HAL
open science

Comportement de la mousse en milieu poreux pour confiner une source de pollution : potentialités, contraintes et démonstration en site réel

Clément Portois

To cite this version:

Clément Portois. Comportement de la mousse en milieu poreux pour confiner une source de pollution : potentialités, contraintes et démonstration en site réel. Ingénierie de l'environnement. Université de Bordeaux Montaigne, 2018. Français. NNT : . tel-02077541

HAL Id: tel-02077541

https://hal.science/tel-02077541v1

Submitted on 22 Mar 2019

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 DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ BORDEAUX MONTAIGNE

École Doctorale Montaigne Humanités (ED 480)

Discipline: Géosciences
Spécialité: Hydrogéologie

présentée par

Clément Portois

pour obtenir le grade de:

Docteur de l'Université Bordeaux Montaigne

Comportement de la mousse en milieu poreux pour confiner une source de pollution : potentialités, contraintes et démonstration en site réel

---

Directeur de thèse: M. Olivier ATTEIA

Soutenue le 11 janvier 2018 devant le jury composé de:

M.	Richard Martel	Pr., INRS Centre ETE	Rapporteur
M.	Julio Goncalves	Pr., Université d'Aix-Marseille	Rapporteur
M.	Nicolas Fatin-Rouge	Dr., HDR, Université de Bourgogne Franche Comté	Examinateur
M.	Patrick Höhener	Pr., Université d'Aix-Marseille	Examinateur
M.	Alain Dupuy	Pr., Bordeaux INP - ENSEGID	Examinateur
Mme.	Nathalie Guiserix	Ingénieur, Renault SAS	Invité
M.	Antoine Joubert	Dr., SERPOL	Invité
M.	Yves Duclos	Dr., ADEME	Invité

Résumé

La présence de Composés Organiques Halogénés Volatils (COHV) dans les eaux souterraines est particulièrement problématique car celle-ci peut les contaminer pendant des dizaines d'années. Le traitement de ces sites, dont les pollutions sont souvent mixtes et complexes, nécessite de développer des techniques fiables. Particulièrement dans le contexte d'un aquifère hétérogène, les techniques classiques souffrent du faible potentiel de balayage de la pollution par les agents remédiant. La génération de mousse in situ est une technique de dépollution innovante permettant de contrôler la mobilité de ces agents. La démarche générale du travail de thèse porte sur le développement de l'injection de mousse et son applicabilité dans le contexte d'un site industriel en activité contaminé par des solvants chlorés. L'originalité de ce travail porte sur l'utilisation de la mousse comme agent confinant (hydrauliquement) d'une zone source au sein même de l'usine. Le premier objectif de cette thèse consiste en la définition de l'origine de la pollution et des processus responsables du transport des composés dissous dans un système aquifère multicouche et hétérogène. Dans ce cadre, un modèle de transport en 3 dimensions a été développé et contraint à partir de données géologiques (structure 3D), hydrogéologiques (piézométrie, mesure de vitesse), et chimiques (solvant chlorés et ions majeurs). Cette combinaison d'approches a eu un impact réel sur la compréhension de la dynamique hydrogéologique du système souterrain présent au droit du site d'étude, et a permis de définir la zone d'injection de mousse. En parallèle des travaux de caractérisation du site, un travail expérimental en laboratoire a permis de définir les mécanismes à l'origine de la réduction de la perméabilité relative à l'eau par l'injection de mousse. Au travers d'une approche multi échelle, ces travaux ont notamment permis de (i) définir une formulation (concentrations en tensio-actifs et composition) et les paramètres d'injection (qualité de mousse, débit d'injection, mode d'injection) pour générer une mousse favorable à la réduction de la saturation en eau (colonne 1D). Cette baisse de saturation ayant conduit à une réduction de la perméabilité à l'eau d'un facteur supérieur à 100. (ii) D'estimer le comportement de la mousse le long d'un profil d'injection et son impact sur la réduction de la saturation en eau à quelques centimètres d'un point d'injection (pilote 2D décimétrique). (iii) De vérifier l'applicabilité en 3D du système d'injection développé et de suivre les évolutions de l'impact de la mousse dans un aquifère (essai sur un piézomètre réel).

Enfin, un test d'injection de mousse en continu pendant 96h au droit de la zone source du site industriel contaminé a été réalisé. La réalisation d'un essai de pompage (post injection) au centre de la zone

confinée, couplé à des mesures de flux de polluant (pré et post injection) et implémenté dans un modèle 2D, ont permis de mettre en évidence l'impact réel de la mousse sur un rayon supérieur à 2m avec une réduction du flux de polluant en aval hydraulique d'un facteur 4,5. Les différents travaux de laboratoire et de modélisation mettent en évidence les avancées et limites de la technique développée et permettent de proposer des voies d'amélioration.

