} k_{r\alpha}}{\mu_{\alpha}} (\nabla P_{\alpha} - \rho_{\alpha} g \nabla z)$$
(III-2)

Ainsi l'équation de la continuité pour chaque phase devient :

$$\frac{\partial (S_{\alpha} \varphi \rho_{\alpha})}{\partial t} + \nabla \left[\frac{\overline{K} k_{r\alpha}}{\mu_{\alpha}} (\nabla P_{\alpha} - \rho_{\alpha} g \nabla z) \right] = Q_{\alpha} + \sum_{\beta} E_{\alpha,\beta} + \sum_{\beta} R_{\alpha,\beta}$$
(III-3)

III.4.3. L'équation de conservation de masse par espèce (équation de transport)

La conservation de la masse d'un composé β (le transport du composé dans la phase α) à l'échelle de VER est généralement décrite par une équation de convection-dispersion (CDE) :

$$\frac{\partial}{\partial t} \left[\varphi S_{\alpha} C_{\alpha,\beta} \right] + \nabla \left[\vec{q}_{\alpha} C_{\alpha,\beta} \right] - \nabla \left[\varphi S_{\alpha} \overline{D}_{\alpha,\beta} \nabla C_{\alpha,\beta} \right] = \sum_{\alpha} E_{\alpha,\beta} + Q_{\alpha,\beta} + R_{\alpha,\beta}$$
(III-4)

 $\sum_{\alpha} E_{\alpha,\beta} : \text{terme de somme des transferts du composé } \beta \text{ vers les phases } [\text{M.L}^{-3}.\text{T}^{-1}];$ $R_{\alpha,\beta} : \text{terme de réaction géochimique du composé } \beta \text{ dans la phase } \alpha \text{ [M.L}^{-3}.\text{T}^{-1}].$

Le tenseur de dispersion hydrodynamique dépend de la structure des écoulements, de la saturation et de la géométrie du milieu poreux :

$$\overline{\overline{D}}_{\alpha\beta.} = \tau_{\alpha} D_{\alpha\beta}^{o} \delta_{ij} + \left[\alpha_{T} \left| \vec{U}_{\alpha} \right| \delta_{ij} + (\alpha_{L} - \alpha_{T}) \frac{U_{\alpha i} U_{\alpha j}}{\left| \vec{U}_{\alpha} \right|} \right]$$
(III-5)

la tortuosité de la phase $\alpha \tau_{\alpha}$ est calculée par le modèle de Millington (1959).

Pour un composé β ; quatre équations de transport dans chaque phase sont incorporées dans le système de résolution par les EDPs, un pour chaque phase : gazeuse, aqueuse, PLNA et solide.

III.4.4. L'état de la phase

On a supposé que les phases aqueuse, PLNA et solide sont incompressibles et ont une masse volumique constante. Par contre la phase gazeuse est compressible et sa masse volumique est liée à sa pression et la concentration en polluants, ce qui peut s'exprimer par le modèle du gaz parfait :

$$\rho_{g}(P_{g}, C_{g,\beta}) = \frac{P_{g}}{RT} \left[\frac{\rho_{air} + \sum_{\beta=1}^{N} C_{g,\beta}}{\frac{\rho_{air}}{M_{air}} + \sum_{\beta=1}^{N} \frac{C_{g,\beta}}{M_{\beta}}} \right]$$
(III-6)

III.4.5. Relations constitutives

Afin de résoudre les équations de continuité, un système de fermeture permettant de lier les perméabilités relatives en phases aux saturations et donc aux pressions est utilisé. Ce qui

dépend du nombre des phases présentes dans le VER. Deux systèmes sont distingués : le système diphasique et le système triphasique.

III.4.5.a.Le système diphasique (aqueuse et gazeuse)

Le modèle de van Genuchten-Mualem (van Genuchten,1980) est utilisé pour lier la saturation et la perméabilité relative à la pression capillaire pour chaque phase dans le système diphasique. La phase mouillante est la phase aqueuse ainsi la pression capillaire est : $P_c = P_g - P_w$ et la saturation en phase aqueuse est exprimée par :

$$\overline{S}_{w}(P_{cgw}) = \frac{S_{w} - S_{wr}}{1 - S_{wr}} = \begin{bmatrix} \left[1 + (\alpha P_{cgw})^{n_{vg}}\right]^{-m_{vg}} & ; P_{cgw} > 0\\ 1 & ; P_{cgw} \le 0 \end{bmatrix}$$

$$S_{g} = 1 - S_{w}$$
(III-7)

La perméabilité relative pour les deux phases est exprimée par :

$$k_{rw}(\bar{S}_{w}) = \bar{S}_{w}^{0.5} \left[1 - (1 - \bar{S}_{w}^{1/m_{vg}})^{m_{vg}} \right]^{2} k_{rg}(\bar{S}_{w}) = (1 - \bar{S}_{w})^{0.5} \left[1 - \bar{S}_{w}^{1/m_{vg}} \right]^{2m_{vg}}$$
(III-8)

III.4.5.b. Le système triphasique (phase aqueuse, PLNA et phase gazeuse)

Le modèle de Parker et Lenhard (1987) est introduit dans le modèle pour le système triphasique où la saturation de chaque phase peut être calculée par les relations suivantes:

$$\overline{S}_{l}(P_{cgo}) = \frac{S_{w} + S_{o} - S_{wr} - S_{or}}{1 - S_{wr}} = \begin{bmatrix} \left(1 + \left(\beta_{go} \alpha_{vg} P_{cgo}\right)^{n_{vg}}\right)^{-m_{vg}} & ; P_{cgo} > 0\\ 1 & ; P_{cgo} \le 0 \end{bmatrix}$$

$$\overline{S}_{w}(P_{cow}) = \frac{S_{w} - S_{wr}}{1 - S_{wr}} = \begin{bmatrix} \left(1 + \left(\beta_{go} \alpha_{vg} P_{cow}\right)^{n_{vg}}\right)^{-m_{vg}} & ; P_{cow} > 0\\ 1 & ; P_{cow} \le 0 \end{bmatrix}$$

$$S_{g} = 1 - S_{o} - S_{w}$$

$$\overline{S}_{or} : \text{saturation résiduelle effective en phase PLNA} \quad \overline{S}_{or} = \frac{S_{or}}{1 - S_{wr}}.$$
(III-9)

 $P_{cgo} = P_g - P_o$; $P_{cow} = P_o - P_w$ sont les pressions capillaires entre les phases gazeuse/PLNA et PLNA /aqueuse respectivement ;

Thèse -INSA de Lyon. 2015

 β_{go} et β_{ow} sont des coefficients de mise à l'échelle d'un système diphasique à un système triphasique ; qui peuvent être approximativement estimée parle rapport (Lenhard, 1992) :

$$\beta_{go} = \frac{\sigma_{go} + \sigma_{ow}}{\sigma_{go}} \beta_{ow} = \frac{\sigma_{go} + \sigma_{ow}}{\sigma_{ow}}$$
(III-10)

 σ_{gw} . σ_{go} . σ_{ow} : tensions interfaciales entre les phases, gazeuse/aqueuse, gazeuse/PLNA et PLNA/aqueuse respectivement.

Lenhard *et al.*(2004) ont testé expérimentalement un modèle pour mesurer la saturation résiduelle effective en phase PLNA, cette saturation dépend de l'historique de la saturation :

$$\overline{S}_{or} = \overline{S}_{or}^{\max} (\overline{S}_t^{\max} - \overline{\overline{S}}_w)^{0.5} (1 - \overline{\overline{S}}_w)^{1.5}$$
(III-11)

Où :

 \overline{S}_{or}^{\max} : saturation résiduelle effective maximale en PLNA [-];

 \overline{S}_{t}^{\max} : saturation effective maximale historique en phase liquide totale [-].

Dans ce modèle la perméabilité relative de chaque phase est calculée par les formules suivantes :

$$k_{rw}(\overline{S}_{w}) = \overline{S}_{w}^{0.5} \left[1 - \left(1 - \overline{S}_{w}^{1/m_{vg}} \right)^{m_{vg}} \right]^{2}$$

$$k_{rw}(\overline{S}_{w}, \overline{S}_{t}) = \left(\overline{S}_{t} - \overline{S}_{w} \right)^{0.5} \left[\left(1 - (\overline{S}_{w} + \overline{S}_{or})^{1/m_{vg}} \right)^{1/m_{vg}} - \left(1 - \overline{S}_{t}^{1/m} \right)^{m_{vg}} \right]^{2}$$

$$k_{rg}(\overline{S}_{t}) = \left(1 - \overline{S}_{t} \right)^{0.5} \left[1 - \left(1 - \overline{S}_{t}^{1/m_{vg}} \right)^{m_{vg}} \right]^{2}$$
(III-12)

Kaluarachchi *et al.* (1992) ont proposé, en imposant à la pression d'entrée de la phase PLNA ($\overline{S}_o > 0$) une condition de classer un endroit (nœud) en tant que système triphasique :

$$P_{o} \geq \begin{bmatrix} \frac{\beta_{gw}P_{g} + \beta_{ow}P_{w}}{\beta_{gw} + \beta_{ow}} & ;P_{g} > P_{w} \\ P_{w} & ;P_{g} \leq P_{w} \end{bmatrix}$$
(III-13)

Pour éviter les oscillations numériques associées à des modifications d'un système diphasique gazeuse/aqueuse à un système triphasique gazeuse/aqueuse/PLNA, une fois qu'un endroit
dans le domaine (un nœud) est considéré comme triphasique, il ne sera plus autorisé à revenir à un système diphasique.

Afin d'aider à la convergence de l'équation de la de la continuité de la phase PLNA qui est une équation nulle partout dans le sous-domaine à un système diphasique, une diffusion artificielle est ajoutée à cette équation. Cette diffusion artificielle est déterminée de façon à ce qu'elle n'influence pas la qualité du calcul. Elle est de l'ordre de 10^{-9} Pa⁻¹ de la variation de la pression (le paramètre calculé) avec le temps $(\frac{dP_o}{dt})$.

D'autre part, le modèle sur COMSOL traite les équations de la continuité des phases de façon implicite ainsi que leurs pressions (P_w , P_g , P_o) et traite les saturations et leurs perméabilités relatives (S_w , S_g , S_o , k_{rw} , k_{rg} , k_{ro}) de façon explicite.

Étant donné que la phase PLNA n'est pas encore présente dans le sous-domaine à un système diphasique, ainsi sa saturation et sa perméabilité relative doivent être nulles partout. Quand elle commence à s'infiltrer dans les premières mailles du sous domaine, la condition ajoutée pour basculer la maille de système diphasique à triphasique et le traitement explicite de la perméabilité relative, bloque l'écoulement de la phase PLNA.

Ainsi pour résoudre ce problème, la perméabilité relative de la phase PLNA, qui aune valeur entre 0 et1, n'est pas considérée nulle mais à une valeur très petite de l'ordre de 10⁻⁴. Cette valeur améliore la convergence de l'équation de continuité et n'influence pas les résultats.

III.4.6. Le transfert de masse entre phases

Les modèles de transfert de masse entre phases sont discutés dans le *paragraphe I.5.*4 du *chapitre I.* Ceux utilisés dans l'établissement du modèle numérique sont des modèles cinétiques de premier ordre. Ils ont la formule mathématique suivante :

$$E_{\alpha 1-\alpha 2,\beta} = \varphi S_{\alpha} \lambda_{\alpha_1-\alpha_2,\beta} \left(C_{\alpha,\beta}^{Sat} - C_{\alpha\beta} \right)$$
(III-14)

 $E_{\alpha 1-\alpha 2,\beta}$: terme du transfert de masse enter phase α_1 et α_2 pour un composé β [M.L⁻³.T⁻¹]; $\lambda_{\alpha 1-\alpha 2,\beta}$: coefficient de transfert de enter phase α_1 et α_2 pour un composé β [T⁻¹]; $C_{\alpha,\beta}^{Sat}$: concentration à l'équilibre (à la saturation) du composé β dans la phase α [M.L⁻³].

III.4.6.a. Transfert de masse PLNA/phase gazeuse (volatilisation)

Plusieurs modèles mathématiques de transfert de masse PLNA/phase gazeuse sont testés au cours de la simulation de l'extraction sous vide/Venting. Les résultats de la simulation sont comparés avec les résultats expérimentaux qui sont présentés dans le *paragrapheIV.4.2* du chapitre *IV*:

$$E_{o-g_{\beta}} = \varphi S_g \lambda_{o-g,\beta} \left(\overline{C}_{g,\beta}^{sat} - C_{g,\beta} \right)$$
(III-15)

La concentration à l'équilibre (à la saturation) est calculée par l'équation (I-41).

III.4.6.b. Transfert de masse PLNA/ phase aqueuse (solution)

L'échange entre phase PLNA/Phase aqueuse est calculé par loi de Fick :

$$E_{o-w,\beta} = \varphi \ S_w \ \lambda_{o-w,\beta} \left(S_{w,\beta}^{eff} - C_{w,\beta} \right)$$
(III-16)

Où le coefficient cinétique global de transfert PLNA/aqueuse incorporé dans le modèle est calculé par la corrélation empirique de (Miller *et al.*,1990) :

$$Sh_{o-w,\beta}^{\ m} = \frac{\lambda_{o-w,\beta}^{\ d} d_{50}^2}{D_{w,\beta}^o} = 12(\varphi - \theta_o)Re_{w,\beta}^{0,75} \theta_o^{0,6} Sc_{w,\beta}^{0,5}$$
(III-17)

III.4.6.c. Transfert de masse phase aqueuse/phase gazeuse (stripping)

Le modèle empirique d'estimation du coefficient cinétique globale utilisé est celui de Chao *et al. (1998)*:

$$E_{w-g,\beta} = \varphi S_{w} \lambda_{w-g,\beta} \left(C_{w\beta} - \frac{C_{g\beta}}{H_{\beta}} \right) = \varphi S_{w} 10^{-2.49} D_{g,\beta}^{o} U_{g}^{0.16} U_{g}^{0.84} d_{50}^{0.55} H_{\beta}^{-0.61} \left(C_{w,\beta} - \frac{C_{g,\beta}}{H_{\beta}} \right)$$
(III-18)

III.4.6.d. Transfert de masse phase aqueuse/phase solide (sorption)

Le modèle empirique d'estimation du coefficient cinétique globale de transfert aqueuse/solide utilisé est celui de Brusseau *et al.* (1989):

$$E_{w-s,\beta} = \varphi S_w \lambda_{w-g,\beta} \left(C_{w,\beta} - \frac{C_{s,\beta}}{K_{d,\beta}} \right) = \varphi S_w Exp(0,301 - 0.668 \log(K_{d,\beta})) \left(C_{w\beta} - \frac{C_{s,\beta}}{K_{d,\beta}} \right)$$
(III-19)

III.5. Évaluation globale du modèle

Pour comparer les résultats mesurés avec ceux simulés, des indicateurs de concordance sont utilisés à savoir : RMSE (Root Mean Square Error) et NRMSE (Normalized Root Mean Square Error).Ces indicateurs, souvent utilisés dans la littérature, sont donnés par les formules suivantes :

$$RMSE = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^{N} \left[y_{i-exp} - y_{i-mod} \right]^{2}}{N}}$$
(III-20)

NRMSE =
$$\frac{RMSE}{\max(y_{i-\exp}) - \min(y_{i-\exp})}$$
 (III-21)

Et le coefficient de corrélation R, est donné par la formule :

$$\mathbf{R} = \sqrt{1 - \frac{\sum_{i=1}^{N} \left[y_{i-\exp} - y_{i-\max} \right]^{2}}{\sum_{i=1}^{N} \left[y_{i-\exp} - \overline{y}_{i-\exp} \right]^{2}}}$$
(III-22)

Où :

N : nombre de points comparés ;

 y_{i-exp} : valeur expérimentale ;

 y_{i-mod} : valeur obtenue par l'application du modèle ;

 $\overline{y}_{i-\exp}$: valeur expérimentale moyenne ;

 $\max(y_{i-\exp}), \min(y_{i-\exp})$: valeur expérimentale maximale et minimale.

La description d'un processus réel par un modèle mathématique est meilleure pour une valeur de RMSE et NRMSE proche de 0 et pour des valeurs du coefficient de corrélation R proches de 1.

Pour quantifier systématiquement la qualité des résultats des modèles à une échelle logarithmique; pour évaluer les valeurs faibles de concentration dans la phase diffusionelle, une formule d'erreur NSSRD (Normalized Sum of the Squared Relative Deviations) est proposée par plusieurs auteurs (Gidda, 2003 ; Nguyen *et al.*, 2013 ; Zhao, 2007) :

$$\text{NSSRD} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^{N} \left\{ \frac{\log(C_{g_-\text{exp}}^i) - \log(C_{g_-\text{mod}}^i)}{\log(C_{g_-\text{exp}}^i)} \right\}^2$$
(III-23)

 $C_{g_exp}^{i}$, $C_{g_mod}^{i}$ concentration expérimentale et calculée dans le gaz extrait en mg.L⁻³, respectivement ;

Les paramètres de concordance RMSE, NRMSE, et R, sont utiles pour évaluer la concordance globale du modèle avec les résultats expérimentaux, où les faibles concentrations dans la phase diffusionnelle n'ont pas un grand effet. Par contre le NSSRD à l'échelle logarithmique considère que les faibles concentrations ont le même effet que les concentrations importantes sur la concordance ainsi il est utile pour l'étude de l'effet de la traîné (tailing).

III.6. Outil de modélisation COMSOL

COMSOL Multiphysics[®] anciennement FEMLAB, est un logiciel scientifique interactif de calcul d'ingénierie et de simulation multiphysique basé sur la méthode des éléments finis en utilisant la plateforme de MATLAB. Il permet de résoudre de façon couplée plusieurs systèmes d'équations aux dérivées partielles fortement non linéaires avec des géométries complexes et répond aux phénomènes d'interaction entre les différents processus simulés (Écoulement, diffusion-dispersion, thermique, mécanique, électromagnétisme, acoustique, ...etc.).

COMSOL incorpore toute la dernière méthode de simulation numérique par éléments finis en ce qui concerne des multiples options de types et tailles de maille d'élément et la discrétisation de domaines spatiaux et temporels. Les solveurs directs ou itératifs sont pré-conditionnés afin de répondre aux besoins de divers paramètres complexes de modélisation.

Les différentes étapes pour la simulation d'un modèle mathématique sur COMSOL sont les suivantes :

- initialisation d'un modèle mathématique (choisir les types d'EDP) ;
- la mise en place du modèle (la géométrie et le maillage) ;
- l'entrée des constantes et expressions (les équations des fermetures) ;
- l'entrée des conditions initiales et aux limites.
- choisir la méthode de la résolution numérique (Résoudre les EDPs) ;
- calibrage par rapport aux données connues ;
- post-traitement des résultats de la simulation numérique.

La discussion précédente dans le *I.6.2* sur les codes informatiques a montré qu'un logiciel commercial spécialisé (comme MOFAT-2D, UTCHEM et SIMUSCOPP) n'est pas flexible et a des limites d'être modifié quant à l'intégration des processus complexes définis par l'utilisateur. COMSOL étant un logiciel général de modélisation par la méthode des éléments finis a surmonté les aspects limitants mentionnés ci-dessus qui limitaient la simulation numérique des processus complexes. En outre, COMSOL a l'avantage pour le post-traitement des résultats de simulation de les exploiter dans un univers de MATLAB.

III.7. Conclusion

Le modèle de l'écoulement multiphasique et de transport sous l'hypothèse de non équilibre local (transfert de masse cinétique) nécessaire à la simulation de l'extraction multiphasique se compose de trois EDPs pour l'écoulement (phase gazeuse, phase aqueuse et PLNA) et quatre EDPs pour le transport et ce pour chaque composé β soit sept équations aux dérivées partielles à résoudre pour chaque composé β . Ce nombre peut être réduit à tout moment selon les conditions des sous-domaines, du transport ou encore de l'équilibre entre phases. C'est le cas par exemple de la simulation de la SVE/Venting où une seule phase mobile est considérée et donc la suppression de deux équations d'écoulement (PLNA et phase aqueuse), ou négliger l'adsorption sur le sable (pas de matière organique) et donc la suppression d'une équation de transport. L'autre cas est l'adoption de l'hypothèse de l'équilibre local entre phases *LEA* dans le modèle. Les quatre équations des phases se réduisent à une seule équation de la phase mobile, en l'occurrence la phase gazeuse dans le cas de la SVE :

$$\varphi(S_g + \frac{S_w}{H_{\beta}} + \frac{\rho_b S_w K_{d,\beta}}{\varphi H_{\beta}}) \frac{\partial}{\partial t} C_{g,\beta} + \nabla \left[q_g C_{g,\beta} \right] - \nabla \left[\varphi S_g \overline{D}_{g,\beta} \nabla C_{g,\beta} \right] = -\varphi \rho_o \frac{\partial}{\partial t} (\omega_{o,\beta} S_o) + Q_{g\beta} + R_{g,\beta}$$
(III-24)

A partir de la concentration calculée de composé β dans la phase gazeuse, les concentrations en phase aqueuse et solide peuvent être déduites.