Abstract

The presence of Volatile Organic Compounds (VOCs) in groundwater is particularly problematic because it can contaminate them for decades. The treatment of these sites, whose pollution is often mixed and complex, requires the development of reliable techniques. Particularly in the context of a heterogeneous aquifer, conventional techniques suffer from the low potential for pollution to be sweep by remedying agents. In situ foam generation is an innovative technique to control the mobility of these agents. The general approach of the thesis concerns the development of foam injection and its applicability in the context of an industrial site in activity contaminated by chlorinated solvents. The originality of this work concerns the use of foam as a confining agent (hydraulically) of a source zone within the plant itself. The first objective of this thesis is to define the origin of pollution and the processes responsible for the transport of dissolved compounds in a multilayered and heterogeneous aquifer system. In this context, a 3-dimensional transport model has been developed and constrained based on geological data (3D structure), hydrogeological data (piezometry, grounwater velocity measurement), and chemical data (chlorinated solvent and major ions). The combination of these approaches had a real impact on the understanding of the hydrogeological dynamics of the underground system present at the study site, and allowed us to define the foam injection zone. In parallel with site characterization, experimental work in laboratory allows to define the mechanisms responsible for reducing the water-relative permeability right after a foam injection. Through a multi-scale approach, we (i) define a formulation (surfactant concentration and composition) and injection parameters (foam quality, injection rate, injection mode) to generate a foam favorable to reduce the water saturation (column 1D). The decraese of the water saturation led to a reduction of the water relative permeability by a factor greater than 100. (ii) Estimate the behavior of the foam along an injection profile and its impact on the reduction of the water saturation further from an injection point (2D decimetric pilot). (iii) Verify the 3D applicability of the developed injection system and to follow the evolutions of the impact of the foam in an aquifer (test on a real piezometer).

Finally, a continuous foam injection test during 96 hours at the source zone of the contaminated industrial site was carried out. Conducting

a pumping test (post injection) in the center of the confined zone, coupled with contaminant fluxes measurements (pre and post injection) and implemented in a 2D model, highlighted the real impact of the injected foam over a radius greater than 2 m with a reduction of the flux of pollutant downstream by a factor 4.5. The various laboratory and modeling work highlight the advances and limitations of the developed technique and allows to propose ways of improvement.

Remerciements

Avant toute chose, je souhaiterais profiter de ces quelques lignes pour exprimer ma gratitude aux différentes personnes m'ayant entouré pendant ces trois années de thèse.

En premier lieu, je remercie vivement les membres du jury ayant accepté de juger de ce travail. Je remercie Richard Martel et Julio Goncalves d'avoir accepté d'être rapporteur de cette thèse. Merci à Patrick Hohëner, Nicolas Fatin-Rouge et Alain Dupuy d'avoir accepté d'être examinateur de ce travail. Les différentes remarques et débats m'ont permis d'améliorer grandement ces travaux de thèse.

Je tiens à remercier solennellement Olivier Atteia, comme directeur de cette thèse. Merci Olivier, pour ton soutien sans failles, tes encouragements et ta présence tout au long de cette thèse. Merci pour tout ce que tu m'as transmis, et pour l'amitié qui s'est développé tout au long de ce travail. Je n'oublierais jamais ces trois années à tes côtés.

Cette thèse a été permise grâce au soutien financier de l'entreprise Renault S.A.S. Je souhaite remercier vivement Nathalie Guiserix, comme encadrante industrielle de cette thèse. Merci Nathalie pour la confiance que tu m'as octroyée et le challenge que tu m'as proposé. Je te remercie aussi pour ton investissement sans failles dans ce projet. Ce fut un réel plaisir de travailler avec toi.

Je tiens à remercier la société SERPOL et GeoAmbiant, et en particulier Antoine Joubert pour son implication, son suivi et son humour. Merci de m'avoir montré toute la puissance que tu pouvais développer à la salle de sport, j'en reste encore aujourd'hui bouche bée.

J'ai effectué ma thèse au sein d'un environnement des plus propices à mon épanouissement. Ainsi je remercie l'ensemble du personnel de l'ENSEGID et d'Innovasol pour l'ambiance sereine et familiale. Un grand merci à : Alexandre, Greg (merci pour ces débats où nous n'étions jamais d'accord et pour tes corrections sur le manuscrit), Michel, Maïlys, Crisitina, Jean Marie, Olivier, Adrian, Raph (Jackson), Nesrine, Sandrine, Samia, Myriam, Sophie, Philippe, Carine, Serge, Léa, Laurent, Christine, Alicia, Seb, et François.

Je souhaite remercier aussi l'ensemble des doctorants et postdoctorants qui m'ont entouré ces trois dernières années. Je remercie notamment Yohann, pour son amitié et ses moments en totale déconnexion

avec la science. Je remercie Rémi, Hugo et Adoum pour toutes les soirées et les bons moments passés ensemble. Merci à tous les quatres pour votre humour.

Je remercie mes co-bureau : Elyess pour sa patience ; Chris pour son aide précieuse dans ma réflexion ; Alex et Florian, pour tous les fous rires.

Je tiens aussi à remercier Marian, pour son aide au quotidien. Sans cette aide technique, ce travail n'aurait pu aboutir. Un grand merci : la réussite de ce projet lui est en partie du.

Je remercie mes parents, mon frère et mes deux soeurs pour m'avoir soutenu et poussé à donner le meilleur de moi-même. Je mesure la chance que j'ai de pouvoir vous avoir à jamais.

Je dédie ce manuscrit à ma grand-mère, mon grand-père, et mon oncle Seb. J'aurais tellement aimé partager cela avec vous, mais je reste persuadée que vous êtes toujours là avec moi. Je vous aimerais toujours.

Enfin, je remercie celle qui m'a accompagné tout au long de cette thèse : Émilie. Ta présence au quotidien, ton amour, tes encouragements et ton enthousiasme m'ont permis de ne jamais flancher même dans les moments difficiles. Pour toujours je te serais reconnaissant.