CHAPITRE IV. : RÉSULTATS ET DISCUSSIONS

Chapitre IV. : RESULTATS ET DISCUSSIONS

IV.1.	INTRODUCTION	151
IV.2.	MODELE D'ECOULEMENT DIPHASIQUE	
IV.2.1.	COLONNE DU DRAINAGE	
IV.2.2.	RESULTATS DE DRAINAGE DES TRAVAUX DE NEUMANN(1992)	155
IV.3.	MODELE DE L'ECOULEMENT MULTIPHASIQUE	
IV.3.1.	EXPERIENCES D'INFILTRATION DE PLNAL DE NEUMANN (TEST 4)	
IV.3.2.	RESULTATS DE L'EXPERIENCE D'INFILTRATION EFFECTUEE EN LABORATOIRE	167
IV.4.	ÉTUDE DU TRANSFERT DE MATIERE	170
IV.4.1.	INTRODUCTION	170
IV.4.2.	EXTRACTION SOUS VIDE/VENTING	170
IV.4.2.A.	COEFFICIENT DE TRANSFERT	170
IV.4.2.B.	DETERMINATION DU COEFFICIENT DE DISPERSION LONGITUDINAL A_L	177
IV.4.2.C.	RESULTATS EXPERIMENTAUX	
IV.4.3.	MODELISATION DE SVE/VENTING	
IV.4.3.A.	Essai 1	
IV.4.3.B.	Essai 2	
IV.4.3.C.	Essai 3 et 4	
IV.4.3.d.	ÉVALUATION DE LA MASSE EXTRAITE DES PHASES	
IV.5.	CONCLUSION	

IV.1. Introduction

Dans ce chapitre, le travail effectué pour la vérification du modèle est présenté. Il consiste à vérifier en premier temps les différentes parties du modèle MPE :

- Écoulement diphasique
- Écoulement triphasique
- Transfert de masse

Chaque partie est vérifiée en n'utilisant que les équations qui la modélisent et en les confrontant aux résultats expérimentaux.

IV.2. Modèle d'écoulement diphasique

IV.2.1. Colonne du drainage

L'écoulement diphasique dans la colonne de drainage (*cf. paragraphe II.4.1*) est simulé par résolution des équations d'écoulement pour deux phases (aqueuse et gazeuse) et comparé aux résultats d'expérience sur le sable HN34.

Deux équations de continuités (équation III-1) de deux phases sont activées et utilisées dans ce modèle ; représentées par deux équations EDPs couplées où les paramètres initiales de résolution sont P_g et P_w .

Pour coupler les deux équations et simuler l'effet capillaire entre les deux phases, le modèle de van Genuchten–Mualem est utilisé *(équation III-7)*. Les conditions initiales et aux limites sont données dans la *Figure IV-1*.

Dans l'expérience, l'eau sort par le bas de la colonne par un orifice de 5 mm de diamètre. Le niveau de l'eau à la sortie du tuyau est gardé à 4 cm du bas de la colonne. La masse de l'eau drainée est mesurée par une balance.

La géométrie consiste en un seul sous-domaine axisymétrique. Il représente le sable HN34, avec un orifice de sortie en bas de 5 mm de diamètre. 3376 mailles triangulaires de type Lagrange-quadratique sont utilisées, le maillage est bien raffiné au niveau de l'orifice.

Pour simuler le drainage, plusieurs conditions aux limites pour la sortie d'eau (orifice de sortie) sont testées et comparées avec les résultats expérimentaux.

Le premier type de la condition aux limites testé pour la sortie d'eau est une pression constante de type Dirichlet :

$$P_{w-sortie} = 0.04 \rho_w g = cte \tag{IV-1}$$

Le deuxième type de condition aux limites testé pour la sortie est un débit de drainage variable. Ce débit est fonction de la pression de la phase aqueuse et la résistance extérieure à l'écoulement où la pression extérieure est une pression de 4 cmCE. Cette résistance (dans l'orifice, les deux grilles et le tuyau) est représentée par quelques centimètres de hauteur de plus (L_x) du même sable HN34 :

Ainsi la condition de sortie de type Neumann est :

$$q_{w-sortie} = \frac{\overline{\overline{K}}}{\mu_w L_x} (0.04 \rho_w^* g - P_w)$$
(IV-2)

 L_x : Paramètre équivalant de la résistance à l'écoulement en longueur de sable HN34 [L]



Figure IV-1: Géométrie et les conditions initiales et aux limites de la colonne de drainage

Le *Tableau IV-1* résume l'évaluation d'erreur de plusieurs simulations avec les différentes conditions aux limites en comparant avec les résultats expérimentaux du débit de drainage :

Condition any	$P_w = cte$	Débit sortie variable $q_w = \frac{\overline{K}}{\mu_w L_x} (0, 04 \rho_w g - P_w)$						
limites de la sortio	$P_w = 4$	$L_x = 1$	$L_x = 1,3$	$L_x = 1,4$	<i>L_x</i> = 1,5	$L_x = 1,6$	$L_x = 3$	
minites de la sol de	cmCE	cm	cm	cm	cm	cm	cm	
RMSE [mL.min ⁻¹]	18,4	4,2	2	1,5	1,1	1,83	4,44	
NRMSE [*] [%]	60,1	13,6	6,6	4,87	3,58	6	14,5	
R [-]	-	0,853	0,968	0,9824	0,991	0,973	0,831	

 Tableau IV-1: Évaluation de l'erreur pour les différentes simulations (débit de drainage)

^{*}NRMSE ; est calculé pour un débit expérimental maximal de 30,6 mL.min⁻¹ et minimale de 0

Les *Figure IV-2*, *Figure IV-3* et *Figure IV-4* représentent les résultats expérimentaux et ceux des deux modèles (P_w =4 cmCE et L_x =1,5 cm) pour le débit du drainage, le volume de l'eau drainé cumulé et les pressions des tensiomètres, avec leurs indices de concordance RMSE, NRMSE et R.



Figure IV-2: Débit du drainage en fonction du temps ; expérience, modèle L_x =1,5cm et modèle

 $P_{w} = 4 \ cmCE$



Figure IV-3: Volume d'eau drainé cumulé en fonction du temps ; expérience, modèle L_x =1,5cm et modèle P_w =4 cmCE



Figure IV-4: Pressions des tensiomètres en fonction du temps ; expériences, modèle L_x =1,5 cm et modèle P_w =4 cmCE

Ces figures montrent la bonne concordance entre les résultats du modèle (la condition aux limites $L_x = 1,5$) avec les résultats expérimentaux (NRMSE<3,6% et R>0,99). Par contre les résultats du modèle avec la condition aux limites $P_w = 4$ cmCE sont toujours en avance sur les résultats expérimentaux, ainsi cette condition n'est pas valable comme une condition simple du drainage.

IV.2.2. Résultats de drainage des travaux de Neumann(1992)

Dans cette partie, nous avons choisi de modéliser le test 4 pour l'infiltration du Sotrol 130 des travaux de Neumann (1992). A cet effet, trois équations de continuité pour les phases aqueuse, gazeuse et PLNA avec les relations constitutives de *P-S-k_r* pour le système triphasique détaillées dans le *paragrapheIII.4.5* sont activées. Le drainage de l'eau avant le test a aussi été modélisé.

En effet, la modélisation du drainage a pour but de chercher les conditions aux limites les plus adaptées et vérifiées par les résultats expérimentaux. La surface de la nappe d'eau est fixée à un certain niveau (21 cm de référence d'altitude). Cependant la sortie de l'eau se situe à 20 cm en bas de l'altitude de référence, cette partie est remplie du même sable. De plus une plaque perforée et une membrane géotextile sont mises en bas de la cellule pour homogénéiser le drainage. Ce matériel retarde le drainage de l'eau puisqu'il influence le débit de sortie de l'eau. Ainsi une simple condition aux limites pour la sortie de l'eau de type Dirichlet ne suffit pas.

Plusieurs conditions aux limites de type Neumann sont testées pour chercher les meilleurs résultats en comparant avec les résultats expérimentaux. La meilleure condition obtenue était du même type pour la simulation de drainage de la colonne dans laquelle a été rajouté un paramètre d'ajustement k_x :

$$q_{w-sortie} = \frac{k_x \overline{K}}{\mu_w L_a} (0.21 \rho_w^* g - P_w)$$
 (IV-3)

Où :

 L_a : hauteur du sable entre la sortie et la référence (20 cm) (*cf. Figure II-13*);

 k_x : est le paramètre d'ajustement du drainage. Ce paramètre qu'on a appelé paramètre d'ajustement représente en fait la résistance à l'écoulement due aux matériels utilisés.

Les caractéristiques du sable30/50 et de Soltrol 130 utilisés dans les expériences sont données respectivement dans les *Tableau II-8* et *Tableau II-9*.

La cellule utilisée par Neumann est représentée par un sous-domaine 2D rectangulaire de 88,7cm de hauteur, et de 120 cm de langueur, avec 5158 mailles triangulaires de type linéaire. Les conditions initiales et aux limites sont schématisées dans la *Figure IV-5* ci-dessous.



Figure IV-5: Géométrie, conditions initiales et conditions aux limites pour le drainage de l'eau (Neumann 1992, test 4)

Le meilleur facteur d'ajustement k_x obtenu est de 0,18, Cette valeur correspond à une erreur minimale NRMSE de 6% sur la totalité des sondes de conductivité (saturations) et de 4% sur la totalité de tensiomètres (pressions de l'eau).

La *Figure IV-6* représente une comparaison entre les résultats du modèle et ceux mesurés sur les sondes de conductivité, avec l'évaluation d'erreur pour chaque sonde et l'évaluation d'erreur sur la totalité des sondes.



Figure IV-6: Résultats expérimentaux et du modèle de drainage (capteurs de saturation en fonction du temps) (Neumann 1992, test 4)

Avec cette condition aux limites les résultats obtenus sont cohérents en comparant aux résultats expérimentaux.

Par contre on remarque qu'au début du drainage, une avance du modèle par rapport à l'expérience de quelques minutes pour les sondes R5 et R9. Ces deux sondes se trouvent à 30 cm et 15 cm du niveau de la nappe respectivement. On peut expliquer cette avance par un éventuel volume mort ou par le fait que le facteur d'ajustement n'est peut-être pas constant.

La valeur d'erreur totale RMSE de 0,05sur les sondes de conductivités est comparable à la sensibilité des sondes repérées sur les sondes R12- R15 variant entre 0,97 et 1,01 au lieu de 1 normalement ; soit une différence de saturation de 0,04.



Figure IV-7: Résultats expérimentaux et du modèle de drainage (Tensiomètres) (Neumann 1992)

Pour les sondes de tensiomètres, on remarque que le modèle au début est en avance sur les résultats expérimentaux de quelques minutes, mais ensuite, il est capable de simuler la totalité du drainage.

Pour les sondes P2 et P4, les pressions capillaires obtenues (-26,3 et -25,4 cmCE respectivement) par le modèle sont supérieures aux valeurs réelles (-32,1 et -30,7 cmCE). Ceci peut s'expliquer par le fait qu'à ces points-là la saturation résiduelle est atteinte et la perméabilité relative devient proche de zéro et donc l'écoulement est nul.

La valeur d'erreur totale RMSE de 5,23 cmCE est comparable avec la sensibilité des sondes de tensiomètres qui est de l'ordre de 3 cmCE.

La *Figure IV-8* ci-dessous montre les résultats de la saturation et de la pression capillaire en fin de drainage (140min) en fonction de la hauteur par rapport au niveau de la nappe obtenus par le modèle et ceux donnés par chaque sonde.

Il y a une parfaite concordance entre le modèle et les capteurs de conductivité en fin de drainage. Par contre le modèle est en avance pour les tensiomètres P2 et P4 comme cité auparavant.



Figure IV-8: Conditions finales à t= 140 min, modèle et expérience (saturation et pression)

IV.3. Modèle de l'écoulement multiphasique

IV.3.1. Expériences d'infiltration de PLNAL de Neumann (test 4)

L'essai d'infiltration de Soltrol (*paragraphe II.4.4.b*) mené par Neumann 1992, est simulé par le modèle d'écoulement multiphasique ; trois équations de continuité des phases PLNA, aqueuse et gazeuse. Le drainage de l'eau qui anticipe l'expérience est aussi simulé (*IV.2.2*). Cette simulation a pour but de chercher les conditions initiales et aux limites pour l'essai d'infiltration du Soltrol.

Les conditions initiales pour les phases gazeuse et aqueuse sont gardées : celles de la fin du drainage de l'eau ; après une journée de drainage à t=1440 min. Par contre la condition initiale de la phase PLNA est extraite des résultats expérimentaux pour le test 4 à t=0 ; où ils sont approximativement donnés par l'équation :

$$P_{o}(x, y, 0) = (0, 14 - y)\rho_{w}g$$
 (IV-4)

Les conditions initiales et aux limites sont schématisées sur la Figure IV-9 ci-après.



Figure IV-9: Géométrie, conditions initiales et conditions aux limites pour l'infiltration du Soltrol (Neumann 1992, test 4)

La condition aux limites de la sortie de l'eau est gardée la même que celle du drainage. La condition aux limites du point d'infiltration est de type Neumann est fixée à un débit constant de 20,4 mL.min⁻¹ pendant le temps d'infiltration de 104 min, ce qui représente un volume de 2120 mL de Soltrol infiltré.

Les différents résultats obtenus sont représentés dans les figures qui suivent, que ce soit pour les pressions capillaires, pour la propagation du Soltrol que pour le volume d'eau drainé.

La *Figure IV-10* représente l'évolution de la pression capillaire en fonction du temps pour 4 tensiomètres. Ces tensiomètres ont été choisis pour leur emplacement dans la cellule.

On remarque tout d'abord une très bonne présentation des résultats expérimentaux de Neumann par notre modèle quel que soit le tensiomètre utilisé.

Dans la zone non saturée du sol (Tensiomètre P1 et P4), quel que soit le tensiomètre utilisé on trouve la même allure des courbes. En effet au début de l'infiltration et dès que le polluant arrive au contact du tensiomètre, la pression capillaire augmente brutalement. Ensuite pendant le temps de l'infiltration (environ 105 minutes) la quantité de polluant qui arrive quitte le tensiomètre pratiquement en même temps, ce qui est représenté par un palier. A la fin de l'infiltration le polluant quitte le tensiomètre et la pression capillaire chute jusqu'à une pression capillaire correspondant à la saturation résiduelle en polluant.



Figure IV-10: Pression de Soltrol en fonction du temps (expériences et modèle) pour les tensiomètres (P1, P4, P5 et P7)

Quant aux deux autres tensiomètres (tensiomètres P5 et P7), l'évolution de la pression capillaire en fonction du temps suit la même allure que celle des deux autres tensiomètres mais sans l'existence du palier. Ceci s'explique par le fait que ces deux tensiomètres sont situés dans la frange capillaire et le polluant en arrivant au niveau du tensiomètre, reste présent en partie. La présence de la frange capillaire empêche le polluant de descendre et donc il s'étale. C'est pourquoi la pression capillaire n'est pas constante pendant l'infiltration et le palier trouvé pour les autres tensiomètres n'est plus là. La pression va donc chuter et se stabiliser à une pression capillaire correspondant à une saturation constante.

On remarque aussi que les valeurs de la pression capillaire sont différentes pour les tensiomètres car ils ne se trouvent pas au même niveau et la pression capillaire de l'eau est différente. Ceci se confirme par les résultats très proches des tensiomètres 5 et 7 qui sont au même niveau mais à 2 endroits différents.

Sur les *Figures IV-11(A-L)* est représentée l'évolution de la propagation du Soltrol donnée par Neumann (1992) et celle donnée par le modèle respectivement. Même si la superposition des photos sur les résultats de Neumann (1992) est difficile, la comparaison visuelle montre que là encore le modèle représente bien les résultats expérimentaux.





Figures IV-11(A-L) : Évolution de la propagation en Soltrol ; comparaison entre résultats du modèle avec celles de l'expérience

Les *Figure IV-12* et *Figure IV-13* présentent la saturation en eau en fonction du temps pour les différentes sondes de conductivité. La *Figure IV-12* rassemble les résultats des sondes R12, R13 et R14 qui sont toutes les trois dans la frange capillaire à 8,5 cm du niveau de la nappe. Quant à la *Figure IV-13*, elle rassemble les résultats des sondes R7, R8 et R9 placées à 23,5 cm du niveau de la nappe. Les sondes R2 et R5 qui se trouvent dans la zone non saturée du sol sont aussi représentées dans la même figure.



Figure IV-12: Saturation en eau en fonction du temps (expérience et modèle) pour les sondes de conductivité (R12, R13 et R14)



Figure IV-13: Saturation en eau en fonction du temps (expériences et modèle) pour les sondes de conductivité (R2, R5, R7, R8 et R9)

En regardant ces figures le modèle représente bien les résultats expérimentaux de Neumann pendant l'arrivée du polluant, mais une différence est constatée entre le modèle et l'expérience à partir de l'étalement du polluant. Sauf pour les sondes R2 et R5 dont la saturation reste constante car on est à saturation résiduelle en eau. Le polluant prend la place de l'air et non de l'eau.

Dans les résultats de Neumann, une chose apparait anormale est le fait que les sondes, situées au même niveau donnent des valeurs différentes à la fin de l'expérience alors qu'elles doivent donner la même saturation pour un sol homogène comme celui utilisé dans ces travaux. En effet à un moment donné on doit se retrouver en équilibre et la saturation devrait être la même à n'importe quel niveau sauf aux endroits à saturation résiduelle en eau.

Les résultats obtenus précédemment concernant les tensiomètres et l'évolution de la propagation du Soltrol ont été bien représentés par le modèle, il n'y a pas de raison de trouver une différence concernant la saturation.

Nous pensons que les résultats obtenus par Neumann sont valables car ce sont des expériences répétées. Par contre l'installation utilisée ne représente pas tout à fait la réalité du terrain. En effet quand le polluant prend la place de l'eau, cette eau ne disparait pas pour autant. Pendant l'étalement du polluant il est tout à fait normal que la saturation en eau augmente à cause de la capillarité. Or dans l'expérience de Neumann l'eau quitte l'installation par le bas à travers un manomètre mesurant la pression totale.

Et c'est justement pour cela que dans notre installation nous avons pris en compte ce problème en ajoutant notre système de réservoir (*cf. Figure II-11*). Notre modèle prend en compte ce phénomène par une condition aux limites du type de l'équation (*IV-4*).

La *Figure IV-14* montre les résultats du modèle et ceux de Neumann (1992) concernant la quantité infiltrée du Soltrol et la quantité de l'eau drainée. On remarque une représentation parfaite des résultats par le modèle concernant l'infiltration.



Figure IV-14: Volume d'eau drainée et Soltrol infiltré en fonction du temps (expériences et modèle)

IV.3.2. Résultats de l'expérience d'infiltration effectuée en laboratoire

Un essai d'infiltration de toluène a été effectué sur notre dispositif MPE. Cet essai a été simulé avec le modèle d'écoulement multiphasique. Trois équations de continuité concernant les phases PLNA, phase aqueuse et phase gazeuse ont été utilisées.

Le pilote est décrit dans le *II.4.3*. Comme le montre la *Figure II-11* du même chapitre, la hauteur de la nappe dans le pilote est gardée constante à 10 cm du bas de la cellule. Ceci est la condition initiale et aux limites pour la phase aqueuse. Quant à la phase gazeuse elle est à pression atmosphérique. Pour la phase PLNA la pression initiale est supposée égale à l'équation :

$$P(x, y, 0) = \rho_o g(0 - y)$$
 (IV-5)

L'infiltration de polluant est faite par un point central à une profondeur de 5 cm sous la surface du sable pour éviter l'évaporation de toluène, à un débit constant de 67 mL.min⁻¹ pendant 14 min, ce qui fait 1 litre de toluène infiltré dans le pilote. Ce débit est choisi après une simulation de manière qui donne une saturation en PLNA de l'ordre de 0,5 au début de l'infiltration. La perméabilité intrinsèque du sable HN0,4/0,8 étant de l'ordre de 4,2 10^{-10} m². Pour un débit de 21 mL.min⁻¹ la perméabilité doit être de l'ordre 4 10^{-11} m².

Les conditions initiales et aux limites sont schématisées dans la Figure IV-15 ci-dessous.



Figure IV-15: Géométrie, conditions initiales et conditions aux limites pour l'infiltration du Toluène (dispositif MPE)

Les *FiguresIV-16(A-H)* représentent l'évolution de la propagation en toluène pendant l'infiltration. Les résultats expérimentaux sont comparés aux résultats du modèle.

On remarque que le modèle simule bien l'infiltration pendant les 16 premières minutes, c'està-dire jusqu'à l'arrivée du toluène au niveau de la nappe où malheureusement le passage du toluène entre la paroi de la cellule et le sable fausse les résultats expérimentaux comme déjà expliqué dans le paragraphe IV-2 du chapitre II. Ceci ne nous empêche pas de conclure que notre modèle simule bien la réalité (*FiguresIV-16 (A-H)*) et qu'il peut simuler aussi l'infiltration au niveau de la nappe (*FiguresIV-16 H*).



FiguresIV-16(A-H) : Évolution de la propagation en toluène ; comparaison entre résultats du modèle avec celles de l'expérience (le cadre en blanc dans le modèle correspond à la photo)

IV.4. Étude du transfert de matière

IV.4.1. Introduction

Compte tenu de la difficulté de faire des expériences en extraction multiphasique, nous nous proposons d'étudier le transfert de matière en extraction sous vide (SVE), pour des débits d'extraction allant de 600 à 3600 mL.min⁻¹. La pompe d'extraction ne pouvant descendre audessous de 600 mL.min⁻¹nous utiliserons pour ce débit le Venting. En effet les deux procédés sont similaires du point de vue phénomènes de transfert de matière. En outre, vu la complexité du transfert entre toutes les phases présentes, le lien entre elles et le manque de travaux dans la littérature, nous nous contentons de proposer un modèle sur le transfert de matière entre PLNA et la phase gazeuse. Nous utilisons le Venting et l'extraction sous vide.

IV.4.2. Extraction sous vide/Venting

IV.4.2.a. Coefficient de transfert

Le procédé d'extraction sous vide/Venting est un élément très important de la technique d'extraction multiphasique, où le but est de restaurer la zone non saturée du sol en enlevant par l'évaporation la PLNA à saturation résiduelle piégée dans ces zones. L'évaporation des polluants se fait par la circulation de l'air sous un gradient de pression dans les pores au contact avec la PLNA. En effet les polluants se trouvent dans cette zone sous plusieurs formes : dissoutes dans l'eau à saturation résiduelle, adsorbées sur la matière organique du sol, évaporées dans l'air et en phase libre à saturation résiduelle. Normalement, dans cette zone les deux phases aqueuse et PLNA sont considérées non-mobiles à la saturation résiduelle, par contre la phase gazeuse est mobile sous le gradient de pression.

Le paramètre le plus important dans cette technique est le coefficient global du transfert de masse entre phases PLNA/phase gazeuse. Ce paramètre a une grande influence sur les résultats de la modélisation (Zhao, 2007). En effet, la grande difficulté de simuler le SVE/Venting à l'échelle de pilote ou à l'échelle de terrain est de trouver un modèle mathématique qui estime ce coefficient en se basant sur les caractéristiques de l'écoulement, du milieu poreux et du polluant et sa teneur (*cf. paragraphe* I.5.4.*a*).

Duggal *et al.*,(2009) ont comparé les résultats de modélisations des expériences menées sur une colonne 1D (6,8 cm en diamètre 20 cm en hauteur) et sur un pilote radial 3D (40,5 cm de diamètre et 51 cm en hauteur avec un puits d'extraction de 3,2 cm en diamètre) pour deux types de sol ; sable d'Ottawa et limon d'Elora, et pour différents débits d'extraction. Ils ont remarqué que le coefficient global initial est très important pour la colonne (de 944 à 250000h⁻¹ pour un débit de 1,5 à 21,8 L.min⁻¹) par rapport à celles du pilote (de 4,5 à 43 h⁻¹ pour les mêmes débits d'extraction) pour le sable.

Le même constat est relevé par notre précédent travail (Boudouch *et al.*, 2015) où nous avons comparé les résultats de modélisation de plusieurs expériences menées sur un pilote 3D et une colonne 1D. Ce qui est cohérent, car dans nos modèles numériques celui de 3D-SVE-L de (Zhao, 2007), nous avons utilisé un coefficient global constant sur la totalité des sous-domaines. En fait, cette considération est acceptable pour la colonne 1D quand la vitesse des pores est homogène, mais à l'échelle du pilote radial ou à l'échelle de terrain, cette vitesse est variable selon la distance du puits.

En effet, l'extrapolation des résultats expérimentaux menés sur une colonne pour simuler le SVE/Venting à l'échelle de terrain, doit passer par un modèle d'évaporation intégrale qui prend en compte les différents paramètres.

L'équation de conservation de masse du polluant dans la phase gazeuse et le transfert PLNA/phase gazeuse pour une *géométrie 1D* est donnée par :

$$\varphi S_{g} \frac{\partial C_{g,\beta}}{\partial t} + q_{g} \frac{\partial C_{g,\beta}}{\partial x} - \varphi S_{g} \frac{=}{D_{g,\beta}} \frac{\partial^{2} C_{g,\beta}}{\partial x^{2}} = \varphi S_{g} \lambda_{o-g,\beta} (C_{g,\beta}^{sat} - C_{g,\beta})$$
(IV-6) Accumulation Advection Dispersion Transfert

Pour déduire le coefficient global de transfert $\lambda_{o-g,\beta}$ à partir des données expérimentaux, van Genuchten *et al.*, (1982) ont proposé une solution analytique de cette équation en état stationnaire. Cette solution, donnée ci-dessous, est présentée dans les travaux de Anwar (Anwar, 2013) :

$$\lambda_{o-g,\beta} = \frac{1}{4\overline{D}_g} \left[\left(U_g - \frac{2\overline{D}_g}{L_c} \ln(1 - \frac{C_{g,\beta}}{C_{g,\beta}^{sat}}) \right)^2 - U_g^2 \right]$$
(IV-7)

 L_c : hauteur de la colonne 1D polluée en PLNA [L].

Wilkins *et al.*, (1995) ont adopté une autre solution analytique simplifiée. Cette solution néglige la dispersion hydrodynamique $\overline{D}_{g,\beta}$:

$$\lambda^*_{o-g,\beta} = -\frac{q_g}{L_c} \ln\left(1 - \frac{C_{g,\beta}}{C_{g,\beta}^{sat}}\right)$$
(IV-8)

 $\lambda^*_{o-g,\beta} = \varphi S_g \lambda_{o-g,\beta}$ est le coefficient global du transfert PLNA/gaz.

Ils ont déduit une relation empirique à partir de données expérimentales menées sur une colonne de 5 cm de diamètre et 10 cm de hauteur pour plusieurs types de sols et plusieurs polluants en état stationnaire :

$$\lambda^*_{o-g,\beta} = 10^{-0.5842} D^o_{g,\beta} U^{0.68}_g d^{0.36}_{50}$$
(IV-9)

Dans les mêmes conditions opératoires ;Yoon *et al.*, (2002) ont répété les expériences et ont confirmé ce modèle par leur relation empirique :

$$\lambda^*_{o-g,\beta} = 10^{-0.4221} D_{g,\beta}^{o-0.38} U_g^{0.62} d_{50}^{0.44}$$
(IV-10)

Ces relations montrent bien que le coefficient global de transfert est proportionnel à la vitesse interstitielle des pores et au diamètre moyen des granules du sol. Les deux modèles empiriques ont intégré la teneur en phase gazeuse dans l'estimation du coefficient de transfert, et ont négligé la dispersion hydrodynamique.

Parmi les expériences de Wilkins *et al.*, (1995), l'une concerne un sable Ottawa 20/30 et le toluène comme polluant, ce qui est proche de nos conditions opératoires. Gidda *et al.*, (2006) ont étudié le régime hydrodynamique d'un sable Ottawa par des essais de traçage d'un effluent gazeux (SF6).Leurs résultats montrent que ce type de sable a un coefficient longitudinal de dispersion α_L de 1,2 cm pour une teneur en eau de 0,03 et 0,6 pour le sable sec.

Pour éclaircir ce point concernant l'importance ou non de la dispersion hydrodynamique, nous avons rassemblé dans les *Figure IV-17*, *Figure IV-18*, les résultats obtenus par Wilkins *et al.*, (1995), Yoon *et al.*, (2002) et les résultats obtenus par la solution analytique dispersion-convection proposée par van Genuchten *et al.*, (1982) avec différentes valeurs de α_L .



Tableau IV-2: Conditions opératoires de Wilkins (1995)



Figure IV-17: Comparaison entre les modèles d'estimation de coefficient global de transfert PLNA/ gazeuse



Figure IV-18: Comparaison relative (à modèle de Wilkins) entre les modèles d'estimation de coefficient global de transfert PLNA/ gazeuse

Les deux modèles empiriques (Wilkins et Yoon) montrent la validité de l'hypothèse d'équilibre local pour des vitesses de pores faibles ne dépassant pas le $0,1 \text{ cm.s}^{-1}$. La concentration à la sortie de la colonne étant proche de la concentration à la saturation (*cf. Figure IV-17*).

Ces résultats montrent que le modèle de Yoon (2002) donne une estimation moins importante pour les vitesses de pore faibles, et une valeur plus importante pour des vitesses plus élevées comparée à celles données par le modèle de Wilkins *et al.* (1995). La différence entre les deux modèles est inférieure à15%, ce qui reste une valeur acceptable.

On constate aussi que l'effet de la dispersion hydrodynamique négligée dans les deux modèles est bien clair pour les vitesses de pore inférieures à 0,3 cm.s⁻¹ où l'erreur relative dépasse les 40% pour un coefficient de dispersion (α_L =1,2 cm). Aux vitesses des pores les plus importantes, cet effet diminue. Il est donc possible de négliger cette dispersion pour les vitesses supérieures à 1 cm.s⁻¹. Même en négligeant la dispersion (α_L =0 cm), la diffusion moléculaire joue un rôle important pour les vitesses faibles, où l'erreur dépasse les 30% pour les vitesses inférieures à 0,06 cm.s⁻¹.

On peut dire que les modèles de Wilkins *et al.*, (1995) et Yoon *et al.*, (2002) sont des modèles validés expérimentalement pour des vitesses de pores supérieures à 0,3 cm.s⁻¹. En effet plusieurs auteurs ont défini le rayon d'influence d'un puits d'extraction par SVE à une zone où la vitesse des pores dépasse le 0,01 cm.s⁻¹ (DiGiulio et al., 2001a ; Dixon et al., 2006 ; US.ACE, 2002). C'est pour cela qu'une correction de ces modèles est nécessaire pour les vitesses de pores plus faibles, là où l'effet de dispersion hydrodynamique est important.

Suite à ces résultats, il nous est apparu évident de déterminer le coefficient de dispersion α_L avec nos conditions expérimentales comme décrit plus loin dans le *pargraphe IV.4.2.b.*

Par ailleurs, plusieurs auteurs ont constaté que le coefficient global de transfert diminue avec la diminution de la saturation en PLNA par évaporation. Ceci est dû à l'effet de la diminution de la surface de contact ou l'aire interfaciale (Harper, 1999 ; Nguyen *et al.*, 2013 ; Yoon *et al.*, 2002 ; Yoon *et al.*, 2003 ; Zhao, 2007). Une amélioration du modèle est proposée par ces auteurs pour relier le coefficient global à la saturation en PLNA, ainsi que le temps d'extraction (état transitoire) :

$$\lambda_{o-g,\beta} = \lambda_{o-g,\beta}^{init} \left(\frac{S_o}{S_o^{init}} \right)^{\beta_y}$$
(IV-11)

Yoon *et al.*,(2002) dans leur article ont montré que ce paramètre empirique est lié à la saturation en phase aqueuse et à l'homogénéité (uniformité) du sol, où sa valeur varie entre 0,5 et 1,2 pour une saturation allant de 0,13 à 0,35 et de 1,2 à 4,6 pour une saturation de 0,48 à 0,61 pour un sol sableux

Pour mieux expliquer l'effet de ce paramètre, il est nécessaire d'expliquer l'allure de la concentration du gaz extrait en fonction du temps. Cette courbe est représentée dans la *Figure IV-19* donnée par Anderson *et al.*, (1994). On remarque sur cette figure la présence de trois étapes : une première étape appelée étape d'évacuation : pendant cette étape la concentration du polluant extrait reste quasi constante. Cette phase correspond à l'évacuation de PLNA mobile et de la phase gazeuse à l'équilibre. La deuxième appelée étape d'évaporation et qui correspond à l'évaporation des polluants en phase PLNA accessible au courant de l'air. Dès que la concentration en gaz extrait commence à diminuer atteignant l'étape de diffusion. Cela peut se traduire par une diminution du coefficient global de transfert de masse à cause de la diminution de la surface de contact entre les phases.



Temps



L'autre intérêt de la correction apportée par le paramètre d'ajustement est de simuler aussi l'effet de traîné (tailing effect) dans la simulation de la SVE ou Venting, où la concentration du gaz extrait dans l'étape de diffusion (dernière étape) décroit de façon inattendue. Ce phénomène est observé par plusieurs autres dans des études de la SVE à l'échelle du pilote et à l'échelle du terrain (CampagnoloJR., 1995 ; Harper, 1999 ; Nguyen *et al.*, 2013 ; Yoon *et al.*, 2003 ; Zhao, 2007). En effet cette période correspond à l'extraction des polluants dissous dans la phase aqueuse, adsorbés sur la phase solide, et des polluants en phase libre piégés dans les petits pores peu accessibles au flux gazeux.

Plus le paramètre empirique est faible ($\beta_y < 0,6$), plus l'étape d'évacuation est importante au détriment des deux autres étapes. Tous les polluants libres sont accessibles au courant d'air. Le coefficient de transfert reste important et proche du coefficient initial, on est donc proche de l'allure de l'équilibre local LEA. La concentration dans la phase de diffusion est proche de zéro.

Plus β_y est important ($\beta_y > 1$) plus la concentration dans l'étape de diffusion reste aussi importante, ainsi qu'une partie de polluant libre non accessible au courant d'air. Il s'agit du cas observé par Yoon (2002) où l'augmentation de la saturation en phase aqueuse diminue l'accessibilité au PLNA.

D'autre part, une valeur importante de $\beta_y > 1,5$ se traduit par une diminution rapide du coefficient global de transfert du premier pas de temps et ainsi de la concentration.

Les modèles mentionnés ci-dessus sont établis pour estimer le coefficient de transfert PLNA/gaz du procédé SVE/Venting dans la zone non-saturée, où la teneur en polluant et en eau est limitée à la saturation résiduelle, aussi immobile. Par contre dans le procédé de la MPE, la teneur en polluants et en eau n'est pas limitée. L'atout de la MPE est de restaurer aussi la frange capillaire et la zone saturée asséchée au cours du procédé par le rabattement de la nappe par la SVE, donc la saturation en PLNA et en eau varient dans l'espace et dans le temps.

Ainsi, on peut dire que le choix de la saturation initiale en PLNA dans l'équation (*IV-11*) ne convient pas à la simulation de la MPE. Nous proposons d'utiliser une saturation de référence en polluant assortie de conditions comme mentionné ci-après :

$$\lambda_{o-g,\beta} = \begin{bmatrix} \lambda_{o-g,\beta}^{init} & ; S_o > S_o^{ref} \\ \lambda_{o-g,\beta}^{init} & \\ \begin{pmatrix} S_o \\ S_o^{ref} \end{pmatrix}^{\beta_{MR}} ; S_o \le S_o^{ref} \end{bmatrix}$$
(IV-12)

Dans laquelle S_a^{ref} est la saturation de référence en PLNA.

Ce modèle a l'avantage de séparer les deux étapes : évaporation et diffusion par la condition ajoutée, et de libérer le modèle de la saturation initiale, qui n'est pas applicable dans le procédé de la MPE. Par contre la difficulté dans le modèle est de déterminer la valeur de S_o^{ref} , qui doit être déterminée expérimentalement.

En conclusion II faut déduire une corrélation empirique permettant d'estimer le coefficient global de transfert prenant en compte en plus de la vitesse des pores, le diamètre moyen du sol, la caractéristique physique du polluant, la teneur en polluant et la teneur en phase aqueuse.

IV.4.2.b. Détermination du coefficient de dispersion longitudinal α_L

Pour déterminer le coefficient de dispersion longitudinal α_L nous avons procédé à une étude de distribution du temps de séjour sur notre colonne. L'expérience consiste à effectuer une injection échelon d'un traceur à l'entrée de la colonne et suivre sa concentration à la sortie. Cette expérience a déjà été faite dans notre laboratoire sur un sable similaire au notre (thèse de Brusturean, 2004). Nous n'avons pas jugé utile de la refaire. Le traceur utilisé était de l'oxygène. L'expérience a été completée par l'application d'un second signal appelé : purge échelon. Ceci consistait à remplacer l'alimentation en traceur de la colonne par de l'azote.Nous avons donc utilisé la courbe de distribution des temps de séjours obtenue et la comparer à nos résultats de modélisation (*cf. Figure IV-21*).

Le modèle consiste à activer deux équations EDPs, une simule l'écoulement de la phase gazeuse (l'équation de continuité (*III-1*), l'autre simule la dispersion-diffusion du composé suite à une injection échelon (la conservation de masse (*III-4*) dans la phase gazeuse).

Le modèle a pour but de chercher le coefficient de dispersion hydrodynamique optimal qui répond mieux aux résultats expérimentaux. Il est donné par la formule suivante :

$$\overline{\overline{D}}_{g,\beta} = \tau_g D_{g,\beta}^o \delta_{ij} + \left[\alpha_T \left| U_g \right| \delta_{ij} + (\alpha_L - \alpha_T) \frac{U_{gi} U_{gj}}{\left| U_g \right|} \right]$$
(IV-13)

Le coefficient de diffusion moléculaire de l'oxygène dans l'azote (diffusion binaire $D_{g,\beta}^{o}$) utilisé est donné par la littérature. Sa valeur est de 0,219 cm².s⁻¹ à 20°C (Welty *et al.*, 1984). La tortuosité τ_g est calculée à partir du modèle de Millington (1959). Plusieurs auteurs ont estimé le coefficient de dispersion transversale α_T égal à 10% du coefficient longitudinal $\alpha_T = 0,1 \alpha_L$ (ADEME, 2007b ; Dridi, 2006 ; J.F. Daian, 2013 ; Nguyen *et al.*, 2013).

Deux géométries différentes sont modélisées, l'une est unidimensionnelle 1D et l'autre 2D axisymétrique. Les deux géométries sont schématisées avec les conditions initiales et aux limites sur la *Figure IV-20*.



Figure IV-20: Géométries, conditions initiales et conditions aux limites pour modèle hydrodynamique

Le Tableau IV-3 résume des évaluations d'erreur pour différentes simulations.

Modèle	Modèle 2Daxy							Modèle 1D	
α _L [cm]	6	4	3	2,75	2,5	2	0,5	0	0,275
RMSE [-]	0,856	0,40	0,221	0,210	0,221	0,30	0,675	1,3	3,1
NRMSE [*] [%]	4,07	1,91	1,05	1	1,05	1,43	3,2	6,2	14,8
R [-]	0,990	0,999	0,99967	0,9997	0,99967	0,9994	0,997	0,988	0,932

 Tableau IV-3: Évaluation d'erreur pour les différentes simulations (modèle hydrodynamique)

*NRMSE ; est calculé pour une concentration maximale de 21% et minimale de 0%

La valeur du coefficient de dispersivité longitudinal α_L , qui répond mieux aux résultats expérimentaux est trouvé égale à 2,75 cm avec une erreur de NRMSE de 1 % et un coefficient de corrélation de 0,9997.

Cette valeur correspond à la valeur calculée par la solution analytique citée par Benremita (2002) :

$$\alpha_{L} = \frac{\overline{D}_{g,\beta}}{U_{g}} = \frac{U_{g}(t_{0,84} - t_{0,16})}{8t_{0,5}} = 2,8 \ cm$$
(IV-14)

 $t_{0,84}, t_{0,5}, t_{0,16}$ les temps correspondants respectivement à concentration relative de 84%, 50% et 16 % du traceur à la sortie de la colonne [T].

L'évolution de la concentration du traceur à la sortie de la colonne et les résultats des simulations sont présentés dans la *Figure IV-21* ci-dessous :


Figure IV-21: Évolution de la concentration du traceur à l'entrée et à la sortie de la colonne de sol pour un signal « échelon » et « purge échelon »

En comparant les résultats de l'expérience à ceux du modèle 1D, un effet d'avancement est remarqué (*cf. Figure IV-21*). Les résultats du modèle 1D est en avance par rapport à ceux de l'expérience, même dans le cas où on néglige la dispersion mécanique.

Le modèle 1D considère que le champ de vitesse (vitesse de Darcy) de la phase gazeuse est constant à travers la colonne :

$$q_g = \frac{Q_g}{A_e} = \frac{100}{\pi 5^2} = 1,274 \ cm.min^{-1}$$
 (IV-15)

Par contre, dans le modèle 2Daxy le champ de vitesse (vitesse de Darcy) dans les sousdomaines (graviers et sable) est variable avec l'espace d'un point à l'autre en obéissant à la loi de Darcy (*cf. Figure IV-22*) et en respectant une vitesse moyenne de 1,274 cm.min⁻¹. Ce qui est plus proche de la réalité dans la colonne. On peut dire que le modèle 2Daxy simule mieux le champ de vitesse ainsi que le transport dans la colonne. En revanche le modèle 1D surévalue la vitesse de Darcy dans la totalité de la colonne ainsi que la convection (l'advection).



Figure IV-22: champ de vitesse de Darcy en cm.min⁻¹ dans les graviers et le sable pour le modèle 2Daxy

En outre, on remarque pour le champ de vitesse que les deux couches de graviers ont joué leur rôle en homogénéisation de l'écoulement dans le sable, qui les rend utiles. De même l'épaisseur utilisée est suffisante.