Liste des symboles et annotations

Symbole	Nature	Unité
A	section d'écoulement	m^2
CMC	concentration micellaire critique	$g.L^{-1}$
$d50$	diamètre médian des particules	mm
f_i	débit fractionnaire de la phase i	-
h	épaisseur des films / charge hydraulique	m
i	gradient hydraulique	m/m
k	perméabilité intrinsèque	m^2
k_i	perméabilité effective du fluide i	m^2
k_{ri}	perméabilité relative du fluide i	-
K	conductivité hydraulique	$m.s^{-1}$
L	longueur	m
m, n	paramètres de Van Genuchten	-
P_i	pression de la phase i	Pa
P_e	nombre de Péclet	-
Q	débit volumique	$m^3.s^{-1}$
r	rayon	m
R	courbure moyenne	m
S	coefficient d'emmagasinement	m^{-1}
S_i	saturation de la phase i	-
S_{wi}	saturation irreductible de la phase aqueuse	-
S_{we}	saturation effective	-
t	temps	s
T	température	°C
u	vitesse de Darcy	$m.s^{-1}$
v	vitesse intersticielle	$m.s^{-1}$
V	volume	m^3
VP	volume de pore	mL

Symbole	Nature	Unité
α	paramètre de Van Genuchten	Pa^{-1}
α_L, α_T, α_V	dispersivité longitudinale, transversale, verticale	m
β	angle de contact	-
θ	Angle par rapport à l'horizontale	-
λ	coefficient de Brooks et Corey	-
μ	Viscosité dynamique	Pa.s
ρ	Masse volumique	$kg.m^{-1}$
σ	tension interfaciale	$N.m^{-1}$
ϕ	porosité	-
ϕ_c	porosité cinématique	-
π	pression de jonction/disjonction	Pa
π_A	pression d'attraction de type Van der Walls	Pa
π_R	pression de répulsion	Pa

Table des matières

Liste des symboles et annotations **vii**

Table des figures **xi**

Liste des tableaux **xvii**

1 Introduction **1**
1.1 Contexte 1
1.2 Cadre de l'étude 2
1.3 Problématiques 2
1.4 Objectifs 3
1.5 Structure du manuscrit 3

2 Etat de l'art **5**
2.1 La complexité de la remédiation des solvants chlorés en contexte hétérogène 5
2.2 Propriétés de la mousse dans le milieu poreux et applications pour la dépollution des sols 11

3 Caractérisation du site d'étude **37**
3.1 Description du site d'étude et contexte environnemental 37
3.2 Caractérisation de la pollution 47
3.3 Modèle conceptuel 67

4 Développement d'un modèle numérique en 3 dimensions **73**
4.1 Introduction 73
4.2 Conception du modèle numérique 73
4.3 Résultats 87

5 Approche multi-échelles pour la définition des conditions d'injection de la mousse dans un contexte de remédiation environnementale **97**
5.1 Contexte 97
5.2 Matériels et méthodes 99
5.3 Résultats 109
5.4 Discussion 126

6 Confinement d'une zone source de solvants chlorés par injection de mousse 135
6.1 Introduction 135
6.2 Application de la mousse sur site 135
6.3 Matériels et méthodes 138
6.4 Résultats 145
6.5 Discussion : positionnement des travaux dans le cadre des études sur la mousse 156

7 Conclusions et perspectives 163
7.1 Caractérisation et modélisation des processus régissant le développement des panaches de contaminants 163
7.2 Développement de l'injection de mousse pour l'appliquer à un site réel 167
7.3 Perspectives 171

Références 175

Annexes 191

Table des figures

2.1 Représentation schématique de la distribution des DNAPLs après une fuite accidentelle d'après Mercer et Cohen (1990) 8
2.2 Mouillabilité et angle de contact entre l'air (ou mousse), l'eau et le solide 14
2.3 Représentation schématique des courbes d'imbibition et de drainage 16
2.4 Évolution de la perméabilité relative en fonction de la saturation en eau (ou en gaz) (Cohen, 2013) 17
2.5 Courbe de perméabilité relative typique 18
2.6 Structure de quelques tensio-actifs en fonction de leur classes (Dauvergne, 2010) 21
2.7 Représentation schématique d'une isotherme de pression de jonction/disjonction avec les contributions des forces attractives et répulsives (Chambers et Radke, 1990) 23
2.8 Représentation schématique d'une isotherme de pression de jonction/disjonction en fonction de l'épaisseur du film (Pugh, 1996) . 24
2.9 Illustration de l'effet Gibbs-Marangoni dans un film liquide. (Pugh, 1996) 25
2.10 Isotherme d'adsorption pour les tensio-actifs d'après Myers (2005) 27
2.11 Relation entre la pression capillaire P_c et la saturation du liquide S_w d'après (Khatib *et al.*, 1988) 28
2.12 Relation entre le débit fractionnaire de gaz et la saturation d'après (Khatib *et al.*, 1988) 28
2.13 Relation entre les pressions capillaires d'entrée et la pression capillaire limite avec la perméabilité du milieu poreux d'après (Khatib *et al.*, 1988) 29
2.14 Schéma des différents régimes de mousse en milieu poreux d'après (Afsharpoor, 2009) 30
2.15 Représentation graphique des contours de pressions (psi) en fonction de la vitesse superficielle du gaz u_g et de l'eau u_w pour une injection de mousse dans une colonne de sable d'après Osterloh *et al.* (1992) 31
2.16 Zones de flux des phases gaz, eau et du mélange eau/gaz, d'après Holt et Vassenden (1997) 32
2.17 Courbe F2 type d'après (Boeije, 2016). Modèle calé par Boeije (2016) à partir des données de Ma *et al.* (2013) 35