IV.4.2.c. Résultats expérimentaux

Quatre expériences avec des conditions opératoires différentes ont été menées sur la colonne (*II.4.2.a*) avec le sable HN0,4/0,8. Le polluant étudié étant le toluène (*cf. Tableau II-1*).

Le *Tableau IV-4* résume les conditions opératoires des quatre essais menés sur la colonne. Les saturations en eau et en PLNA sont choisies inférieures à celle de la saturation résiduelle en simulant la zone non saturée et en s'assurant de l'immobilité de ces phases.

Les débits du Venting/extraction sont choisis aussi de manière à respecter les vitesses des pores dans le procédé SVE.

Le *Tableau II-6* et le *Tableau II-1* ; mentionnés dans le chapitre II : Matériels et Méthodes, récapitulent les paramètres du sable HN0,4/0,8 et du polluant, respectivement utilisés dans la manipulation, et introduit dans le modèle.

La perte de toluène pendant la préparation des essais est estimée à moins de 2,5 % de la masse totale. La perte est calculée pour les deux essais 1 et 3 par l'équation :

$$M_{perdu} = M_{init} - M_{extrait} - M_{séchage}$$
 IV-16)

Où :

 M_{perdu} : masse de polluant perdu en préparation d'échantillon [M] ;

 M_{init} : masse initiale du polluant introduit dans l'essai [M];

 $M_{extrait}$: masse du polluant extraite par SVE/Venting [M];

 $M_{s\acute{e}chage}$: masse du polluant résiduelle restante après l'extraction, mesurée par le séchage à 105°C [M].

Une perte de masse de l'eau est aussi observée pour les deux pilotes 2 et 4, cette perte est de 17,2 % pour l'essai 2 et 42% pour l'essai 4. Ces pertes sont dues à l'évaporation de l'eau dans l'air.

Le rendement d'extraction η est calculé après la déduction de la masse perdue dans la préparation :

$$\eta = \frac{M_{extrait}}{M_{int} - M_{perdu}} \times 100$$
 (IV-17)

Conditions	Unité	Ven	iting	SVE		
Contracting	Omte	Essai 1	Essai 2	Essai 3	Essai 4	
Masse du sable	[g]	1216	1223	1218	1225	
Porosité φ	[-]	0,4154	0,412	0,4145	0,411	
Quantité de toluène	[mg]	8397,7	8339,5	8301,1	8413	
Saturation en toluène	[-]	0,0297	0,0297	0,0294	0,03	
Quantité de l'eau	[mg]	0	24424	0	24535,3	
Saturation en eau	[-]	-	0,0755	-	0,076	
Débit de gaz	[mL.min ⁻¹]	591	604	3183	3203	
Température du sol	[°C]	20,8±0,6	20,3±0,6	19,8±0,6	19,3±0,6	
Concentration à saturation	$[mg .L^{-1}]$	114,5	111,7	108,9	106,2	
Concentration d'évacuation (moyen) En pourcentage à la saturation	$[mg .L^{-1}]$ [%]	104,3 91,3	102,6 90,5	77,8 71,4	73,8 69,9	
Concentration pulsé (redémarrage)	$[mg .L^{-1}]$	18,2	16,31	7,68	6,85	
Concentration en fin d'extraction	$[mg .L^{-1}]$	0,042	0,065	0,016	0,029	
Temps de traitement (après l'arrêt)	[h]	7,5 (3)	8 (2,7)	4,6 (1,3)	5 (1,2)	
Mass extrait	[mg]	7908,5	7725,2	7671	7623,3	
Masse extrait après une nuit d'arrêt	[mg]	62,95	51,9	106,73	83,4	
Masse après séchage (eau+toluène) En pourcentage (eau+toluène)	[mg] [%]	210,2 2,5	21312,8 ^a 82,8 ^b	349,7 4,2	14203,4 ^a 57.9 ^b	
Masse perdu dans la préparation En pourcentage Masse reste dans le pilot En pourcentage	[mg] [%] [mg] [%]	216,3 2,57 210,2 2,5	216,3° 2,59 349,2 4,19	161,7 1,95 362,77 4,36	161,7° 1,9 543,7 6,5	
Rendement d'extraction (sans la perte) ^d	[%]	96,7	95,1	94,3	92,4	
Rendement après une nuit d'arrêt	[%]	97,4	95,74	95,6	93,4	

Tableau IV-4: Conditions opératoires des essais de transfert de masse

^{a:} masse de l'eau resetée dans le colonne de l'essai 2 et 4 après l'extraction ; mesurée par séchage à 105°C.

^{b:}pourcentage de la masse restée

^c: la perte du polluant pendant la préparation des essais 2 et 4 est considérée la même que pour les essais 1 et 3, respectivement.

^d:le rendement = masse extraite / (masse initiale -masse perdu dans la préparation).

Les *Figure IV-23*, *Figure IV-24* représentent l'évolution de la concentration du gaz extrait en échelle logarithmique et la masse extraite cumulée au fil du temps d'extraction.



Figure IV-23: Concentration en gaz à la sortie de colonne pour les quatre essais



Figure IV-24 : Masse extrait cumulée avec le temps pour les quatre essais

Les deux figures montrent la bonne reproductibilité des quatre expériences. On remarque un effet de dilution pour le débit le plus important (Essais 3, 4), où la concentration à la sortie dans la phase évacuation/évaporation pour ces essais est moins importante d'environ 70% de

la concentration à la saturation contre 91% pour les essais 1 et 2. En effet, en augmentant le débit et ainsi les vitesses des pores, cela augmente aussi l'évaporation (le coefficient global) selon les relations d'estimation (Wilkins et Yoon), mais l'augmentation est moins importante que l'augmentation due à la convection qui emporte le polluant vers la sortie.

On remarque aussi une légère différence pour le rendement d'extraction. Le rendement est meilleur pour le débit faible avec un sable sec (essai 1). Il diminue un peu avec l'augmentation de la saturation (essai 2) et le débit (essai 3). Cela peut s'expliquer par l'accessibilité de l'air aux pores (pour la saturation), et au fait que le temps nécessaire à la diffusion est plus important pour les débits faibles.

Zhao *et al.*, (2008) ont proposé une méthode d'estimation du temps optimal d'arrêt d'un système d'extraction basée sur la courbe de la concentration de gaz extrait. Ils ont défini un terme appelé l'efficacité du système de décontamination noté E [%] :

$$E = \frac{\hat{P}}{t_e} \times 100 \tag{IV-18}$$

 \hat{P} : pente relative de la courbe d'extraction [T⁻¹].

Elle est définie par l'équation suivante :

$$\widehat{P} = -\frac{\Delta C_{g,\beta}}{\Delta t} \frac{1}{C_{g,\beta}^{init}} = -\frac{C_{g,\beta}^{i+1} - C_{g,\beta}^{i}}{t_{i+1} - t_{i}} \frac{1}{C_{g,\beta}^{init}}$$
(IV-19)

 t_e : temps parcouru depuis le démarrage de l'extraction, [T].

Zhao *et al.*, (2008), ont montré qu'à partir d'une efficacité *E* inférieur à 10^{-4} [%], le traitement par la SVE n'est plus rentable économiquement. Ils proposent le terme de « temps optimal de traitement » quand l'efficacité atteint cette valeur.

Nous avons déterminé ce temps optimal de traitement pour nos quatre essais en représentant l'efficacité définie par Zhao *et al.*, (2008) en fonction du temps (*Figure IV-25*). Le temps optimal pour chaque essai est donné dans le *Tableau IV-5*.



Figure IV-25: Efficacité du système d'extraction SVE/Venting pour les quatre essais

Pilote	Essai 1	Essai 2	Essai 3	Essai 4
Temps optimal [min]	232	227	76	73
Concentration [mg.L ⁻¹]	0,264	0,331	0,192	0,223
Masse extrait [mg] (temps optimal)	7892,4	7698,1	7628,9	7562,56
Rendement n [%] (temps optimal)	96,5	94,8	93,7	91,6
Temps totale (traitement continu)	449	478	280	303
Masse extrait [mg] (temps totale)	7970,4	7777	7777,3	7707,2
Rendement η [%] (temps totale)	96,73	95,1	94,3	92,4

Tableau IV-5: Temps optimal d'arrêt pour les quatre essais

On remarque que cette méthode pour déterminer le temps optimal d'arrêt de traitement par SVE/Venting peut être appliquée. En effet le gain du rendement après ce temps est moins de 1% de la totalité de la masse extraite pendant l'extraction continue pour un temps d'extraction deux à trois fois plus important. Ainsi la consommation d'énergie peut être limitée.

Un autre phénomène est remarqué : lorsque le système est arrêté, un accroissement de la concentration est observé en reprenant l'extraction. Pendant cette période d'arrêt, le toluène continue de passer à l'état gaz et à diffuser dans le sol, sa concentration augmente ; la concentration à ce point pour l'essai 1 est d'environ 18,2 mg.L⁻¹ au lieu de 0,042 mg.L⁻¹ en fin d'extraction.

Ce phénomène a été remarqué aussi par plusieurs auteurs (Harper *et al.*, 1998 ; Kaleris et Croisé 1997 ;Johnson *et al.*, 1994 ; Grathwohl, 1998 et Smith *et al.*, 1996). Selon ces auteurs,

la dernière étape d'extraction ; l'étape diffusionelle, peut être optimisée par l'application du « Venting pulsé » ou « Venting en discontinu ». Le principe repose sur les déclenchements et arrêts intermittents du système. Selon Kvapil (2000), l'optimisation de ces périodes permet d'obtenir le même rendement que par l'application de l'extraction continue tout en ayant des gains énergétiques considérables.

IV.4.3. Modélisation de SVE/Venting

Les quatre essais ont été simulés avec le modèle numérique et les résultats sont comparés aux résultats expérimentaux.

Le modèle consiste à activer cinq équations EDPs : une qui simule l'écoulement de la phase gazeuse (l'équation de continuité (*III-1*)), les autres équations simulent la conservation de la masse des phases gazeuse mobiles, PLNA, la phase aqueuse et la phase solide immobile (*équation (III-4*)).

Le transfert de masse entre les phases aqueuse et gazeuse, organique et aqueuse et aqueuse et solide se passe en respectant les modèles détaillés en *paragraphe III.4.6*.

Plusieurs simulations sont effectuées avec plusieurs modèles d'estimation du coefficient global de transfert PLNA/phase gazeuse.

La géométrie du modèle avec les conditions initiales et aux limites sont schématisés sur la *Figure IV-26* pour les deux cas SVE et Venting.

On suppose dans le modèle que l'équilibre local est atteint au bout de deux jours ; ce temps est le temps de repos des échantillons avant de démarrer l'extraction, ainsi les conditions initiales des concentrations pour le modèle sont :

$$C_{g}(r, z, 0) = \frac{P_{g,\beta}^{o} M_{\beta}}{R_{gp} T}$$
$$C_{w}(r, z, 0) = S_{w,\beta}$$
$$C_{s}(r, z, 0) = K_{d,\beta}S_{w,\beta}$$

La pression initiale du gaz est la pression atmosphérique : $P_g(r, z, 0) = 1 atm$ La saturation initiale en PLNA est $S_a(r, z, 0) = S_a^{init}$ Dans le procédé de Venting l'entrée de la colonne est reliée à une bouteille d'azote et le tuyau de la sortie est laissé libre à la pression atmosphérique sous une housse. Ainsi les conditions aux limites sont :

- Pour l'écoulement

De type Dirichlet :

 $P_g = 1 atm$ (Orifice de la sortie pour Venting, orifice de l'entrée pour le SVE)

De type Neumann :

$$q_g = \frac{K k_{rg}}{\mu_g} (\nabla P_g + \rho_g g \nabla z) \text{ Orifice de l'entrée (Venting), orifice de la sortie (SVE)}$$

 $(\nabla P_g + \rho_g g \nabla z) = 0$ (Les parois de la colonne)

- Pour le transport de la phase gazeuse :

De type Dirichlet :

 $C_g = 0$ (Orifice de l'entrée, gaz propre)

De type Neumann :

$$q_{g}C_{g} - \overline{D_{g}}\nabla C_{g} = 0$$
 (Parois)

 $\overline{D_g} \nabla C_g = 0$ (Orifice de la sortie)

Pour les autres équations de transport
 De type Neumann :

 $\nabla S_{o} = \nabla C_{w} = \nabla C_{s} = 0$ (Parois, entrée et sortie)

Les deux géométries avec les conditions initiales et aux limites sont schématisées sur la *Figure IV-26* ci-après pour les deux cas étudiés : SVE et Venting.

2848 mailles triangulaires avec des éléments de type Lagrange-quadratique sont utilisées. Le maillage est raffiné à l'entrée et à la sortie de la colonne et aussi au niveau du contact graviers/sable.



Figure IV-26: Géométries, conditions initiales et conditions aux limites pour modèle SVE/Venting

IV.4.3.a.Essai 1

La *Figure IV-27* représente l'évolution expérimentale de la concentration avec le temps, ainsi que celles de la simulation des cinq modèles d'estimation du coefficient global de transfert pour l'essai 1. Le *Tableau IV-6* regroupe les valeurs du coefficient global initial de transfert obtenues par ces modèles :

- modèle d'équilibre Local *LEA équation (III-24))*;
- modèle empirique de Wilkins et al., (1995) équation (IV-9);
- modèles empirique de Yoon *et al.*,(2002) *équation(IV-10)*;
- modèle proposé à saturation référentielle de ($S_o^{ref} = 0,01$) équation (IV-12);
- solution Analytique-convection 1D équation (IV-8);
- solution Analytique dispersion-convection 1D *équation (IV-7)*. Dans ce modèle deux estimations du coefficient de transfert de masse à partir de la concentration de sortie $\frac{C_{g,\beta}}{C_{g,\beta}^{Sat}}$

ont été utilisées :

 0,913 est la moyenne de résultats expérimentaux dans la phase évacuation/évaporation;

0,98 représente une majoration du coefficient pour une meilleure concordance entre le modèle et l'expérience.



Figure IV-27: Résultats expérimentaux et de plusieurs modélisations de l'essail/Venting

	C	Coefficient global initial				_		Conco	rdance
Modèle	$\frac{C_{g,\beta}}{C_{g,\beta}^{Sat}}$	λ_{o-g}^{init} [h ⁻¹] (vitesse de pore 1D 0,313cm.s ⁻¹)	β_y	RMSE [mg.L ¹]	NRMSE [%]	R [-]	NSSRD [-]	Global	Tailing
Équilibre locale LEA	1	×	0	16,02	15,17	0,924	-	Mauvais	Mauvais
Modèle proposé $S_o^{ref} = 0,01$	Modèle 0,924 Estimé 1D 0,913	472,5	1,37	3,23	3,07	0,997	0,035	Très bien	Très bien
Analy-disp-conv	Modèle 0,99 Estimé 1D 0,98	947,5	1,18	3,24	3,07	0,997	0,092	Très bien	Très bien
(1D)	Modèle 0,924 Estimé 1D 0,913	472,5	0,93	6,27	6	0,989	1,52	Bien	Mauvais
Analy-conv (1D)	Modèle 0,84 Estimé 1D 0,913	275	0,5	11,23	10,64	0,96	11,4	Mauvais	Mauvais
Wilkins (1995)	Modèle 0,812	max 271 min 238,3 moy 243,3 ^a	0,5	13,24	12,5	0,949	10,25	Mauvais	Mauvais
	Estimé 1D 0,889	247,9							
Yoon (2002)	Modèle 0,79	max 254,9 min 220,8 moy 225,9 ^a	0,5	14,44	13,68	0,939	11,83	Mauvais	Mauvais
	Estimé 1D 0,871	230,5							

 $\iint dr \, dz$

Tableau IV-6: Différentes modélisations de	e l'essai 1 avec l'évaluation de	s erreurs
--	----------------------------------	-----------

 $\iint_{r,z} \lambda_{o-g,\beta}^{init}(r,z) dr dz$ ^a : la moyenne du coefficient sur la colonne est calculée par : $\lambda_{o-g,\beta}^{init-moy} = \frac{r_{,z}}{r_{,z}}$

On remarque que les modèles basés sur la solution analytique-convection en l'occurrence : Wilkins *et al.*, (1995), Yoon *et al.*, (2002) et le modèle analytique-convection sous estiment le coefficient global initial de transfert de masse λ_{o-g}^i où la concentration relative initiale du gaz extrait est à 0,81 ; 0,79 et 0,84 de la concentration à l'équilibre respectivement, contre de 0,913 pour l'expérience (*Tableau IV-6*). Cela est bien l'effet du fait de négliger la dispersion hydrodynamique dans le calcul du coefficient global.

En revanche, on observe que les modèles se basant sur la solution analytique-dispersionconvection ont légèrement surestimé le coefficient global initial $\lambda_{o-g,\beta}^{init}$ (*Tableau IV-6*).

On remarque aussi une chute de la concentration et donc du coefficient global de transfert au premier pas de temps. Cette chute est reliée à la valeur de β ' et au coefficient global initial (*cf. Figure IV-29*).

Le modèle à l'équilibre local simule avec des erreurs importantes (NRMSE>15 %) la première étape d'extraction.

Trois modèles présentent de meilleures solutions avec des erreurs modestes (*Tableau IV-6*). Il s'agit du modèle proposé, du modèle de dispersion-convection avec surestimation $\lambda_{o-g,\beta}^{init} = 947h^{-1}, \beta_y = 1,18, \frac{C_{g,\beta}}{C_{g,\beta}^{Sat}} = 0,98$ et relativement le modèle dispersion-convection $\lambda_{o-g,\beta}^{init} = 472h^{-1}, \beta_y = 0,93, \frac{C_{g,\beta}}{C_{g,\beta}^{Sat}} = 0,913.$

La *Figure IV-28* représente les résultats des modèles à une échelle logarithmique, où l'effet de traîné (tailing) est mieux observé (les faibles concentrations).



Figure IV-28: Résultats expérimentaux et de modélisations à l'échelle semi logarithmique de l'essai 1/Venting





A cette échelle, on remarque que seuls le modèle proposé et la solution analytique de l'équation de dispersion-convection (avec $\lambda_{o-g,\beta}^{init}$ surestimé) ont la capacité de simuler aussi les faibles concentrations (tailing effect).

Enfin la légère différence de l'estimation du coefficient globale moyen par des modèles Wilkins et Yoon, sur la géométrie 2Daxy et la géométrie 1D (*Tableau IV-6*), montre la répartition homogène de la vitesse sur la colonne.

En conclusion les deux modèles de Wilkins *et al.* (1995) et Yoon *et al.* (2002), représentent des modèles très appréciés ; ils sont bien capables d'estimer le coefficient global initial pour de grandes vitesses. Une correction, qui prend en compte la dispersion, de ce modèle est bien utile pour simuler aussi les vitesses faibles, cette correction doit se baser sur des résultats expérimentaux sur différents types de sols, différents polluants et différentes vitesses.

IV.4.3.b.Essai 2

La *Figure IV-30* et le *Tableau IV-7* représentent l'évolution de la concentration du gaz extrait pour différents modèles et l'évaluation de leurs erreurs avec les résultats expérimentaux pour l'essai 2 en échelle logarithmique.



Figure IV-30: Résultats expérimentaux et de modélisations à l'échelle semi logarithmique de l'essai 2/Venting



Figure IV-31: Coefficient de transfert de masse de plusieurs modélisations de l'essai 2/Venting

	G	Coefficient						Conco	rdance
Modèle	$\frac{C_{g,\beta}}{C_{g,\beta}^{Sat}}$	λ_{o-g}^{i} [h ⁻¹] (vitesse de pore 1D 0,348cm.s ⁻¹)	• β _γ	RMSE [mg.L ⁻¹]	NRMSE [%]	R [-]	NSSRD [-]	Global	Tailing
Équilibre locale LEA	1	∞	0	14,5	14,1	0,933	-	Mauvais	Mauvais
Modèle proposé $S_o^{ref} = 0,01$	Modèle 0,92 Estimé 0,905	511,5	1,44	3,2	3,12	0,997	0,036	Très bien	Très bien
Analy disp- conv-	Modèle 0,991 Estimé 1D 0,98	1044	1,26	3,93	3,83	0,995	0,097	Très bien	Très Bien
(1D)	Modèle 0,92 Estimé 1D 0,905	511,5	0,93	6,75	6,57	0,986	0,24	Bien	Mauvais
Wilkins (1995)	Modèle 0,815	max 286,8 min 254 moy259,2	0,5	12,93	12,59	0,947	0,59	Mauvais	Mauvais
	Estimé 1D 0,88	273,9 (1D)							

 Tableau IV-7: Différentes modélisations de l'essai 2 avec l'évaluation des erreurs

Le coefficient global initial est proche de celui de l'essai1. La différence est due à la petite différence du débit, mais aussi à l'effet de la saturation en eau à 0,0755. En effet cette saturation diminue la teneur en phase gazeuse et augmente donc la vitesse au niveau des pores. Elle diminue aussi la tortuosité et la dispersion hydraulique.

La concentration ne chute pas à une valeur nulle comme l'essai 1. Dans ce cas la présence de l'eau (saturation à 0,075) active le transfert de masse entre phases : aqueuse/gazeuse,

PLNA/aqueuse et aqueuse/solide (*cf.III.4.6*). Cela permet l'échange entre les phases vers la phase gazeuse qui augmente la concentration du gaz extrait dans l'étape de diffusion.