3.1 Géologie régionale du site d'étude 38
3.2 Profils géologiques au droit du site 40
3.3 Evolution de la piézométrie : (a) Différences de charges entre les différentes entités, (b) aquifère quaternaire, (c) aquifère tertiaire alpha, (d) aquifère tertiaire béta 42
3.4 Localisation des différents sondages de reconnaissances (en haut) et des piézomètres (en bas) captant l'aquifère quaternaire (bleu), l'aquifère tertiaire alpha (vert) et l'aquifère tertiaire bêta (rouge) . 43
3.5 Carte piézométrique de l'aquifère quaternaire (en bas) et de l'aquifère tertiaire alpha (en haut) 45
3.6 Champ de conductivité hydraulique mesuré ($m.s^{-1}$) (vert) aquifère tertiaire alpha, (bleu) aquifère quaternaire 46
3.7 Localisation des zones d'utilisation et de stockages du TCE 48
3.8 Evolution des concentrations molaires en solvants chlorés proche de la source (piézomètre 38) 50
3.9 Evolution des concentrations molaires (μM/L) en solvants chlorés suivant le transect 1 52
3.10 Evolution des concentrations molaires (μM/L) en solvants chlorés suivant le transect 2 53
3.11 Evolution des concentrations molaires (μM/L) en solvants chlorés suivant le transect 3 55
3.12 Evolution des concentrations molaires (μM/L) en solvants chlorés suivant le transect 4 57
3.13 Evolution des concentrations molaires (μM/L) en solvants chlorés au droit du piézomètre 57 58
3.14 Evolution des concentrations molaires (μM/L) en solvants chlorés dans l'aquifère tertiaire (1) 59
3.15 Evolution des concentrations molaires (μM/L) en solvants chlorés dans l'aquifère tertiaire (2) 60
3.16 Evolution des concentrations molaires (μM/L) en solvants chlorés au droit du piézomètre 75 61
3.17 Diagramme de Piper regroupant les mesures d'ions majeurs. Le triangle de gauche représente les cations, celui de droite représente les anions, tandis que le losange représente la totalité des ions . . 63
3.18 Diagramme binaire entre les chlorures et les sulfates pour les eaux des aquifère quaternaire (en bleu) et tertiaire alpha (en vert). Les triangles rouges correspondent aux piézomètre 108 et 124, et n'ont pas été utilisés pour la régression linéaire 64
3.19 Caractérisation de la chimie des eaux de l'aquifère quaternaire. La répartition des ions est présentée suivant le diagramme de Stiff . . 65
3.20 Caractérisation de la chimie des eaux de l'aquifère Tertiaire Alpha. La répartition des ions est présentée suivant le diagramme de Stiff 66
3.21 Schéma conceptuel du site d'étude 70

4.1 Structure 3D du modèle numérique : vert : zone non saturée, Bleu : aquifère quaternaire, tertiaire alpha et tertiaire beta respectivement suivant la profondeur, Marron : les épontes. L'axe z a été exagéré (épaisseur x10) pour la visualisation. 74
4.2 Maillage horizontal défini pour la modélisation de l'écoulement et du transport 76
4.3 Positionnement de la zone source sur la verticale. Une coupe suivant l'axe des x et passant par la zone source a été définie pour réaliser cette figure. 82
4.4 Données de concentrations molaires (μM/L) pour l'ensemble des piézomètres du site 83
4.5 Distribution spatiale des SC dans l'aquifère quaternaire pour la campagne d'octobre 2015. Le diamètre des disques est proportionnel au logarithme de la concentration molaire, tandis que le découpage de ce même diagramme définit le pourcentage de chaque métabolite par rapport à la concentration molaire totale 84
4.6 Distribution spatiale des SC dans l'aquifère tertiaire pour la campagne d'octobre 2015. Le diamètre du disque est proportionnel au logarithme de la concentration molaire, tandis que le découpage de ce même diagramme définit le pourcentage de chaque métabolite par rapport à la concentration molaire totale 86
4.7 Calibration du modèle d'écoulement pour l'aquifère quaternaire (à gauche) et pour l'aquifère tertiaire alpha (à droite). Les triangles noirs correspondent aux résultats du Dis mod, tandis que les cercles correspondent au Vbc mod. 87
4.8 Calibration du modèle de transport pour l'aquifère quaternaire (à gauche) et pour l'aquifère tertiaire alpha (à droite). Les triangles noirs correspondent aux résultats du Dis mod, tandis que les cercles correspondent au Vbc mod. 88
4.9 Panache modélisé pour l'aquifère quaternaire. Le temps de simulation a été fixé à 45 ans 89
4.10 Panache modélisé pour l'aquifère tertiaire alpha. (En haut) Résultats obtenus pour le Dis mod, (en bas) résultats du Vbc mod. Le temps de simulation a été fixé à 45 ans 90
4.11 Champ de conductivité hydraulique pour l'aquifère quaternaire (en haut) et pour l'aquifère tertiaire alpha (en bas). 91

5.1 Courbe granulométrique du sable utilisée pour les expériences en colonne et en pilote, avec détermination du diamètre nominal . . . 100
5.2 Schéma du montage expérimental pour les expériences en colonne 102
5.3 Schéma de la cellule contenant le milieu poreux (Bordenave, 2015) 103
5.4 Schéma du montage expérimental pour les expériences en pilote 2D 103
5.5 Coupe verticale du pilote 2D traversant le puits d'injection et de production 104

5.6 Configuration des tests menées pour le site 1 et le site 2. Sur le schéma la position de la mousse est hypothétique 105
5.7 Représentation schématique de l'influence de la mousse sur la remontée de niveau piézométrique observé au puits. (x) définie la position du front de mousse ainsi que sa conductivité hydraulique. Cette zone de mousse est caractérisée par une faible conductivité hydraulique. 109
5.8 Effet de la concentration en tensioactifs et du débit d'injection total sur le RF 110
5.9 Effet de la qualité de mousse sur le RF 112
5.10 Evolution de la saturation (points) et du RF (ligne) en fonction du nombre de volumes de pores de mousse (VP) injectés dans deux colonnes de sables distinctes (qualité de mousse 95%). (Rouge) : Expérience 1, (Bleu) : Expérience 2 113
5.11 Evolution du k_{rw} en fonction de la saturation en eau (points), et des courbes théoriques obtenues en faisant varier le paramètre m_{vg} (Van Genuchten). Ces résultats sont obtenus après injection de la mousse dans la colonne ($f_q = 95\%$, $Q_t = 10$ mL/min, concentration en tensioactifs = 0,75 wt.%) 114
5.12 Evolution de la pression d'injection (en noir) et des pressions P1 (en vert), P2 (en rouge) et P3 (en bleu) en fonction du temps (VP) dans le pilote 2D. Le volume d'eau récupéré (point noir) est représenté en fonction du temps (VP) 115
5.13 Evolution des pressions suivant l'axe Pinj (0 cm), P1 (15 cm), P2 (30 cm), P3 (45 cm) et Psortie (60 cm) en fonction du volume de pore VP de mousse injectée 116
5.14 Evolution du MRF en fonction de la distance au point d'injection, adapté de Kovscek *et al.* (1997) 117
5.15 Photos prises après l'injection de mousse dans le pilote. Vue du dessus (à gauche), vue du dessous (à droite). Les régions blanchâtres traduisent la présence de mousse, tandis que les régions jaunâtres (présence de fluorescéine) traduisent la présence d'eau 118
5.16 Représentation schématique des différents points de prélèvement pour la mesure de la saturation dans les sables. En noir les échantillons ont été fractionnés afin de définir la saturation suivant la verticale. En bleu l'échantillon a été conservé dans sa totalité afin de mesurer la saturation 119
5.17 Saturation en eau mesurée après l'injection de mousse. Pour les échantillons fractionnés la valeur indiquée correspond à la saturation moyenne en eau 119
5.18 Courbes de calibration du modèle hydrodynamique. Ces courbes montrent l'influence de $K_{mousse1}$ et $K_{mousse2}$ sur les résultats du modèle. La zone $K_{mousse3}$ présente une insensibilité pour le modèle 124
5.19 k_{rw} en fonction du temps pour les différents modes d'injections . . 125

5.20 Comparaison des k_{rw} en fonction du RF obtenu sur le terrain et en laboratoire 126
5.21 Courbe de k_{rw} en fonction de S_w en absence et en présence de mousse d'après de Vries *et al.* (1990). Ces courbes ont été volontairement déformée par l'auteur pour montrer les caractéristiques importantes 127

6.1 Représentation schématique de l'objectif de confinement par l'injection de mousse 138
6.2 Réseau de piézomètres disponibles pour l'injection de mousse et le suivi en aval hydraulique. La figure dans l'encadré (coin inférieur droit) présente les conductivités hydrauliques (exprimées en m.s^{-1}) calculées à partir de tests hydrauliques pour chaque piézomètre . 140
6.3 Appareillage permettant la mesure de pression en tête de puits . . 141
6.4 Système d'injection développée pour l'injection de mousse 142
6.5 Photos du générateur de mousse utilisé 142
6.6 Conception de l'outil préleveur ciblé et fenêtre d'échantillonnage des eaux souterraines 144
6.7 Préparation d'un PFM pour l'extraction des composés organiques du charbon actifs 145
6.8 Enregistrement de la pression d'injection (bar) et des débits (L/min) en fonction du temps (heure) pendant le test d'injection de mousse dans les 6 puits d'injections 147
6.9 Courbes de calibration du modèle d'interprétation du test de pompage 150
6.10 Résultats de l'analyse de sensibilité 151
6.11 Champ de conductivité hydraulique (m.s^{-1}) avant (en haut) et après (en bas) l'injection de mousse. Les zones blanches traduisent les zones de mousses 152
6.12 Résultats du PFM et du préleveur ciblé (PC) (mmol.m^{-2}.jour^{-1}). Les nombres sur l'axe des x représente les piézomètres 153
6.13 Profils des concentrations molaires (μM/L) (a) avant l'injection de mousse, et (b) après l'injection de mousse. Les figurés en rouge correspondent aux valeurs mesurées avec le PFM et les figurés bleu correspondent aux valeurs mesurées avec le préleveur ciblé 154
6.14 Simulation du transport (a) avant, (b) après l'injection de mousse. (c) flux calculé suivant le long de la ligne de calcul 156
6.15 Représentation des trois applications possibles dans le cadre d'une injection de mousse en contexte environnemental. Nos expériences et celle de Hirasaki *et al.* (1997) sont des méthodes indirectes et nécessite l'application d'une technique de soutien. L'application selon Maire *et al.* (2018) constitue une méthode directe de remédiation. 157

7.1 Voies de contamination à travers un aquitard intermédiaire séparant deux aquifères d'après Santi *et al.* (2006). Dans ce cas, le gradient est descendant de la partie supérieure vers la partie inférieur 165
7.2 Réflexion sur les points importants garantissant l'efficacité de l'injection de mousse 169
3 Comparaison inter-laboratoire Bordeaux, Aix-Marseille, Wessling . 193
4 Schéma de l'expérience menée pour définir P_{ce} et S_{wi} 194
5 Calage du modèle de Van Genuchten à partir des paramètres α et m_{vg} à la pression capillaire d'entrée P_{ce} 196