IV.4.3.c. Essai 3 et 4

Les résultats concernant les essais 3 et 4 sont représentés dans les *Figure IV-32*, *Figure IV-33* et *Figure IV-34*, *Figure IV-35* respectivement ainsi que les *Tableau IV-8* et *Tableau IV-9* respectivement. Les commentaires et conclusions faites sur les essais 1 et 2 restent valables pour ces deux essais. On peut rajouter que seul le modèle proposé est capable de simuler les résultats expérimentaux contrairement aux deux autres essais où la solution analytique de l'équation de dispersion-convection (avec $\lambda_{o=o}^{i}$ surestimé) donne aussi une bonne estimation.

Aussi, on remarque ici que le modèle de Wilkins (1995) estime mieux le coefficient globale initial du transfert pour les essai 3 et 4 en comparant avec celles des essai 1 et 2, sous l'effet de diminution relative de l'effet de dispersion hydrodynamique avec l'augmentation de la vitesse de pore.



Figure IV-32: Résultats expérimentaux et de modélisations à l'échelle semi logarithmique de l'essai 3/SVE



Figure IV-33: Coefficient de transfert de masse des plusieurs modélisations de l'essai 3/SVE

	G	Coefficient global initial						Conco	rdance
Modèle	$\frac{C_{g,\beta}}{C_{g,\beta}^{Sat}}$	λ_{o-g}^{i} [h ⁻¹] vitesse de pore 1D 1,689cm.s ⁻¹	β_{Y}	RMSE [mg.L ⁻¹]	NRMSE [%]	R [-]	NSSRD [-]	Global	Tailing
Équilibre locale LEA	1	∞	0	13,73	17,7	0,764	-	Mauvais	Mauvais
Modèle proposé $S_o^{ref} = 0,01$	Modèle 0,72 Estimé 0,705	994,5	1,54	1,79	2,3	0,996	0,06	Très bien	Très bien
Analy disp-conv	Modèle 0,81 Estimé0,8	1417	1,18	2,8	3,61	0,991	0,18	Très bien	bien
(1D)	Modèle 0,72 Estimé 0,705	994,5	0,74	3,45	4,45	0,987	6,35	Bien	Mauvais
Wilkins (1995)	Modèle 0,63	max 772,5 min 677,9 moy692,3	0,5	5,81	7,5	0,962	6,49	Mauvais	Mauvais
	Estimé 0,686	705 (1D)							

Tableau IV-8: Différentes modélisations de l'essai 3 avec l'évaluation des erreurs



Figure IV-34: Résultats expérimentaux et de modélisations à l'échelle semi logarithmique de

l'essai 4/SVE



Figure IV-35: Coefficient de transfert de masse de plusieurs modélisations de l'essai 4/SVE

	~	Coefficient global initial						Conco	rdance
Modèle	$\frac{C_{g,\beta}}{C_{g,\beta}^{Sat}}$	λ_{o-g}^{i} [h ⁻¹] vitesse de pore 1D 1,85cm.s ⁻¹	β_{Y}	RMSE [mg.L ⁻¹]	NRMSE [%]	R [-]	NSSRD [-]	Global	Tailing
Équilibre locale LEA	1	~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~	0	14,84	19,9	0,7	-	Mauvais	Mauvais
Modèle proposé $S_o^{ref} = 0,01$	Modèle 0,73 Estimé 0,695	1051,8	1,54	2,41	3,23	0,993	0,063	Très bien	Très bien
Analy disp-conv	Modèle 0,82 Estimé0,8	1550	1,18	2,42	2,24	0,993	0,356	Très bien	bien
(1D)	Modèle 0,73 Estimé 0,695	1051,8	0,74	3,34	4,5	0,986	0,324	Bien	Mauvais
Wilkins (1995)	Modèle 0,64	max 807 min715,4 moy 729	0,5	4,65	6,23	0,973	0,424	Bien	Mauvais
	Estimé 0,674	746,3 (1D)							

Tableau IV-9: Différentes modélisations de l'essai 4 avec l'évaluation des erreurs

IV.4.3.d.Évaluation de la masse extraite des phases

Pour activer l'échange entre la phase aqueuse et la phase solide, on suggère que le sable contient une très petite fraction de masse organique f_{oc} de 0,02% à la condition d'équilibre locale pour les pilotes 2 et 4. 12,6 mg de toluène est retenue dans la phase aqueuse et 22,9 mg est retenue dans le sable.

La *Figure IV-34* représente l'évolution de la masse de toluène extraite des phases aqueuses et solides. L'extraction du toluène diminue en fonction du temps. Cette diminution est plus prononcée pour l'essai 4 du fait d'une vitesse d'écoulement plus importante.



Figure IV-36: Évolution de la masse de polluant en phase aqueuse et solide pour les essais 2 et 4



Figure IV-37: Évolution des coefficients de transfert de masse entre phases pour les essais 2 et 4 du modèle proposé

IV.5. Conclusion

Le modèle d'écoulement multiphasique et transport/transfert entrephases est validé expérimentalement par la vérification les différentes parties du ce modèle.

Le modèle d'écoulement diphasique est vérifié par les deux expériences de drainage :

- l'une est menée dans le laboratoire LTDS sur une colonne. Une très bonne concordance des résultats de modélisation avec le débit de sortie, le volume drainé et la pression capillaire mesurée sur les tensiomètres est observée. Par ailleurs, cette modélisation montre l'importance du choix des conditions aux limites de la sortie.
- l'autre est menée par Neumann (1992) sur une cellule 2D de type Hele-show équipée de capteurs pour mesurer les saturations et les pressions à différents endroits. Là aussi une bonne concordance des résultats de modélisation avec ceux mesurés sur les différents capteurs est observée avec une erreur NRMSE de moins de 5%.

Le modèle d'écoulement multiphasique est vérifié par deux expériences d'infiltration :

- L'une est menée par Neumann (1992) sur une cellule de Type Hele-show équipé par des capteurs mesurant les pressions et la saturation à différents endroits, où les résultats de modélisation sont confortés à celles de l'expérience. Là aussi une bonne concordance est trouvée pour les capteurs de pression et pendant l'infiltration sur les capteurs de saturation. Aussi une comparaison visuelle entre les résultats donne une bonne concordance.
- L'autre est menée sur le pilote MPE ; où une comparaison visuelle avec les résultats du modèle donne une bonne concordance.

Le modèle du transport de polluant en phase gazeuse est vérifié avec succès par un essai de traçage mené sur colonne par Brusturean (2004). Les résultats de simulation montrent l'importance de choix de la dimension du modèle, où un modèle 1D surévalue le champ de la vitesse ainsi la convection comme un mécanisme de transport.

Le modèle du transport/ transfert de masse entre phase PLNA/phase gazeuse est vérifié par quatre essais menés sur une colonne simulant la technique SVE/Venting. Les essais ont été modélisés avec plusieurs modèles de transfert, les résultats montrent que la dispersion hydrodynamique ne peut être négligée dans l'estimation du coefficient du transfert de masse et en particulier pour les faibles vitesses. Enfin un modèle ayant la capacité de simuler avec une bonne concordance l'étape de diffusion (dernière étapes) a été proposé.

CHAPITRE V. : ESSAI D'APPLICATION À

L'ÉCHELLE DU TERRAIN

Chapitre V.: ESSAI D'APPLICATION A L'ÉCHELLE DU TERRAIN

<i>V.1</i> .	INTRODUCTION	.203
V.2.	RESULTATS DE SIMULATION DE LA PROPAGATION DE LA POLLUTION	.206
V.3.	RESULTATS DE SIMULATION DE L'EXTRACTION MULTIPHASIQUE (MPE) DE LA POLLUTION	.214
V.4.	CONCLUSION	.224

V.1. Introduction

Pour tester la capacité du modèle à simuler les processus d'écoulement multiphasique et transport de polluant au sein de l'extraction multiphasique dans le cas d'un site réel exposé à cette technique, nous avons imaginé un scénario de pollution décrit ci-dessous.

Une citerne contenant 8 m³ de toluène s'est déversé accidentellement sur un sol sableux (supposé de type HN34) sur un rayon de 1,5m. Une quantité suffisante pour développer le panache. Pendent 12heures la pollution s'infiltre dans le sol à une vitesse de Darcy de 0,157 cm.min⁻¹. Au fil du temps la pollution atteint la frange capillaire et la nappe phréatique qui se situe à une profondeur de 3 m. Le PLNAL s'étale sur la frange capillaire et constitue une lentille de phase libre sur un rayon de 8 m avec une épaisseur de 5 cm du polluant flottant.

Après quelques temps, la pollution se propage dans le sous-sol dans les trois phases ; aqueuses (dissolution), gazeuse (évaporation) et solide (sorption). La pollution s'enveloppe d'un panache en phase gazeuse dans la zone non-saturée par l'action de la diffusion moléculaire.

Deux mois après l'accident, une intervention de restauration du site par la technique de l'extraction multiphasique classique sans rabattement de la nappe (de type **TPE**) est appliquée pendant 1année.

Pour simuler ce scénario, le modèle MPE complet est activé ; c'est-à-dire six équations EDPs, trois équations qui simulent l'écoulement multiphasique des trois phases avec leurs relations constitutives de capillarité, et trois équations qui simulent le transport et le transfert entre les trois phases (le modèle avec ces équations est détaillé dans le *chapitre III*).

Les paramètres nécessaires du sol (sable HN34) et du polluant (toluène) pour le modèle sont détaillés dans le *Tableau V-1*.

Paramètre	Symbole	Valeur
Perméabilité intrinsèque (HN34)	\overline{K}	3,75 10 ⁻¹¹ m ²
Porosité (HN34)	φ	0,4
Masse volumique apparente	$ ho_b$	1,59 g.cm ⁻³
Paramètre de VG	$lpha_{\scriptscriptstyle ng}$	2,8 m ⁻¹
Paramètre de VG	n_{vg}	5,8
Dispersivité longitudinale	$\alpha_{_L}$	2,75 cm
Saturation résiduelle en eau	S_{wr}	0,16
Saturation résiduelle maximale en PLNA	S_{or}^{\max}	0,15
Teneur en carbone organique	f_{oc}	0,03
Masse volumique de l'eau	$ ho_w$	1000 g.L ⁻¹
Viscosité de l'eau	$\mu_{_{w}}$	10 ⁻³ Pa.s
Masse volumique de l'air	$ ho_{g}$	1,28 g.L ⁻¹
Viscosité de l'air	μ_{g}	1,83 10 ⁻⁵ Pa.s
Masse molaire (toluène)	M_{β}	92,14 g.mol ⁻¹
Pression de vapeur saturant de toluène	$P^o_{g,eta}$	2910 Pa
Masse volumique de toluène (PLNA)	$ ho_o$	867 g .L ⁻¹
Tension superficielle (air-PLNA)	$\sigma_{_{gw}}$	28,5 10 ⁻³ N.m ⁻¹
Tension superficielle (PLNA-eau)	$\sigma_{_{ow}}$	34,5 10 ⁻³ N.m ⁻¹
Tension superficielle (air-eau)	$\sigma_{\scriptscriptstyle og}$	68,5 10 ⁻³ N.m ⁻¹
Viscosité dynamique de toluène	μ_o	0,59 10 ⁻³ Pa.s
Solubilité de toluène dans l'eau	$S_{\scriptscriptstyle W,\beta}$	0,515 g.L ⁻¹
Coefficient de partage octanol/eau	$k_{_{ow,eta}}$	490 L.kg ⁻¹
Coefficient de partage toluène/ carbone organique (Rahbeh et al., 2007)	$k_{oc,\beta}$	182 L.kg ⁻¹
Constante de Henry adimensionnelle	H_{β}	0,27
Coefficient de diffusion moléculaire du toluène dans l'air	$D^{o}_{g,eta}$	$8,7.10^{-6} \text{m}^2.\text{s}^{-1}$
Coefficient de diffusion moléculaire du toluène dans l'eau	$D^o_{\scriptscriptstyle W,eta}$	8,6 .10 ⁻¹⁰ m ² .s ⁻¹
Équivalant de la résistance à l'écoulement dans la crépine	L_x	5 cm
Saturation référentielle (modèle proposé dans chapitre IV)	S_o^{ref}	0,05
Constante du modèle proposé	β_{y}	2

Tableau V-1: Paramètres d'entré pour le modèle

Deux étapes de simulation sont réalisées ; l'infiltration, la redistribution et la propagation de la pollution dans le sous-sol pendant 2 mois, suivi de l'extraction multiphasique pendant 1 an. Les résultats de la fin de l'étape de propagation seront les conditions initiales de l'étape de l'extraction.

Les conditions aux limites pendant la première étape sont :

- pour l'écoulement :

De type Dirichlet :

 $P_g = atm$ (La surface du sol et l'extrémité droite)

 $P_w = (2-z)\rho_w g$ (L'extrémité droite)

De type Neumann :

 $q_o = 0.157 cm/\min 0 \le t \le 12h$ (la surface de l'infiltration)

 $(\nabla P_g + \rho_g g \nabla z) = 0$ (les autres limites)

 $(\nabla P_w + \rho_w g \nabla z) = 0$ (les autres limites)

pour la propagation de la pollution :
 De type Neumann :

 $\overline{D_g} \nabla C_g = 0$ (surface du sol)

 $q_g C_g - \overline{D_g} \nabla C_g = 0$ (les autres)

 $\overline{\overline{D_w}} \nabla C_w = 0$ (extrémité droite)

 $q_w C_w - \overline{\overline{D_w}} \nabla C_w = 0$ (les autres)

 $\nabla C_s = 0$ (partout)

 $\nabla S_o = 0$ (partout)

Les conditions aux limites pour la deuxième étape, l'extraction multiphasique :

Les conditions aux limites de l'écoulement et du transport sont celles de la dernière étape, sauf pour la crépine (un vide de 50 cmCE est appliqué (P_{puits})):

De type Neumann (à la crépine se trouve à -30 cm \div 90 cm du niveau de la nappe) :

$$q_{g} = \frac{Kk_{rg}}{\mu_{g}L_{x}}(P_{puits} - P_{g})$$
$$q_{w} = \frac{Kk_{rw}}{\mu_{w}L_{x}}(P_{puits} - P_{w})$$

$$q_o = \frac{Kk_{ro}}{\mu_o L_x} (P_{puits} - P_o)$$
$$\overline{\overline{D_g}} \nabla C_g = 0$$
$$\overline{\overline{D_w}} \nabla C_w = 0$$

Les autres conditions sont gardées les mêmes que celles de la dernière étape.

La *Figure V-1* schématise la géométrie, les conditions initiales et aux limites pour le scénario proposé.



Figure V-1: Géométries, conditions initiales et conditions aux limites pour le scénario MPE

V.2. Résultats de simulation de la propagation de la pollution

Les *Figures V-2(A-F)* montrent la progression du polluant dans le sous-sol au fil du temps. En effet, la quantité de PLNA est choisie de manière qu'elle soit suffisante pour traverser la zone non saturée, et atteindre la zone saturée. En laissant des traces derrière lui (saturation résiduelle en PLNA), le polluant flotte sur la zone saturée et constitue une lentille du PLNA libre. Cette dernière se propage au fil de temps jusqu'à atteindre l'extrémité du domaine (r=8m) en 15 jours.



Figures V-2 (A-F) : Évolution de la saturation de PLNA avec le temps (étape de propagation)

La *Figure V-3* montre la saturation résiduelle en PLNA, cette saturation est propositionnelle à la saturation en phase aqueuse (Benremita, 2002 ; Cotel, 2008).La saturation résiduelle en PLNA dans la ZNS est de 3à 4% par contre dans la ZS elle est de 5 à 7,5%.



Figure V-3: Saturation résiduelle en PLNA à 2 mois de propagation (étape de propagation)

Une dégradation de la saturation avec le temps est observée. Cette dégradation est plus remarquée dans la zone saturée, en effet cela est l'effet du transfert de masse avec les autres phases (gazeuse, aqueuse et solide). Cet effet est bien remarqué aussi sur la *Figure V-4* qui montre l'évolution du volume total du polluant (mobile, immobile et totale) avec le temps.



Figure V-4: Volume de PLNA total, résiduelle et mobile (étape de propagation)

À cause de la saturation résiduelle, la phase organique mobile récupérable diminue avec la propagation de la pollution, où plus de la moitié du polluant est retenue en phase PLNA immobile dans le sous-sol après une quinzaine de jours après le déversement.

Les modèles d'estimation du coefficient de transfert de masse entre phases (PLNA/phase gazeuse, phase aqueuse/phase gazeuse et PLNA/phase aqueuse) (*cf.* 0), sont liés aux vitesses des pores de la phase gazeuse et la phase aqueuse, respectivement. Cette vitesse est nulle partout. Ainsi afin de l'activer dans le sous-domaine, on ajoute une petite vitesse des pores correspondant à moins de 0,1% de la perméabilité intrinsèque aux modèles associés. Cette valeur donne des coefficients de transfert de masse interphases suivant :

 Tableau V-2: Coefficients de transfert entre les phases (étape de propagation)

PLNA/	PLNA/	phase aqueuse/	phase aqueuse/
phase gazeuse	phase aqueuse	phase gazeuse	phase solide
$\mathcal{\lambda}^{init}_{_{o-g,eta}}[\mathrm{h}^{ ext{-1}}]$	$\mathcal{\lambda}_{_{o-w,eta}}^{init}$ [h ⁻¹]	$\mathcal{\lambda}^{init}_{_{w-g},eta}$ [h ⁻¹]	$\mathcal{\lambda}^{init}_{_{w-s,eta}}$ [h ⁻¹]
2,4	$0,35{\div}0,97^*$	0,018	0,64

* : liée à la saturation en phase PLNA

Les valeurs du coefficient de transfert estimées sont proches de celles trouvées dans la littérature(Chao *et al.*, 2008 ; Gidda *et al.*, 2011 ; Rahbeh *et al.*, 2007 ; Rahbeh, 2004).



Figures V-5 (A-F): Concentration relative de polluant en phase gazeuse $(\frac{C_{g,\beta}}{C_{g,\beta}^{sat}})$ (étape de propagation)

Les *Figures V-5 (A-F)* montrent l'évolution de la concentration du polluant en phase gazeuse au fil de temps. Ici la concentration atteint presque la saturation au bout de 6 heures de propagation dans la zone non saturée (à la saturation résiduelle en PLNA).

Sous l'effet de la densité de la phase gazeuse (*cf. I.5.3.d*), la concentration la plus élevée se trouve en bas (au-dessus de la frange capillaire) et en contact avec la phase PLNA libre.

En outre l'évolution de la concentration gazeuse est plus rapide que celles en phase aqueuse (qui est presque nulle à cette échelle de temps). Cela montre bien l'effet de la diffusion moléculaire du polluant dans l'air, qui est 10^4 fois supérieure à celle en phase aqueuse.



Figures V-6 (A-F) : Concentration relative du polluant en phase aqueuse $\left(\frac{C_{w,\beta}}{S_{w,\beta}^{eff}}\right)$ (étape de propagation)

Les *Figures V-6 (A-F)* montrent l'évolution de la concentration en phase aqueuse. Au bout de 5 jours de propagation, la concentration en phase aqueuse atteint plus de 90% de la solubilité dans la ZS. Une autre remarque à noter : le panache de la phase gazeuse dans la ZNS se



dissout dans la phase aqueuse et forme aussi un panache dans la phase aqueuse et cette dernière s'adsorbe sur la phase solide (*Figures V-7(A-F)*).

Les *Figures V-7 (A-F)* montrent l'évolution de la concentration en phase solide. Au bout de 12 jours de propagation la concentration en phase solide atteint plus de 2500 mg.Kg⁻¹ dans la ZS. On remarque aussi que l'adsorption est un processus lent en comparant avec la dissolution et l'évaporation.



Figure V-8: Volume de PLNA transféré vers les phases (solide, aqueuse, gazeuse, vers l'atmosphère) (étape de propagation)

La *Figure V-8* montre l'évolution de la quantité totale du polluant transférée vers les différentes phases (solide, aqueuse, gazeuse et vers l'atmosphère). Au bout de 2 mois, plus de 1026 L de polluant est adsorbé sur la phase solide qui contient 3% de matière organique, 34,2 L dissous dans l'eau et 13,9 L évaporé dans l'air, dont 4,4 L part vers l'atmosphère. Ce qui représente 13% du polluant déversé, l'autre partie de polluant se trouve en phase PLNA (50% en phase piégé immobile et 37% en phase mobile).

V.3. Résultats de simulation de l'extraction multiphasique (MPE) de la pollution

La *Figure V-9* montre le champ de vitesse de Darcy et les lignes de courant pour la phase gazeuse à 2 jours d'extraction, elle montre que le rayon d'influence du puits au vide appliqué (50 cmCE) est de 4,7 m selon le terme utilisé dans la littérature (une vitesse qui dépasse 0,01 cm.s⁻¹). Elle montre aussi que plus de 80% du gaz extrait passe par cette zone.



Figure V-9: Lignes de courant et champ de vitesse en cm.s⁻¹ de la phase gazeuse (étape MPE)

La *Figure V-10* montre le champ de vitesse de Darcy et les lignes de courant de phase aqueuse à 2 jours d'extraction. Elle montre qu'à un rayon de 4,7 m la vitesse de Darcy dépasse 5 10⁻⁴ cm.s⁻¹. En effet l'emplacement de la crépine et le vide appliqué ont une influence importante sur le profil du champ de vitesses. Si la crépine est placée que dans la ZNS, cela provoque une montée da la nappe à côté du puits qui rend difficile l'extraction de la phase PLNA libre, cela interrompe la continuité de cette dernière. Par contre une crépine placée plutôt dans la frange et la ZS conduit à un débit important de la phase aqueuse et diminue l'extraction de la phase gazeuse. Le meilleur choix de l'emplacement de la crépine et du vide appliqué doit être fait par l'utilisation d'un modèle numérique validé pour répondre mieux aux objectifs de remédiation.



Figure V-10: Lignes de courant et champ de vitesse en cm.s⁻¹ de la phase aqueuse (étape MPE)

La *Figure V-11* montre la saturation et le champ de vitesse de Darcy de la PLNA. Ici on remarque que les vitesses sont très faibles (de l'ordre de 10^{-5} cm.s⁻¹) en comparant avec celles des autres phases. Cela est l'effet de sa faible perméabilité relative ; propositionnelle à sa saturation, qui diminue au fil de l'extraction, et rend difficile l'extraction de la PLNA libre.



Figure V-11: Saturation, lignes de courant et champ de vitesse en cm.s⁻¹ de la phase PLNA à 2 jours d'extraction (étape MPE)
La *Figure V-12* montre les débits d'extraction. Elle montre qu'au fils du temps les débits de phase aqueuse et de phase gazeuse augmentent légèrement pour le même vide appliqué, dû à l'augmentation de leurs perméabilités relatives avec la dégradation de PLNA. Un rapport de 100 entre les deux débits (2200/33 m³.jour⁻¹) est dû au rapport de leur viscosité dynamique et de leurs perméabilités relatives.



Figure V-12: Débit volumique d'extraction de phase aqueuse et phase gazeuse (étape MPE)

Les *Figures V-13 (A-H)* montrent l'évolution de la saturation en PLNA. Au bout de 20 jours d'extraction, la phase PLNA disparait de la ZNS à cause du flux convectif de la phase gazeuse qui évapore la PLNA. Le flux aqueux dissous la PLNA dans la nappe, au bout de 3 mois le polluant disparait là aussi. Mais en revanche le polluant résiste dans la frange capillaire, où les deux flux gazeux et aqueux sont faibles.

En effet il est possible d'améliorer la conception de ce système pour gagner du temps et de l'énergie soit par le rabattement de la nappe phréatique (par une pompe submersible, ou par une barrière hydraulique) qui rend la frange capillaire accessible aux flux gazeux, ou soit par l'utilisation de plusieurs puits d'extraction. Ici pour la même zone contaminée (rayon de 8m) on a besoin au moins de trois puits d'extraction.



Figures V-13 (A-H) : Évolution de la saturation de la PLNA avec le temps (étape MPE)

Les *Figures V-14(A-D)* montrent l'évolution de la concentration en phase gazeuse. Elles montrent que la concentration en phase gazeuse chute rapidement dans la ZS, mais résiste dans la frange capillaire, là où le flux gazeux est faible.



Figures V-14(A-D) : Concentration relative du polluant en phase gazeuse $(\frac{C_{g,\beta}}{C_{g,\beta}^{sat}})$ (étape MPE)



Figure V-15: Coefficient de transfert PLNA/gaz $\lambda_{o-g,\beta}$ en h⁻¹à 1 journée d'extraction (étape MPE)

La *Figure V-15* montre le coefficient de transfert de masse PLNA/gaz à 1 journée d'extraction. Elle montre qu'il est propositionnel à la vitesse de darcy mais aussi à la saturation en PLNA. Il est calculé par l'intégration du modèle de Wilkins (1995) et le modèle proposé dans *le chapitre IV*. Le coefficient diminue au fils de l'extraction avec la diminution de la PLNA.

Les *Figures V-16 (A-F)* montrent l'évolution de la concentration en phase aqueuse. Au bout de 50 jours la concentration chute jusqu'à zéro dans la ZNS, où le flux gazeux évapore le polluant dissous dans la phase aqueuse, mais résiste dans la frange capillaire.



Figures V-16(A-F) : Concentration relative du polluant en phase aqueuse $\left(\frac{C_{w,\beta}}{S_{w,\beta}^{eff}}\right)$ (étape MPE)

Les *Figure V-17* et *FigureV-18* montrent l'estimation du coefficient de transfert de masse phase aqueuse/phase gazeuse et PLNA/phase aqueuse, respectivement. Il est calculé par le modèle de stripping de Chao *et al.* (1998) dans le premier cas et le modèle Miller *et al.* (1990) dans le deuxième cas.



Figure V-17: Coefficient de transfert phase aqueuse/phase gazeuse $\lambda_{w-g,\beta}$ en $[h^{-1}]$ (étape MPE)



Figure V-18: Coefficient de transfert PLNA/phase aqueuse $\lambda_{o-w,\beta}$ en $[h^{-1}]$ à 1 journée (étape MPE)

L'évolution de la concentration en phase solide est représentée dans les *Figures V-19 (A-F)*. Au bout de 3 mois la concentration dans la ZNS chute à moins de 8 mg.kg⁻¹, moins du seuil VCI pour un sol à usage sensible. Mais par contre la concentration reste très élevée dans la frange capillaire, même après une année du traitement, où le polluant en PLNA résiste à l'extraction.



Des coefficients de transfert de masse moyens entre les différentes phases sont calculés par la formule suivante :

$$\lambda_{\alpha 1-\alpha 2,\beta}^{moy} = \frac{\iint\limits_{r,z} \varphi \, S_{\alpha} \, \lambda_{\alpha 1-\alpha 2,\beta}(r,z) \, dr \, dz}{\iint\limits_{r,z} \varphi \, S_{\alpha} \, dr \, dz}$$
(V-1)

La *Figure V-20* donne l'estimation de ces coefficients moyens. On remarque pour les trois coefficients PLNA/phase aqueuse, phase aqueuse/phase gazeuse, et phase aqueuse/phase solide, il subsiste une petite variance en comparant avec celui de PLNA/gaz. Cette variance est de 30 à 0,1 h⁻¹, ce qui explique l'importance de ce paramètre dans la modélisation de SVE/MPE.

Toute la difficulté de la modélisation est de trouver des modèles validés pour l'estimation des coefficients de transfert de masse (PLNA/gaz, PLNA/phase aqueuse, phase aqueuse/phase gazeuse, et phase aqueuse/phase solide), ce qui doit être fait expérimentalement à l'échelle du pilote ou à l'échelle du terrain.



Figure V-20: Estimation des coefficients de transfert moyens pour les différentes phases en [h⁻¹] (étape MPE)

La *Figure V-21* donne l'évolution du flux de polluant en phase extrait et le volume de polluant extrait par chaque phase. Elle montre qu'aux premiers jours on récupère plus de 180 L.jour⁻¹ de PLNA. Cette récupération ne dure pas longtemps. Le flux de la phase PLNA chute progressivement avec la diminution de la phase libre, à 100 jours de récupération de cette

phase. A 50 jours d'extraction on récupère presque la totalité de la PLNA mobile, soit 2385 L extrait sur 2870 L mobile. Ce qui représente 83% de rendement. Cela confirme l'efficacité de la MPE à récupérer la phase PLNA mobile.

La même remarque peut être faite pour le flux gazeux. Aux premiers jours (4 jours), le flux en phase gazeuse est important, plus de 50 L.jour⁻¹, mais il chute très rapidement avec la disparation de la PLNA dans la ZNS. Ce qui montre l'efficacité de SVE/MPE à traiter la ZNS.

Par contre, le flux en phase aqueuse reste modeste autour 10 L.jour⁻¹, car la plupart de la quantité du polluant est piégée dans la frange capillaire non accessible au flux aqueuse.



Figure V-21: Flux du polluant en phase gazeuse, aqueuse et PLNA et volume d'extraction en fonction de temps (étape MPE)

La *Figure V-22*, montre l'évolution de la concentration relative en phase aqueuse et gazeuse au fils du temps. La concentration en phase gazeuse chute très rapidement, après l'évacuation du polluant en PLNA. L'étape diffusionelle (effet de traînée) de la courbe est bien observée.

La concentration en phase aqueuse a la même allure générale, mais la concentration dans l'étape diffusionnelle reste importante, car le polluant dans la frange capillaire reste plus accessible au flux aqueux qu'au flux gazeux.



Figure V-22: Concentration relative en phase aqueuse et phase gazeuse (étape MPE)

V.4. Conclusion

Ce dernier chapitre a permis de tester l'ensemble du modèle MPE mis au point et vérifié précédemment en le fractionnant en plusieurs parties.

Deux étapes sont effectuées dans ce chapitre : étape de propagation du polluant et étape de l'application de la MPE.

L'étape de la propagation de la pollution a permis de simuler l'étendu de la pollution sur une période de deux mois avec la distribution du polluant dans les différentes phases ainsi que dans les deux zones du sol ZS et ZNS. Les valeurs du coefficient de transfert sont estimées. Les résultats ont mis en évidence la diminution de la saturation résiduelle en PLNA avec le

temps, due aux transferts entre phases. Il a été observé aussi que la propagation par diffusion de la phase gaz est plus importante que la phase liquide.

L'étape de l'application de la MPE montre en premier lieu l'influence importante de l'emplacement de la crépine et du vide appliqué sur le profil du champ de vitesse. Le modèle a montré aussi la limite de cette méthode dans la frange capillaire qui reste non dépolluée après une année de traitement. Ce qui confirme la nécessité d'améliorer la conception de ce système soit par le rabattement de la nappe phréatique qui rend la frange capillaire accessible aux flux gazeux, soit par l'utilisation de plusieurs puits d'extraction. Les valeurs du coefficient de transfert sont ici estimées à partir de modèles de la littérature. L'importance de la bonne identification de ce paramètre est mise en évidence.

Cet outil de modélisation reste très intéressant dans la conception d'un système d'extraction multiphasique. Il prend en compte un nombre important de paramètres utiles dans la conception. Le modèle est capable de prédire le temps de traitement et l'efficacité d'une configuration de conception et ainsi de trouver la meilleure conception.

Cette simulation d'un scénario de la MPE avait le but de tester la capacité du modèle à répondre à une problématique de dépollution sur terrain. Il manque la vérification par la comparaison avec des résultats issus de données de terrain.

CONCLUSION ET PERSPECTIVES

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

L'extraction multiphasique est une technique de remédiation in-situ très efficace pour les polluants volatils qui opère en zone saturée et zone non saturée du sol. Dans ce travail le but était de construire un modèle numérique permettant de simuler l'opération de dépollution via cette technique.

En première étape de travail le modèle général numérique est réalisé. Il permet de décrire l'écoulement multiphasiques des fluides, le transport et le transfert de masse entre les phases. Il se compose de trois EDPs pour l'écoulement (gazeuse, aqueuse et PLNA) et quatre EDPs pour le transport, et ce pour chaque composé soit sept équations aux dérivées partielles à résoudre. Sa vérification est réalisée par l'application de différents modules qui le constituent séparément sur des résultats expérimentaux.

En suite Nous avons réalisés des expériences sur deux types de sols sableux. La caractérisation de ces sols a permis de mesurer des propriétés physiques telles que les perméabilités et les courbes granulométriques ainsi que de tracer la courbe de rétention de l'eau qui a permis de déduire les paramètres de van Genuchten.

Des expériences de drainage dans la colonne 1D réalisées au laboratoire ont permis la vérification de la partie du modèle traitant l'écoulement diphasique. Le modèle a permis ainsi d'estimer des paramètres tels que : le débit à la sortie de la cellule, le volume drainé cumulé, la saturation, la charge hydraulique et la pression capillaire à différents endroits de la cellule. Par ailleurs, cette modélisation montre l'importance du choix des conditions aux limites de la sortie.

Cette vérification a été confirmée par l'utilisation des résultats d'expériences de drainage sur une cellule 2D de type Hele-show équipée de capteurs pour mesurer les saturations et les pressions à différents endroits issue de la littérature (Neumann, 1992). Une bonne concordance des résultats de modélisation avec ceux mesurés sur les différents capteurs est observée avec une erreur NRMSE de moins de 5%.

L'expérience d'infiltration sur cellule 2D réalisée au laboratoire ainsi que les résultats issus de la littérature (Neumann, 1992) sur le même type de cellule ont permis de vérifer la cohérence et la pertiences des approches thépriqueintroduites dans la partie du modèle d'écoulement multiphasique.

Une comparaison visuelle avec les résultats de l'expérience d'infiltration et du modèle donne une bonne concordance.

Les résultats de l'expérience menée par Neumann (1992) sur une cellule de Type Hele-show, sont comparés ceux de la modélisation numérique. Une bonne concordance est trouvée pour les capteurs de pression et pendant l'infiltration sur les capteurs de saturation. Aussi une comparaison visuelle entre les résultats confirme cette bonne concordance.

Le modèle du transport de polluant en phase gazeuse est vérifié avec succès par un essai de traçage mené sur colonne par Brusturean (2004). Les résultats de simulation montrent l'importance du choix de la dimension du modèle, où un modèle 1D surévalue le champ de la vitesse ainsi la convection comme un mécanisme de transport.

L'expérience d'extraction sous vide a permis de vérifier la partie du modèle transport/transfert de masse entre phase PLNA/phase gazeuse. Il s'agit ici de quatre essais menés sur une colonne simulant la technique SVE/Venting. Les essais ont été modélisés avec plusieurs modèles de transfert, et montrent que la dispersion hydrodynamique ne peut être négligée dans l'estimation du coefficient du transfert de masse et en particulier pour les faibles vitesses d'écoulement. En outre un modèle est proposé, ce modèle a la capacité de simuler avec une bonne concordance l'étape de diffusion (tailing effect).

En dernière application, le modèle MPE est appliqué à l'échelle du terrain. Les caractéristiques du sol sont fixées, les dimensions de la zone polluée et le type de pollution sont précisés. Un premier modèle est appliqué afin d'évaluer la propagation de la pollution dans le terrain. Ensuite le modèle MPE est utilisé afin de simuler l'étape de dépollution.

Les résultats de l'étape propagation de la pollution ont mis en évidence la diminution de la saturation résiduelle en PLNA avec le temps, dues aux transferts entre phases. Ces résultats ont montré aussi que la propagation par diffusion de la phase gaz est plus importante que la phase liquide.

L'étape de l'application de la MPE montre, en premier lieu, l'influence importante de l'emplacement de la crépine et du vide appliqué sur le profil du champ de vitesse. Le modèle a montré aussi la limite de cette méthode dans la frange capillaire qui reste non dépolluée après une année de traitement. Ce qui confirme la nécessité d'améliorer la conception de ce système soit par le rabattement de la nappe phréatique qui rend la frange capillaire accessible

aux flux gazeux, soit par l'utilisation de plusieurs puits d'extraction. Les valeurs du coefficient de transfert sont ici estimées à partir de modèles de la littérature. L'importance de la bonne identification de ce paramètre est mise en évidence.

Cet outil de modélisation reste très intéressant dans la conception d'un système d'extraction multiphasique. Il prend en compte un nombre important de paramètres utiles dans la conception. Le modèle est capable de prédire le temps de traitement et l'efficacité d'une configuration de conception et ainsi de trouver la meilleure conception.

Des voies d'amélioration du modèle sont nombreuses :

D'abords la prise en compte de certains phénomènes négligés dans ce travail tels que :

- la dégradation biologique nécessairement présente dans tous les sols,
- le phénomène d'hystérésis.
- le phénomène de sorption entre phase gazeuse/ phase solide,
- La réactions de dissoulution/précipitation des minéraux.

L'expérience pilote mise au point pendant la thèse peut être améliorée techniquement de façon à permettre de voir l'infiltration du polluant dans les différentes zones ZNS et ZN sans que des volumes morts ne perturbent l'écoulement. Des capteurs de mesure de pression, et de saturation peuvent être rajoutés au dispositif à différents niveau de profondeurs de sol. Enfin, l'opération de MPE peut être étudiée grace à ce nouveau dispositif ce qui donne des résultats à l'échelle pilote 2D qui peuvent être confrontés aux résultats du modèle.

La validation du modèle avec des résultats issus de l'expérimentation à l'échelle du terrain est aussi nécessaire pour tester sa robustesse et l'adopter pour d'éventuelles conceptions fines de la MPE et assurer de cette technologie vers le milieu socio-économique.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

References Bibliographiques

Abriola L. M., Lang J., Rathfelder K. *Michigan Soil vapor extraction remediation (MISER) model: A computer program to model soil vapor extraction and bioventing of organic chemicals in unsaturated geologic material*. Ada, OKlahoma, USA : United States Environmental Protection Agency(EPA), 1997. 239 p.

Abriola L. M. « Modeling Multiphase Migration of Organic Chemicals in Groundwater Systems-A Review and Assessment. » *Environ. Health Perspect.* 1989. Vol. 83, p. 117-143.

Abriola, Linda M., Pinder, George F. « A Multiphase Approach to the Modeling of Porous Media Contamination by Organic Compounds: 1. Equation Development. » *Water Resour. Res.* 1985. Vol. 21, n°1, p. 11- 18. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1029/WR021i001p00011 >

ADEME. Synthèse: Taux d'utilisation et coûts des differents technique et filiers de traitement des sols et des eaux souterraines pollues en France. France : 2012. 27 p. Disponible sur : < www.ademe.fr/publications >

ADEME. « Sites et sols pollués- technique de traitement. » In : *ADEME*. 2014. Disponible sur : < http://prod1-w2ademe.integra.fr/servlet/KBaseShow?sort=-1&cid=96&m=3&catid=22817 > (consulté le 22 octobre 2014)

ADEME. Atténuation naturelle des composés organo-chlorés aliphatiques dans les aquifères. France : ADEME, 2007a. 228 p. Disponible sur : < www.ademe.fr/publications >

ADEME. Modélisation du devenir des composés organique -chalorés aliphatiques dans la aquifères-guide méthodologique. France : ADEME, 2007b. 192 p. Disponible sur : < www.ademe.fr/publication >

Adenekan A. E., Patzek T. W., Pruess K. «Modeling of Multiphase Transport of Multicomponent Organic Contaminants and Heat in the Subsurface: Numerical Model Formulation. » *Water Resour. Res.* 1993. Vol. 29, n°11, p. 3727- 3740. Disponible sur : < http://gaia.pge.utexas.edu/papers/2-4WRR.pdf >

AFNOR. *Reconnaissance et essais géotechniques - Dénomination, description et classification des sols - Partie l : dénomination et description.* NF EN ISO 14688-1. 2003.

Ahmed M. E. *Experimental Investigation and Conceptual Model Development for Multiphase Flow in a Water-Wet Porous Medium With NAPL-wet Soil lenses.* Ottawa-Carleton Institute for Civil and Environmental Engineering, 2009. 359 p. Disponible sur : < http://www.collectionscanada.gc.ca/obj/thesescanada/vol2/002/NR60097.PDF >

Albergaria J. T., Alvim-Ferraz M. D. C., Delerue-Matos C. « Soil vapor extraction in sandy soils: influence of airflow rate. » *Chemosphere*. novembre 2008. Vol. 73, n°9, p. 1557- 61. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1016/j.chemosphere.2008.07.080 > (consulté le 18 juillet 2013)

Anwar a. H. M. F. « Mass Transfer Characteristics of Nonaqueous Phase Liquid Based on Air–Liquid Interfacial Area in Variably Saturated Porous Media. » *Water, Air, Soil Pollut.* 2013. Vol. 224, n°5,. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1007/s11270-013-1567-4 >

Armstrong J. E., Frind E. O., Mclellan R. D., McClellan R. D. « Nonequilibrium mass transfert between the vapor, aquous, and solide phases in unsaturated soils during vapor extraxtion. » *Water Resour. Res.* 1994. Vol. 30, n°2, p. 13. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1029/93WR02481 >

Arya L. M., Paris J. F. « A physicoempirical model to predict the soil moisture characteristic from particle-size distribution and bulk density data. » *Soil Sci. Soc. Am. J.* 1981. Vol. 45, p. 1023-1030.

Assouline S., Tessier D., Bruand A. « A conceptual model of the soil water retention curve. » *Water Resour. Res.* 1998. Vol. 34, n°2, p. 223- 231.

Ataie-Ashtiani B., Hassanizadeh S. M., Oostrom M., Celia M. a, White M. D. « Effective parameters for two-phase flow in a porous medium with periodic heterogeneities. » *J. Contam. Hydrol.* mai 2001. Vol. 49, n°1-2, p. 87-109. Disponible sur : < http://www.ncbi.nlm.nih.gov/pubmed/11351517 >

Baehr A. L., Hult M. F. «Evaluation of Unsaturated Zone Air Permeability Through Pneumatic Tests. » *Water Resour. Res.* 1991. Vol. 27, n°10, p. 2605- 2617. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1029/91wr01655 >

Baehr A. L. « Selective transport of hydrocarbons in the unsaturated zone due to aqueous and vapor phase partitioning. » *Water Resour. Res.* 1987. Vol. 23, p. 1926-1938.