Liste des tableaux

2.1 Propriétés des éthènes chlorés (Fiedler, 2000; Mercer et Cohen, 1990) 6

3.1 Valeur de conductivité hydraulique mesurée sur site (m.s^{-1}) . . . 47
3.2 Relation permettant de calculer la dispersivité longitudinale α_L . 68
3.3 Calcul des différentes dispersivités α_L, α_T et α_V 69
3.4 Hypothèses et calculs de flux de solvants chlorés pour l'aquifère quaternaire. Les concentrations molaires correspondent aux valeurs mesurées en octobre 2015 71
3.5 Hypothèses et calculs de flux de solvants chlorés pour l'aquifère tertiaire 71
3.6 Calcul du flux de transfert de solvant chlorés à travers l'éponte argileuse 72

4.1 Paramétrisation du modèle de transport du site 80

5.1 Propriétés du sable utilisé pour les expériences en laboratoire . . . 100
5.2 Caractéristique du modèle 2D (radial) 110
5.3 Saturation en eau calculée pour les différents échantillons 120
5.4 Paramètres utilisées dans l'équation de Bouwer et Rice (1976) . . 121
5.5 Résultats des *slug tests* réalisés sur le site 1 et 2 : avec la conductivité hydraulique K (m.s^{-1}), **en gras** correspond à la perméabilité relative à l'eau k_{rw} (-) 122
5.6 k_{rw} prédit, mesuré et calé à partir d'un modèle d'écoulement en 2D (radial) 125
5.7 Paramètres utilisées et calcul théorique du k_{rw} 129

6.1 Volume et rayon maximal d'influence de la mousse calculé 148
6.2 Conductivité hydraulique calculée (m.s^{-1}) en fonction du temps. **en gras** : facteur de réduction 148

1 Paramètres analytique du GC-FID 191
2 Programme de chauffage permettant la séparation des éléments dans la colonne du GC-FID 192
3 Performance analytique du GC-FID 192
4 Caractéristiques de la colonne pour définir les paramètres du milieu poreux 195

5 Caractéristiques initiales des PFMs : Concentration des traceurs et facteur de retard associé à chaque traceur 197
6 Paramètres analytique du GC-MS 198
7 Programme de chauffage permettant la séparation des éléments dans la colonne du GC-FID 198
8 Paramètres analytique du GC-MS 199
9 Programme de chauffage permettant la séparation des éléments dans la colonne du GC-MS 199

Chapitre 1

Introduction

1.1 Contexte

La contamination des eaux souterraines par les *Non Aqueous Phase Liquid* (NAPL) est un risque important pour la santé humaine et l'environnement. Les solvants chlorés (SC) tels que le perchloroéthylène (PCE), le trichloroéthylène (TCE) et leurs produits de dégradation, dont le dichloroéthylène (cis-DCE et trans-DCE) et le chlorure de vinyle (CV), comptent parmi les contaminants les plus communs de par leur utilisation généralisée dans les processus industriels et conduisant à des contaminations à grande échelle (McGuire *et al.*, 2006; Pankow et Cherry, 1996; Wiedemeier, 1999). Une faible partie de ces sites sont actuellement en cours de traitement. Les sols pollués font cependant l'objet d'une réglementation au titre des installations classées et de la protection des ressources en eau. Les nombreux textes réglementaires insistent sur la politique de gestion des sites contaminés et sur la nécessité de traiter les zones sources. Avec la mise en place de la nouvelle réglementation, le poids économique du traitement des sources de pollution et des panaches dans les nappes devient de plus en plus important. De nombreux sites contaminés par des substances considérées comme prioritaires et de dimension importante, sont traités de façon sommaire (Stroo *et al.*, 2012) car :

- D'une part, les pollutions sont sommairement caractérisées et les enjeux de dépollution ne sont pas bien ciblés surtout dans un système hétérogène

- D'autre part, les techniques de dépollution sont souvent mal adaptées, peu efficaces pour ces types de pollution en contexte hétérogène. L'accessibilité des contaminants reste l'un des problèmes majeurs pour la remédiation dans ce contexte.

Des recherches approfondies ont été menées, mettant en évidence les difficultés inhérentes à l'élimination des DNAPLs des aquifères hétérogènes. Les techniques traditionnelles de *flushing*, de pompage et de traitements chimiques ou biologiques ont des limites en raison des propriétés chimiques des DNAPLs (faible solubilité, haute densité, viscosité élevée) et de la configuration de l'aquifère (c'est-à-dire

l'hétérogénéité). Dans les aquifères hétérogènes, les liquides utilisés pour le traitement ont tendance à traverser les couches les plus perméables et les DNAPLs résiduels restent souvent immobilisés dans des zones de faible perméabilité (Atteia *et al.*, 2017). Le traitement de ces sites, dont les pollutions sont souvent complexes, nécessite ainsi de développer des techniques fiables.

1.2 Cadre de l'étude

C'est dans ce contexte que l'ENSEGID, avec le soutien financier de Renault et de l'ADEME, et en collaboration avec SERPOL, ont défini le programme de recherche MOUSSE3D visant à promouvoir une nouvelle technique pour la dépollution des sites contaminés.

Le contrôle de la mobilité est apparu comme une technique alternative prometteuse pour améliorer la récupération des DNAPLs en utilisant un agent à faible mobilité (c'est-à-dire de haute viscosité) comme les polymères (Giese et Powers, 2002; Martel *et al.*, 1998, 2004; Robert *et al.*, 2006) ou les mousses générées à partir de tensioactifs (Hirasaki *et al.*, 1997; Longpré-Girard *et al.*, 2016; Maire *et al.*, 2015; Maire et Fatin-Rouge, 2017; Rothmel *et al.*, 1998; Wang et Mulligan, 2004) pour améliorer l'efficacité du balayage dans les aquifères. La mousse apparaît comme un candidat approprié pour le contrôle de la mobilité pour soutenir les objectifs de remédiation.