BASIAS. « Base de données BASIAS invetaire historique de sites industerils et activités de service. » In : *BRGM*. 2014. Disponible sur : < http://basias.brgm.fr/donnees.asp > (consulté le 22 octobre 2014)

BASOL. « Base de données sur les sites et sols pollués BASOL. » In : *Ministère l'Écologie, du Développement Durable l'Énergie*. 2014. p. Tableaux de bord. Disponible sur : < http://basol.developpement-durable.gouv.fr/tableaux/home.htm > (consulté le 22 octobre 2014)

Benremita H. Approche Expérimentale et Simulation Numerique du Transfert de Solvants chlorés en Aquifère Alluvial Contrôlé. Université Louis Pasteurde Strasbourg, 2002. 281 p.

Benson D. A. A Two-Dimanional, Finite-Difference Model of The Phase Distribution and Vapor Transport of Multipe Compounds. San Diego State University, 1992. 93 p. Disponible sur : < http://inside.mines.edu/~dbenson/vent/thesis.pdf >

Bohy M. Caracterisation de sources pollution composés d'un mélange de solvants chlorés en aquifère alluvial: expérimentations en laboratoire et sur site contrôlé associées à la simulation numérique. Université de Louis Pasteur deStrasbourg, 2003. 183 p. Disponible sur : < http://scd-theses.u-strasbg.fr/916/01/Bohy2004.pdf >

Boudouch O. *Etude de la depollution des sols par extraction sous pression reduite: application au traitement des COV*. INSA de Lyon, 2009. 202 p.

Bour O. Synthèse des Résultats des Modélisations Multiphasiques du Programme TRANSPOL. 2003. 27 p.

BRGM. Quelles techniques pour quels traitements - Analyse coûts- bénéfices France : 2010.

399 p. Disponible sur : < www.developpement-durable.gouv.fr/ >

BRGM. *Guide « Modélisation des écoulements et des transferts des éléments traces en zone non saturée ».* 2012. 115 p. Disponible sur : < www.developpement-durable.gouv.fr/ >

BRGM. *Guide sur le comportement des pollants dans le sol et les nappes*. 2008. 39 p. Disponible sur : < www.developpement-durable.gouv.fr/ >

Broholm K., Feenstra S. « Laboratory measurements of the aqueous solubility of mixtures of chlorinated solvents. » *Environ. Toxicol. Chem.* 1995. Vol. 14, p. 9-15.

Brooks R. H., Corey A. T. « Hydraulic properties of porous media. » *Hydrol Pap Fort Collins CO Colo State Univ.* 1964. Vol. 3, n°3, p. 27 pgs.

Brown C. L., Pope G. A., Abriola L. M., Sepehmoori K. « Simulation of surfactant rnhanced aquifer remediation. » *Water Resour. Res.* 1994. Vol. 30, n°11, p. 2959- 2977.

Brusseau M. L., Jessup R. E., Rao P. S. C. « Nonequilibrium sorption of organic chemicals: Elucidation of rate-limiting processes. » *Environ. Sci. Technol.* 1991. Vol. 25, p. 134-142.

Brusseau M. L., Rao P. S. C. « Sorption nonideality during organic contaminant transport in porous media. » *CRC Crit. Rev. Environ. Control.* 1989. Vol. 19, n°1, p. 33-99.

Brusseau M. L. « Rate – limited mass transfer and transport of organic solutes in porous media that contain immobile immiscible organic liquid. » *Water Resour. Res.* 1992. Vol. 28, $n^{\circ}1$, p. 33- 45.

Brusturean G. A. *Dépollution des Sols par Venting et Extraction Sous Pression Réduite: Etude Experimentale, Modélisation et Simulation Numerique.* INSA de Lyon, 2004. 249 p.

Brutsaert W. « Some methods of calculating unsaturated permeability. » *Am. Soc. Agric. Eng.* 1966. Vol. 10, p. 400–404.

Burdine N. T. « Relative permeability calculations from pore size distribution data. » *J. Pet. Technol.* 1953. Vol. 5, p. 71–78.

Calvet R. Le sol - Propriétés et fonctions Tome 1: Constitution et structure, phénomènes aux interfaces. 2003. 455 p.

CampagnoloJR. J. F. Soil Vapor Extraction (SVE) Systems, Modeling and Experiments. Texas A&M University, 1995. 182 p.

Carman P. C. « Fluid Flow through Granular Beds. » *Trans.Inst.Chem. Eng.* 1937. Vol. 15, p. 150.

Carrier W. D. « Goodbye, Hazen; Hello, Kozeny-Carman. » *Geotech. Geoenvironmental Eng.* 2003. p. 1054.

Chai J.-C., Miura N. « Field vapor extraction test and long-term monitoring at a PCE contaminated site. » *J. Hazard. Mater.* 5 juillet 2004. Vol. 110, n°1-3, p. 85- 92. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1016/j.jhazmat.2004.02.041 > (consulté le 18 juillet 2013)

Chao K.-P., Ong S. K., Huang M.-C. « Mass transfer of VOCs in laboratory-scale air sparging tank. » *J. Hazard. Mater.* 15 avril 2008. Vol. 152, n°3, p. 1098- 107. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1016/j.jhazmat.2007.07.087 >

Chao K.-P., Say Kee O., Angelos P. « Water-to-Air Mass Transfer of VOCs: Laboratory-Scale Air Sparging System. » *J. Environ. Eng.* 1998. Vol. 124, n°11, p. 1054-1060. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1061/(ASCE)0733-9372(1998)124:11(1054) >

Cheng C., Chen X. « Evaluation of Methods for Determination of Hydraulic Properties in an Aquifer- Aquitard System Hydrologically Connected to River. » *Hydrogeol. J.* 2007. Vol. 15, p. 669-678.

Cho J. S., Digiulio D. C., Wilson J. T., Vardy J. A. « In-situ Air Injection , Soil Vacuum Extraction and Enhanced Biodegradation : A Case Study i n ap-4 Jet Fuel Contaminated Site. » *Environ. Prog.* 1997. Vol. 16, n°1, p. 35-42.

Class H., Helmig R., Bastian P. « Numerical simulation of non-isothermal multiphase multicomponent processes in porous media . 1 . An efficient solution technique. » *Adv. Water Resour.* 2002. Vol. 25, p. 533- 550.

Conceic M. « Remediation efficiency of vapour extraction of sandy soils contaminated with cyclohexane : Influence of air flow rate , water and natural organic matter content. » *Environ. Pollut.* 2006. Vol. 143, p. 146- 152. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1016/j.envpol.2005.10.040 >

Corapcioglu M. Y., Baehr A. L. « A compositional multiphase model for groundwater contamination by petroleum products: 1. Theoretical considerations. » *Water Resour. Res.* 1987. Vol. 32, n°1, p. 191- 200.

Corey A. T. *Mechanics of heterogeneous fluids in porous media*. Colorado, USA : Water Resources Publications, 1977. 259 p.

Cotel S. Etude des transferts sol/nappe/atmosphère/bâtiments Application aux sols pollués par des Composés Organiques Volatils. Université Joseph Fourier - Grenoble I, 2008. 203 p.

Dassargues A. « Theorie de l'approche hydrogeologique des écoulements et transports en zone partiellement saturée. » In : *Ann. la société géologique Bélgique*. Liège : 1996. p. 71-89.

Delshad M., Pope G. A., Sepehrnoor K. « A compositional simulation for modeling surfactant enhanced aquifer remediation, 1: Formulation. » *J. Contam. Hydrol.* 1996. Vol. 23, n°4, p. 303- 327.

DiGiulio D. C., Cho J. S. « Pneumatic pumping test for soil vacuum extraction. » *Environ. Prog.* 1992. Vol. 11, n°3, p. 228-233. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1002/ep.670110319 >

DiGiulio D. C., Varadhan R. *Development of Recommendations and Methods to Support Assessment of Soil Venting Performance and Closure*. Washington ,DC, 20460 : U. S. Environmental Protection Agency, Office of Research and Development, 2001a. 394 p. Disponible sur : < http://www.epa.gov/nrmrl/pubs/600r01070/600r01070.pdf >

DiGiulio D. C., Varadhan R. « Limitation of ROI Testing for Venting Design: Description of

an Alternative Approach Based on Attainment of a Critical Pore-Gas Velocity in Contamiated Media. » *GWMR*. 2001b. Vol. winter, n°1, p. 97- 114. Disponible sur : < http://dx.doi.org/ 10.1111/j.1745-6592.2001.tb00635.x >

Dixon K. L., Nichols R. L. « Soil vapor extraction system design: A case study comparing vacuum and pore-gas velocity cutoff criteria. » *Remediat. J.* 2006. Vol. 17, n°1, p. 12. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1002/rem.20112 >

Doherty J., Muffels C., Rumbaugh J., Tonkin M. «BEST.» 2014. Disponible sur: < http://www.pesthomepage.org/ >

Dridi L. Transport d'un Mélange de Solvants Chlorés en Aquifère Poreux Hétérogène: Expérimentations sur Site Contrôlé et Simulations Numériques. Université Louis Pasteur de Strasbourg, 2006. 234 p.

Duggal A., Zytner R. G. « Comparison of one- and three-dimensional soil vapour extraction experiments. » *Environ. Technol.* 1 avril 2009. Vol. 30, n°4, p. 407- 19. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1080/09593330902753545 >

Dutheil C. Dépollution des sols par extraction sous pression réduite : étude de quelques paramètres. INSA de Lyon, 2003. 243 p.

Falta R. W., Javandel I., Pruess K., Witherspoon P. A. « Density-driven flow of gas in the
unsaturated zone due to the evaporation of volatile organic compounds. » Water Resour. Res.
1989. Vol. 25, n°10, p. 2159- 2169. Disponible sur : <
http://dx.doi.org/10.1029/WR025i010p02159 >

Falta R. W., Pruess K., Javandel I., Witherspoon P. A. « Numerical modeling of steam injection for the removal of nonaqueous phase liquids from the subsurface, I. Numerical formulation. » *Water Resour. Res.* 1992. Vol. 28, n°2, p. 4436449.

Falta R. W. R. W., Pruess K., Javandel I., Witherspoon P. A. P. A., Ruess K. « Numerical modeling of steam injection for the removal of nonaqueous phase liquids from the subsurface, I. Numerical formulation. » *Water Resour. Res.* 1992. Vol. 28, n°2, p. 4436449. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1029/91WR02526 >

Ferraz D. M., Albergaria J. T., Matos C. « Soil remediation time to achieve clean-up goals II: Influence of natural organic matter and water contents. » *Chemosphere*. juillet 2006. Vol. 64, n°5, p. 817-25. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1016/j.chemosphere.2005.10.065 > (consulté le 18 juillet 2013)

Fischer U., Schulin R., Keller M. « Experimental and Numerical Investigation of Soil Vapor Extraction. » *Water Resour. Res.* 1996. Vol. 32, n°12, p. 14. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1029/95WR02668 >

Fredlund D. G., Xing A. « Equations for the soil-water characteristic curve. » *Can. Geotech. J.* 1994. Vol. 31, n°4, p. 521–532. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1139/t94-061 >

Gaganis P., Karapanagioti H. K., Burganos V. N. « Modeling multicomponent NAPL transport in the unsaturated zone with the constituent averaging technique. » Adv. Water Resour. 2002. Vol. 25, n°2002, p. 723-732.

Gardner W. R. « Some steady state solutions of the unsaturated moisture flow equation with application to evaporation from a water table. » *Soil Sci.* 1958. Vol. 85, n°2, p. 228–232. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1097/00010694-195804000-00006 >

Van Geel P. J., Sykes J. F. « Laboratory and model simulations of a LNAPL spill in a variably-saturated sand. II: Comparison of laboratory and model results. » *J. Contam. Hydrol.* 1994. Vol. 17, n°1, p. 27-53. Disponible sur : < http://cat.inist.fr/?aModele=afficheN&cpsidt=3338283 > (consulté le 23 juillet 2013)

Genuchten M. J., Alves W. J. Analytical solutions of the one-dimensional convectivedispersive solute transport equation. Washington, USA : 1982. 149 p.

van Genuchten M. T., Leij F. J., Yates S. R. *The RETC Code for Quantifying the Hydraulic Functions of Unsaturated Soils, Version 1.0.* Riverside, California, USA : 1991.

van Genuchten M. T. « A closed form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils. » *Soil Sci. Soc. Am. J.* 1980. Vol. 44, n°5, p. 892–898. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.2136/ sssaj1980.03615995004400050002x >

Gidda T., Cann D., Stiver W. H., Zytner R. G. « Airflow dispersion in unsaturated soil. » *J. Contam. Hydrol.* 2006. Vol. 82, n°1-2, p. 14. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1016/j.jconhyd.2005.09.005 >

Gidda T. S. Mass transfer processes in the soil vapour extraction of gasoline from unsaturated soils. Guelph, Canada : University of Guelph, 2003. 440 p.

Gidda T., Stiver W. H., Zytner R. G. « Measuring Aqueous-Air and Sorbed-Aqueous Mass Transfer Coefficients for Application in Soil Vapor Extraction. » *J. Environ. Eng.* 2011. Vol. 137, n°10, p. 880- 888. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1061/(ASCE)EE.1943-7870.0000405. >

Gierke J. S., Hutzler N. J., Crittenden J. C. « Modeling the movement of volatile organic chemicals in columns of unsaturated soil. » *Water Resour. Res.* 9 juillet 1990. Vol. 26, n°7, p. 1529- 1547. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1029/WR026i007p01529 > (consulté le 13 janvier 2016)

Gierke J. S., Hutzler N. J., McKenzie D. B. « Vapor transport in unsaturated soil columns: Implications for vapor extraction. » *Water Resour. Res.* 1992. Vol. 28, n°2, p. 12. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1029/91WR02661 >

Goss K.-U. « The air/surface adsorption equilibrium of organic compounds under ambient conditions. » *Crit. Rev. Environ. Sci. Technol.* 2004. Vol. 34, p. 339–389.

Gossett J. M. «Measurement of Henry's Law constant for C1 and C2 chlorinated hydrocarbons. » *Environ. Sci. Technol.* 1987. Vol. 21, p. 202–208.

Guarnaccia J. F., Imhoff P. T., Missildine B. C., Oostrom M., Celia M. A., Dane J. H., Jaffe P. R., Pinder G. F. *Multiphase Chemical Transport in porous media*. 1992. EPA/600/S-92/002, March. p.

Guarnaccia J., Pinder G., Fishman M. *NAPL : Simulator Documentation*. OKLAHOMA, USA : U.S. Environmental Protection Agency, 1997. 221 p. Disponible sur : <

www.epa.gov/ada/csmos/mode ls/napl.html >ISBN : EPA/600/R-97/102.

Harper B. An experimental and numerical modelling investigation of soil vapour extraction in a silt loam soil. University of Guelph, 1999. 380 p. Disponible sur : < http://primo.tug-libraries.on.ca/primo_library/libweb/action/dlDisplay.do?docId=vtug3101561&vid=GUELPH &query=any,contains&indx=1&bulkSize=2&dym=true&highlight=true?=eng >

Hazen A. *Physical Properties of Sands and Gravels, with Special Reference to their Use in Filtration.* Massachusetts, USA : 1892. Doc. No.34, 539-5 p.

Helmig R. Multiphase flow and transport processes in the subsurface : A contribution to the modeling of hydrosystems. Springer, 1997. 363 p.

Hillel D. Fundamentals of Soil Physics. San Diego, Canada : Academic Press, 1980.

Hofstee C., Oostrom M., Dane J. ., Walker R. . « Infiltration and redistribution of perchloroethylene in partially saturated, stratified porous media. » *J. Contam. Hydrol.* novembre 1998. Vol. 34, n°4, p. 293-313. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1016/S0169-7722(98)00101-6 >

Høier C. K., Sonnenborg T. O., Jensen K. H., Gudbjerg J. « Model analysis of mechanisms controlling pneumatic soil vapor extraction. » *J. Contam. Hydrol.* 26 janvier 2009. Vol. 103, n°3-4, p. 82- 98. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1016/j.jconhyd.2008.09.008 > (consulté le 15 mars 2012)

Imhoff P. T., Jaffe P. R., Pinder G. F. « An experimental study of complete dissolution of nonaqueous phase liquid in saturated porous media. » *Water Resour. Res.* 1994. Vol. 30, n°2, p. 307- 320.

INERIS. Retour d'expérience sur la gestion des sites pollués en France VDSS, VCI-sols, outils génériques pour l'évaluation des sites pollués: Évaluation et perspectives. 2006. 75 p. Disponible sur : < http://www.ineris.fr/centredoc/Rapport.pdf >

INERIS. « la base de données de paramètres de sorption et biodégradation de substances organiques BDP SORP-BIO. » 2009. p. 1-23. Disponible sur : < http://www.ineris.fr/transpol/

INERIS. *Fiche technique de Toluène*. 2005. p. 1- 23. Disponible sur : < www.ineris.fr/substances/fr >

J.F. Daian. Equilibre et Transferts en Milieux Poreux. Université Joseph Fourier, 2013. 646 p.

Jellali S., Benremita H., Muntzer P., Razakarisoa O., Schäfer G. « A large-scale experiment on mass transfer of trichlorethylene from the unsaturated zone of a sandy aquifer to its interfaces. » *J. Contam. Hydrol.* 2003. Vol. 60, n°1-2, p. 31- 53. Disponible sur : < http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0169772202000621 >

Jennings A. A., Patil P. « Feasibility modeling of passive soil vapor extraction. » *J. Environ. Eng. Sci.* 1 mars 2002. Vol. 1, n°2, p. 157-172. Disponible sur : <http://dx.doi.org/10.1139/s02-009 >

Julio S. S. Di, Shallenberger W. H. « Bioslurping-Horizontal Radial Flow- Theory and

Experimental Validation.» *J. Hazard. Subst. Res.* 2002. Vol. 3, n°818, p. 1- 19. Disponible sur : < http://www.engg.ksu.edu/HSRC/JHSR/v3_no6.pdf >

Kaleris V. « Influence of Rate-Limited Sorption on the Cleanup of Layered Soils by Vapor Extraction. » *J. Contam. Hydrol.* 2002. Vol. 55, p. 1 - 27.

Kaluarachchi J. J., Parker J. C. «Multiphase flow with a simplified model for oil entrapment.» *Transp. Porous Media.* 1992. Vol. 7, n°1, p. 1-14. Disponible sur : <http://dx.doi.org/10.1007/BF00617314 >

Kaluarachchi J. J., Parker J. C. « Modeling multicomponent organic chemical transport in three - fluid -phase porous media. » *J. Contam. Hydrol.* 1990. Vol. 5, p. 349- 374.

Karickhoff S. W., Brown D. S., Scott T. A. « Sorption of hydrophobic pollutants on natural sediments. » *Water Resour. Res.* 1979. Vol. 13, p. 241- 248.

Karickhoff S. W., Morris K. R. « Sorption dynamics of hydrophobic pollutants in sediment suspensions. » *Environ. Toxicol. Chem.* 1985. Vol. 4, p. 469- 479.

Katyal A. K., Kaluarachchi J. J., Parker J. C. *MOFAT: A two- Dimensional finite element program for multiphase flow and multicomponent transport*. Oklahoma, USA : 1991. 107 p. Disponible sur : < http://nepis.epa.gov/Adobe/PDF/P1007S6W.PDF >

Kittel J. A., Leeson A., Hinchee R. E., Miller R. E., Haas P. E. « Results of a Multi-Site Field Treatability Test for Bioslurping: A Comparison of LNAPL Rates Using Vacuum-Enhanced Recovery (Bioslurping), Passive Skimming, and Pump Drawdown technologies. » In : *Pet. Hydrocarb. Org. Chem. Groundw. Prev. Detect. Remediat. Conf. Expo.* Houston, USA : 1995. p. 305- 321.

Klenk I. D., Grathwohl P. « Transverse vertical dispersion in groundwater and the capillary fringe. Journal of Contaminant Hydrology, 58 (1-2), p. 111-128. » *J. Contam. Hydrol.* 2002. Vol. 53, n°1-2, p. 111- 128.

Kozeny J. « Uber Kapillare Leitung Des Wassers in Boden. Sitzungsber Akad. » Wiss. Wien Math.Naturwiss. Kl. 1927. Vol. 136, n°Abt.2a, p. 271- 306.

Lemière B., Seguin J. J., Le Guern C., Guyonnet D., Baranger P., Darmendrail D., Conil P. *Guide sur Le Comportement des Polluants dans les Sols et les Nappes: Application dans un Contexte d'Evaluation Détaillée des Risques pour les Resources en Eau*. France : Ministère de L'Amenagement du Territoire et de L'Environnement, 2001. 103 p.