L'utilisation de la mousse en milieux poreux a été développée en grande partie dans le domaine du génie pétrolier pour des opérations de récupération assistée du pétrole. Dans le milieu poreux, la mousse a un comportement spécifique : elle envahit en premier lieu les zones les plus perméables et conduit, dans ces zones, à une baisse de perméabilité entrainant une régularisation du profil de perméabilité (Bertin *et al.*, 1999; Casteel *et al.*, 1988; Kovscek et Bertin, 2003). L'injection de mousse peut donc être utilisée en première approche comme technique de confinement transitoire, si elle est réalisée autour d'une zone source. En deuxième lieu, si la zone autour de la source est peu perméable, il est possible de traiter la source avec une technique classique ou simplement par pompage.

1.3 Problématiques

La technique d'injection de mousse en tant que telle est relativement simple : il suffit d'injecter dans un forage, un mélange gaz-eau contenant du tensio-actif. Cependant cette injection pose un certain nombre de difficultés à la fois théoriques et pratiques.

Théorie. Les mousses sont des systèmes métastables. Les mécanismes de formation, d'écoulement et de rupture sont fonction de divers paramètres propres à la mousse en elle-même (Gauglitz *et al.*, 2002) et aux caractéristiques du milieu poreux (Khatib *et al.*, 1988). Impliquant ainsi un nombre important de paramètres, l'écoulement de mousse (sous-entendu la mobilité) est difficile à prédire.

La faible popularité des mousses pour la remédiation est liée à la complexité de ce fluide en comparaison aux polymères.

Pratique. Pour une application sur un cas réel, l'injection de mousse peut présenter les difficultés suivantes :

- Le mode d'injection dans un aquifère peu profond est sujet à une forte contrainte de pression. Le caractère visqueux des mousses présente ainsi des limites dans le cadre d'une application à faible profondeur
- La zone source doit être très bien localisée et caractérisée pour définir les points d'injections et les conditions d'injection.
- Pour garantir une applicabilité de la technique, la stabilité de la mousse doit permettre le confinement de la zone identifiée pendant un temps significatif, question qui est très peu investiguée.

1.4 Objectifs

Les enjeux de ce projet portent sur une mise à l'échelle du procédé injection de mousse dans le but de l'appliquer à un site réel. Ce projet est entièrement dédié à la réalisation et au contrôle du confinement et de sa tenue dans le temps. La capacité de blocage de la mousse est utilisée pour détourner le flux des eaux souterraines arrivant au droit de la zone source pour réduire la propagation des contaminants dans l'aquifère.

1.5 Structure du manuscrit

Le présent manuscrit se décompose en 6 chapitres. Le chapitre 2 vise à faire un état de l'art de la problématique de remédiation en contexte hétérogène et des concepts théoriques propres à un écoulement de mousse dans le milieu poreux. Pour satisfaire l'objectif de caractérisation détaillée de la zone source du site d'étude, le fonctionnement hydrogéologique du site a été caractérisé à partir d'une approche de terrain couplée à une phase de modélisation. Ainsi, les chapitres 3 et 4 présentent les caractéristiques du site d'étude et finalement la modélisation numérique du transport. Le chapitre 5 détaille le comportement de la mousse en milieux poreux et sa capacité à bloquer les écoulements au travers d'une approche multi-échelles en laboratoire et à l'échelle d'un puits d'injection. Le chapitre 6 présente les résultats de l'essai d'injection de mousse sur le site d'étude. Au travers de diverses approches (mesure de terrain, modélisation), la réussite de l'injection a pu être mise en évidence. Enfin, le dernier chapitre permettra d'approfondir les conclusions de l'étude tout en présentant les limites associées à ce travail. A partir de la définition des limites, plusieurs perspectives sont présentées pour compléter ces travaux.

Chapitre 2

Etat de l'art

2.1 La complexité de la remédiation des solvants chlorés en contexte hétérogène

Les solvants chlorés font partie de la catégorie des hydrocarbures halogénés. Le terme "hydrocarbures" définit les molécules qui sont constituées d'atomes de carbone et d'hydrogène. Le terme "halogène" définit la présence d'au moins un élément chimique halogène correspondant dans le cas des solvants chlorés à la substitution d'un atome d'hydrogène par un atome de chlore. Il existe plusieurs familles de solvants chlorés, notamment :

- Les chloroéthènes comprenant le Tetrachloroéthylène (PCE, C_2Cl_4), le Trichloroéthylène (TCE, C_2HCl_3) comme solvants les plus couramment utilisées (Côme *et al.*, 2006) ;

- Les chloroéthanes avec le 1,1,2-Trichloroéthane (1,1,2-TCA, $C_2H_3Cl_3$) et le 1,2-Dichloroéthane (1,2-DCA, $C_2H_4Cl_2$) ;

- Les chlorométhanes dont le chloroforme ($CHCl_3$).

Dans le cadre de cette étude, nous nous focaliserons sur les chloroéthènes et les produits de dégradation notamment le cis-1,2-Dichloroéthylène (cis-DCE, $C_2H_2Cl_2$), le trans-1,2-DCE (trans-DCE, $C_2H_2Cl_2$) et le Chlorure de Vinyle (CV, C_2H_3Cl).