Lenhard R. J., Oostrom M., Dane J. H. « A constitutive model for air-NAPL-water flow in the vadose zone accounting for immobile, non-occluded (residual) NAPL in strongly water-wet porous media. » *J. Contam. Hydrol.* septembre 2004. Vol. 71, n°1-4, p. 283- 304. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1016/j.jconhyd.2004.07.005 > (consulté le 18 octobre 2012)

Lenhard R. J., Oostrom M., White M. D. D. « Modeling fluid flow and transport in variably saturated porous media with the STOMP simulator. 2. Verification and validation exercises. » *Adv. Water Resour.* janvier 1995. Vol. 18, n°6, p. 365- 373. Disponible sur : <http://dx.doi.org/10.1016/0309-1708(95)00019-F >

Lenhard R. J., Parker J. C., Kaluarachchi J. J. « A model for hysteretic constitutive relations governing multiphase flow 3. Refinements and numerical simulations. » *Water Resour. Res.* 1989. Vol. 25, n°7, p. 1727-1736.

Lenhard R. J. « Measurement and modeling of three-phase saturation-pressure hysteresis. » *J. Contam. Hydrol.* mars 1992. Vol. 9, n°3, p. 243- 269. Disponible sur : <http://dx.doi.org/10.1016/0169-7722(92)90007-2 >

Leverett M. . « Capillary behaviour in porous solids. » *Trans. AIME*. 1941. Vol. 142, p. 159–172.

Lyman W. J., Reehl W. F., Rosenblatt O. H. Handbook of Chemical Property Estimation Method: Environmental Behavior of Organic Compounds. American Chemical Society, 1990.

Marshall T. J. « The diffusion of gases through porous media. » J. Soil Sci. 1959. Vol. 10, p. 79-82.

Mayer A. S., Miller C. T. « The influence of porous medium characteristics and measurement scale on pore-scale distributions of residual nonaqueous-phase liquids. » *J. Contam. Hydrol.* 1992. Vol. 11,.

Mendoza C. A., Frind E. O. « Advective–dispersive transport of dense organic vapors in the unsaturated zone. 1. Model development. » *Water Resour. Res.* 1990. Vol. 26, n°3, p. 379–387.

Mercer J. W., Cohen R. M. « A review of immiscible fluids in the subsurface: properties, models, characterization and remediation. » *J. Comput. Phys.* 1990. Vol. 6, p. 107-163.

Miller C. T., Christakos G., Imhoff P. T., Mcbride J. F., Pedit J. A., Trangenstein J. a. « Multiphase flow and transport modeling in heterogeneous porous media: challenges and approaches. » *Adv. Water Resour.* mars 1998. Vol. 21, n°2, p. 77-120. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1016/S0309-1708(96)00036-X >

Miller C. T., Poirier-McNeil M. M., Mayer A. S. « Dissolution of Trapped Nonaqueous Phase Liquids: Mass Transfer Characteristics. » *Water Resour. Res.* 1990. Vol. 26, n°11, p. 2783- 2796. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1029/WR026i011p02783 >

Millington R. . «Gas diffusion in porous media.» Science (80-.). 1959. Vol. 130, p. 100- 102.

Millington R. J., Quirk J. . . « Permeability of porous solids. » *Trans. Faraday Soc.* 1961. Vol. 57, p. 1200- 1207.

Moldrup P., Poulsen T. G., Schjønning P., Olesen T., Yamaguchi T. « Gas Permeability in Undisturbed Soils: Measurements and Predictive Models. » *Soil Sci.* 1998. Vol. 163, n°3, p. 180- 189. Disponible sur : < http://journals.lww.com/ >

Moldrup P. T., Olesen J., Gamst P., Schjonning T., Yamaguchi D. R. « Predicting the gas diffusion coefficient in repacked soil: Water-induced linear reduction model. » *Soil Sci. Soc.* 2000. Vol. 64, p. 1588- 1594.

Mualem Y. « A new model for predicting hydraulic conductivity of unsaturated porous

media.» Water Resour. Res. 1976. Vol. 12, n°3, p. 513–522. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1029/WR012i003p00513 >

Neumann T. C. *Physical Modelling of LNAPL Infiltration in the Unsaturated Zone of a Sand*. New Brunswick, 1992. 246 p. Disponible sur : < http://www.nlcbnc.ca/obj/s4/f2/dsk2/ftp01/MQ30010.pdf >

Ng K. M., Davis H. T., Scriven L. E. « Visualization of blob mechanics in flow through porous media. » *Chem. Eng. Sci.* 1978. Vol. 33, n°8, p. 1009-1017. Disponible sur : <http://dx.doi.org/10.1016/0009-2509(78)85004-0 >

Nguyen V. T., Zhao L., Zytner R. G. « Three-dimensional numerical model for soil vapor extraction. » *J. Contam. Hydrol.* 2013. Vol. 147, p. 82-95. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1016/j.jconhyd.2013.02.008 >

Nuske P., Joekar-Niasar V., Helmig R. « Non-equilibrium in multiphase multicomponent flow in porous media: An evaporation example. » *Int. J. Heat Mass Transf.* juillet 2014. Vol. 74, p. 128- 142. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2014.03.011 > (consulté le 25 juin 2014)

Odong J. « Evaluation of Empirical Formulae for Determination of Hydraulic Conductivity based on Grain-Size Analysis. » *Int. J. Agr. 1 Env.* 2013. Vol. 01, p. 1-8. Disponible sur : < http://www.engineerspress.com/ >

OnePlan I. « Estimating Soil Moisture. » 25 octobre 2000. Disponible sur : < http://www.oneplan.org/Water/soil-triangle.asp > (consulté le 17 mars 2015)

Pantazidou M., Sitar N. « Emplacement of nonaqueous liquids in the vadose zone. » *Water Resour. Res.* 9 mars 1993. Vol. 29, n°3, p. 705-722. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1029/92WR02450 >

Parker J. C., Lenhard R. J., Kuppusamy T. « A parametric model for constitutive properties governing multiphase flow in porous media. » *Water Resow. Res.* 1987. Vol. 23, n°4, p. 618- 624.

Penman H. . « Gas and vapor movements in the soil. I. The diffusion of vapors through porous solids. » J. Agric. SCI. 1940. Vol. 30, p. 437-462.

Pfunnkuch H. O. « Contribution à l'étude des déplacements de fluides miscibles dans un milieu poreux. » *Rev. Fr. l'institut du Pétrole*. 1963. Vol. 18, n°2, p. 215- 270.

Poulsen T. G., Moldrup P., Yamaguchi T., Schjønning P., Hansen J. A. « Predicting Soil-Water and Soil-Air Transport Properties and Their Effects on Soil-Vapor Extraction Efficiency. » *GWMR*. 1999. Vol. Summer, p. 61-70.

Powers S. E., Abriola L. M., Weber J. W. J., Weber W. J. « An experimental investigation of nonaqueous phase liquid dissolution in saturated subsurface systems: Transient mass transfer rates. » *Water Resour. Res.* 1994. Vol. 30, n°2, p. 321-332. Disponible sur : <http://dx.doi.org/10.1029/93WR02923 >

Powers S. E., Loureiro C. O., Abriola L. M., Weber J. W. J. « Theoretical study of the

significance of nonequilibrium dissolution of nonaqueous phase liquids in subsurface systems. » *Water Resour. Res.* 1991. Vol. 27, n°4, p. 463- 477.

Rahbeh M. E., Mohtar R. H. « Application of multiphase transport models to field remediation by air sparging and soil vapor extraction. » *J. Hazard. Mater.* 8 mai 2007. Vol. 143, n°1-2, p. 156- 70. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1016/j.jhazmat.2006.09.098 > (consulté le 18 décembre 2010)

Rahbeh M. E. Analysis of Mas Transfer Processes During Advective Air Movement in Contaminated Soil. Purdue University, 2004. 163 p.

Rathfelder K. M., Lang J. R. J. R., Abriola L. M. « A Numerical Model (MISER) for the Simulation of Coupled Physical, Chemical and Biological Processes in Soil Vapor Extraction and Bioventing Systems. » *J. Contam. Hydrol.* mai 2000. Vol. 43, n°3-4, p. 239- 270. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1016/S0169-7722(00)00086-3 >

Rathfelder K., Yeh W. W.-G., Mackay D. « Mathematical simulation of soil vapor extraction systems: model development and numerical examples. » *J. Contam. Hydrol.* 1991. Vol. 8, p. 263-297.

Reeves H. W., Abriola L. M. « An iterative compositional model for subsurface multiphase flow. » *J. Contam. Hydrol.* avril 1994. Vol. 15, n°4, p. 249- 276. Disponible sur : <http://dx.doi.org/10.1016/0169-7722(94)90030-2 >

Reeves P. C., Celia M. a. « A Functional Relationship Between Capillary Pressure, Saturation, and Interfacial Area as Revealed by a Pore-Scale Network Model. » *Water Resour. Res.* 9 août 1996. Vol. 32, n°8, p. 2345-2358. Disponible sur : <http://dx.doi.org/10.1029/96WR01105 >

Rutherford D. W., Chiou C. T., Kile D. E. « Influence of soil organic matter composition on the partition of organic compounds. » *Environ. Sci. Technol.* 1992. Vol. 26, p. 336- 340.

Sallam A., Jury W. A., Letey J. « Measurement of gas diffusion coefficient under relatively low air-filled porosity. » *Soil Sci. Soc. Am. J.* 1984. Vol. 48, p. 3- 6.

Schaap M. G., Leij F. J., Van Genuchten M. T. « ROSETTA: a computer program for estimating soil hydraulic parameters with hierarchical pedotra nsfer functions. » *J. Hydrol.* 2001. Vol. 251, n°3-4, p. 163- 176.

Schroth M. H., Istok J. D., Ahearn S. J., Selker J. S. « Geometry and position of light nonaqueous-phase liquid lenses in water-wetted porous media. » *J. Contam. Hydrol.* octobre 1995. Vol. 19, n°4, p. 269- 287. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1016/0169-7722(95)00023-O >

Scott P. S., Farquhar G. J., Kouwen N. « Hysteretic effects on net infiltration. » In : *Adv. Infiltration.American Soc. Agric. Eng.* St. Joseph, MI : 1983. p. 163-170.

Sharma R. S., Mohamed M. H. . « An experimental investigation of LNAPL migration in an unsaturated/saturated sand. » *Eng. Geol.* novembre 2003. Vol. 70, n°3-4, p. 305- 313. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1016/S0013-7952(03)00098-X > (consulté le 20 novembre 2013)

Sleep B. E., Sykes J. F. « Modeling the transport of volatile organics in variably saturated media. » *Water Resour. Res.* 1989. Vol. 25, n°1, p. 81-92. Disponible sur : <http://dx.doi.org/10.1029/WR025i001p00081 >

Sleep B. E., Sykes J. F. « Compositional simulation of groundwater contamination by organic compounds: 2. Model applications. » *Water Resour. Res.* 1993. Vol. 29, n°6, p. 1709- 1718. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1029/93WR00283 >

Sleep B. E. « Modeling transient organic vapor transport in porous media with the dusty gas model. » *Adv. Water Resour.* 1998. Vol. 22, n°3, p. 247- 256.

Soga K., Page J. W. E., Illangasekare T. H. « A review of NAPL source zone remediation efficiency and the mass flux approach. » *J. Hazard. Mater.* 5 juillet 2004. Vol. 110, n°1-3, p. 13- 27. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1016/j.jhazmat.2004.02.034 > (consulté le 11 juin 2014)

Sparks D. L. Environmental Soil Chemistry. Londres, U.K. : Academic Press, 1995. 267 p.

Suthersan S. S. Remediation Engineering: Design Concepts. Terra : CRC Press Inc., 1997.

US.ACE. Multi-phase extraction. 1999. n°June, p. 286.

US.ACE. *Soil Vapor Extraction and Bioventing*. Washington, USA : U.S. ACE, 2002. 424 p. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1029/95RG00402 >ISBN : EM 1110-1-4001.

US.EPA. *How to Effectively Recover Free Product At Leaking Underground Storage Tank Sites, A Guide for State Regulators, Ch 4.* 1996. 1-38 p. Disponible sur: < papers2://publication/uuid/D92EB1B5-A0D3-45C8-ADBF-BB8CACDC4A05 >

US.EPA. *Multi-Phase Extraction: State-of-the-Practice*. Ohaio, USA : 1999. 71 p. Disponible sur : < http://www.epa.gov/tio/download/remed/mpe2.pdf >ISBN : EPA 542-R-99-004.

US.EPA. *Light Nonaqueous Phase Liquids*. Oklahoma, USA : 1991. 28 p. Disponible sur : < http://nepis.epa.gov/ >

USDA. «Soil Texture Calculator | NRCS.» 2000. Disponible sur : < http://www.nrcs.usda.gov/wps/portal/nrcs/detail/soils/survey/?cid=nrcs142p2_054167 > (consulté le 17 mars 2015)

USGS. «Environmental Health - Toxic Substances.» 2014. Disponible sur: < http://toxics.usgs.gov/definitions/lnapls.html >

Vukovic M., Soro A. *Determination of Hydraulic Conductivity of Porous Media from Grain-Size Composition*. Colorado, USA : Water Resources Publications, 1992.

Walker R. ., Hofstee C., Dane J. ., Hill W. . « Surfactant enhanced removal of PCE in a partially saturated, stratified porous medium. » *J. Contam. Hydrol.* octobre 1998. Vol. 34, n°1-2, p. 31- 46. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1016/S0169-7722(98)00086-2 >

Welty J. R., Wicks C. E., Wilson. R. E. Fundamentals of Momentum, Heat, and Mass Transfer. 3rd éd. New York, USA : John Wiley & Sons, 1984. 807 p.

White M. D., Oostrom M., Lenhard R. J. « Modeling fluid flow and transport in variably saturated porous media with the STOMP simulator . 1 . Nonvolatile three-phase model description. » *Adv. Water Resour.* 1995. Vol. 18, n°6, p. 353- 364. Disponible sur : < http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/030917089500018E# >

White M. D., Oostrom M. STOMP 2.0: Subsurface Transport Over Multiple Phases « Theory Guide ». 2000. 182 p.ISBN : PNNL-12030.

Wilkins M. D., Abriola L. M., Pennell K. D. « An Experimental Investigation of Rate-Limited Nonaqueous Phase Liquid Volatilization in Unsaturated Porous Media: Steady State Mass Transfer. » *Water Resour. Res.* 1995. Vol. 31, n°9, p. 13. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1029/95WR01677 >

Yoon H., Kim J. H., Liljestrand H. M., Khim J. «Effect of water content on transient nonequilibrium NAPL-gas mass transfer during soil vapor extraction. » *J. Contam. Hydrol.* 2002. Vol. 54, n°1-2, p. 17. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1016/S0169-7722(01)00164-4 >

Yoon H., Valocchi A. J., Werth C. J. « Modeling the Influence of Water Content on Soil Vapor Extraction. » *Vadose Zo. J.* 2003. Vol. 2, n°3, p. 22. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.2113/2.3.368 >

Zhao L., Zytner R. G. « Estimation of SVE closure time. » *J. Hazard. Mater.* 2008. Vol. 153, n°1-2, p. 575- 581. Disponible sur : < http://dx.doi.org/10.1016/j.jhazmat.2007.08.093 >

Zhao L. *Three-dimensional soil vapour extraction modeling*. Guelph, Canada : University of Guelph, 2007. 296 p.

ANNEXES

ANNEXES

Annexe A.Taux d'utilisation et coûts des techniques de gestion et traitement des sites pollués en France en 2010

• polluants dans traitée dans les sols et les eaux souterraines



• Taux d'utilisation des techniques de traitement de sol



• Taux d'utilisation des techniques de traitement des eaux souterraines


• coûts des techniques de traitement des sols



• coûts des techniques de traitement des eaux souterrains



Annexe B. Modélisation de l'expérience de la cellule de Richards :

Para	mètres	HN34	Plaque céramique						
K	[m ²]	3,75±0,09 10 ⁻¹¹	8,76 10 ⁻¹⁵						
φ	[-]	0,4	0,45						
S_{wr}	[-]	0,164							
α	[1/m]	2,55							
n	[-]	6,61							

Les constants du modèle de cellule de Richards

Deux sous-domaines axisymétriques sont désignés dans le modèle. Le premier représente l'échantillon de sable HN34 où les deux équations de continuité sont prises en compte. Le deuxième représente la plaque poreuse où la phase aqueuse seule est prise en compte.

3436 mailles triangulaires avec des éléments de type Lagrange-quadratique sont utilisées. Le maillage est raffiné au niveau du contact des deux sous-domaines (plaque-sable) et aussi à la surface de sous-domaine.



Géométrie et les conditions initiales et aux limites de la cellule de Richards

La condition aux limites pour la phase gazeuse à la surface du sable (une pression de l'air variable avec le temps et les pas de pression appliqués) est de type Dirichlet, entrée par une fonction mathématique simule les pas appliques avec le temps $H_g(t) P_g(t) = H_g(t) \rho_w g$:

Temps [h]	0	2	5	7,5	10	22,8	24,6	28,8	33,4
Charge appliqué [cmCE]	5	12	19	29	40	58	80	98	98



Volume d'eau drainée cumulée résultats d'expérience et de simulation (cellule de Richards)



Saturation simulée (cellule de Richards)



FOLIO ADMINISTRATIF

THÈSE SOUTENUE DEVANT L'INSTITUT NATIONAL DES SCIENCES APPLIQUÉES DE LYON

NOM : ESRAEL

Prénom : Daoud

DATE de SOUTENANCE : 17Décembre 2015

TITRE : Dépollution des Sols par l'Extraction MultiPhasique : Développement d'un Modèle Numérique

NATURE : Doctorat

Numéro d'ordre : 2015 ISAL 0134

École doctorale : École Doctorale de Chimie de Lyon (Chimie, Procédés, Environnement)

Spécialité : Science de l'Environnement Industriel et Urbain

RESUME :

Aujourd'hui, plus de 65% des sites pollués en France le sont par des COVs (BASOL), considérés comme étant très dangereux et toxiques pour l'homme et l'environnement. Cela nécessite d'utiliser des techniques de traitement pour restaurer les sites et limiter les risques de propagation vers les eaux souterraines. L'extraction multiphasique MPE est une méthode physique de traitement des COVs. Elle a plusieurs avantages : essentiellement économique, le fait de pouvoir être utilisée in-situ et le fait de permettre la remédiation simultanée de deux zones saturée et non saturée du sous-sol.

L'objectif de cette thèse est d'étudier cette technique en développant un modèle mathématique qui permet de décrire l'écoulement multiphasiques des différentes phases, le transport et le transfert de masse entre ces phases. Deux sols sableux et un polluant modèles sont choisis et caractérisés. Des dispositifs expérimentaux sont utilisés pour l'étude de l'écoulement diphasique et multiphasique ainsi que l'étude de transfert de masse. Un modèle numérique est développé, il se compose de trois EDPs pour l'écoulement (gazeuse, aqueuse et PLNA) et quatre EDPs pour le transport/transfert de masse pour chaque composé.

La validation du modèle MPE est réalisée par la vérification de différentes parties qui le constituent séparément. La partie de l'écoulement diphasique est vérifiée à travers les résultats d'expérience de drainage sur colonne 1D et sur des résultats issus de la littérature d'une cellule type Hele-show 2D. L'importance du choix des conditions aux limites est mise en évidence. La partie de l'écoulement triphasique est vérifiée à travers les résultats d'expériences d'infiltration sur cellule 2D, l'une réalisée au laboratoire et l'écoulement triphasique est vérifiée à travers les résultats d'expériences d'infiltration sur cellule 2D, l'une réalisée au laboratoire et l'autre issue de la littérature. L'étude porte sur l'effet du choix des dimensions d'expériences de laboratoire sur l'extrapolation des résultats à l'échelle du terrain. La partie transport/transfert de polluant est vérifiée à travers des expériences d'extraction sous vide/Venting. Le coefficient de transfert est déterminé avec une meilleure précision que celle des modèles issus de la littérature.

Enfin une simulation à l'échelle de terrain est effectuée avec le modèle MPE pour simuler la dépollution d'un site pollué selon un scénario supposé et développé par la MPE. Les limites de la méthode pour la dépollution de la frange capillaire sont mises en évidence.

MOTS-CLÉS : Extraction Multiphasique, Extraction sous vide, Venting, Modélisation, Écoulement Multiphasique, transport, transfert, Dépollution des Sols, COVs, PLNA.

Laboratoire(s) de recherche : Laboratoire de Génie Civil et d'Ingénierie Environnementale (INSA de Lyon) Laboratoire de Tribologie et Dynamique des Systèmes UMR 5513. (LTDS, ENISE)

Directeur de thèse : Belkacem BENADDA Mariem KACEM

Président de jury : Pierre BUFFERE

Composition du jury : AUROUSSEAU Marc, Professeur à INP-Pagora-Grenoble/LGP2 AZAROUAL Mohamed, HDR, BRGM- Orléans / D3E BENADDA Belkacem, Professeur, INSA-Lyon/LGCIE-DEEP BUFFERE Pierre, Professeur, INSA-Lyon/LGCIE-DEEP JALLUT Christian, Professeur, UCB-Lyon/LAGEP KACEM Mariem, Maître de Conférence, ENISE-St Etienne/ LTDS SCHÄFER Gerhard, Professeur, UDS-Strasbourg/ LHyGeS SOULI Hanène, Maître de Conférence, ENISE-St Etienne/ LTDS