Du fait de leur large emploi dans les processus industriels, les solvants chlorés sont fréquemment détectés dans les sols et eaux souterraines. Dans l'industrie, les solvants chlorés sont essentiellement utilisés comme agents dégraissants (nettoyage des métaux et des textiles), comme adjuvants et diluants dans les peintures, vernis et encres, et comme décapants (notamment dans l'élimination des peintures, colles et vernis). Dans le cadre des inventaires nationaux, la base de données BASOL recense en janvier 2017 une occurrence de 6% des solvants halogénés dont 0,45% correspondant au TCE seul dans les cas des sites présentant une pollution constatée. Les principales causes de contaminations sont les épandages sauvages de déchets industriels ou leur stockage inadapté ainsi que les fuites de

réservoirs et les accidents de transport.

2.1.1 Les caractéristiques physico-chimiques des éthènes chlorés dans le cadre de la gestion des sols et eaux souterraines

Il existe deux caractères spécifiques conférant aux éthènes chlorés le titre de polluant récalcitrant : la rémanence dans les eaux souterraines et la toxicité pour l'Homme. La rémanence des solvants chlorés dans les eaux souterraines est essentiellement due à leur faible miscibilité et à leur faible biodégradabilité en conditions aérobies. L'accessibilité des *Non Aqueous Phase Liquid* (NAPL) est limité de par leurs caractéristiques physico-chimiques. De plus, les DNAPLs (Dense-NAPLs), ayant une densité supérieure à 1, sont localisés au mur de l'aquifère. Cette propriété les rend beaucoup plus difficile à repérer (et à traiter) que les LNAPL (Light-NAPLs), qui sont moins dense que l'eau et restent donc au toit de l'aquifère. Les principales propriétés des éthènes chlorés sont présentées dans le tableau 2.1.

Tableau 2.1 : Propriétés des éthènes chlorés (Fiedler, 2000; Mercer et Cohen, 1990)

Molécule	**Densité liquide à 20°C**	**Pression de vapeur vapeur [Pa]**	**Constante de Henry [Pa/mol/m³]**	**Coeficient de partage Log K_{ow}**	**Solubilité dans l'eau [mg/L]**
PCE	1,62	1 900 à 20°C	1 844 à 25°C	2,67	150 à 25°C
TCE	1,46	7 960 à 20°C	1 044	2,38	1 070 à 20°C
cis-DCE	1,28	24 000 à 20°C	327 à 20°C	1,86	800 à 20°C
CV	Gaz	$3{,}3.10^5$ à 20°C	2 730 à 20 °C	1,4	1 600 à 20 - 25°C

Les propriétés physico-chimiques des éthènes chlorés gouvernent leur comportement dans le milieu poreux à savoir la présence d'une source comprenant une phase organique et le transport sous forme dissoute des composés. Parmi les caractéristiques, notons la solubilité relativement élevée (entre 150 et 1600 mg/L) en comparaison aux valeurs seuils de potabilité (avec 0,5 μg/L pour le CV) définies par les normes européennes. Selon le Centre International de Recherche sur le Cancer (CIRC), les solvants chlorés sont classés par catégories en fonction de leur potentiel cancérogène pour l'Homme. Cette classification comprend trois catégories : des substances considérées comme cancérigènes (catégorie 1), aux substances potentiellement cancérigènes (catégorie 2a, 2b), et aux substances inclassables quant à leur cancérogénicité (catégorie 3). Le TCE et le CV sont classés

en catégorie 1, tandis que le PCE est classé en catégorie 2a. A ce jour les isomères du 1,2-DCE sont absents de cette classification.

2.1.2 Une distribution complexe dans les milieux hétérogènes

Lors d'un déversement accidentel de DNAPLs dans le milieu poreux, la phase huile migre verticalement dans la zone non saturée par gravité. Par phénomène de capillarité les zones traversées s'imprègnent à minima à hauteur de la saturation résiduelle (Wiedemeier, 1999). Dans le cas d'une rencontre avec une barrière capillaire (par exemple une couche argileuse), les DNAPLs vont s'accumuler et former une phase connectée de forme lenticulaire (figure (2.1)) (Oostrom *et al.*, 1999). Dans le cas où la quantité de DNAPL est supérieure à la rétention capillaire, une phase continue, non miscible à l'eau, se forme et atteint la nappe. Du fait de la densité supérieure à l'eau, les solvants chlorés peuvent migrer jusqu'au mur de la nappe d'eau souterraine. Les mécanismes de transfert de masse sont les suivants (Wiedemeier, 1999) :

- La dissolution de la phase huile dans la phase aqueuse
- La sorption de la phase dissoute sur la phase solide
- La volatilisation de la phase huile vers la phase gazeuse

L'écoulement et la distribution des DNAPLs se fait de façon préférentielle via les couches les plus grossières. Plusieurs auteurs ont mis en évidence l'importance des hétérogénéités (fractures, macropores, *layering*, couches argileuses et leurs dispositions) dans la dispersion latérale des DNAPLs, par des mesures détaillées des variations de la perméabilité à l'échelle du centimètre (Poulsen et Kueper, 1992), à l'échelle d'un pilote par des analyses sur les sols (Kueper *et al.*, 1993), par des mesures géophysiques (Brewster *et al.*, 1995), ou par des mesures optiques (Illangasekare *et al.*, 1995).

Aussi, les couches argileuses, considérées comme imperméables d'un point de vue hydrogéologique, ne le sont pas pour les DNAPLs qui pénètrent dans les lentilles argileuses via les micro hétérogénéités et fractures (Dearden *et al.*, 2013; Falta, 2005; Reynolds et Kueper, 2002). Ainsi les DNAPLs peuvent rester dans la matrice argileuse pendant plusieurs décennies et être le support d'une source secondaire pour les eaux souterraines (Chambon *et al.*, 2010).

2.1.3 La difficulté de mise en contact des réactifs : une limite pour la remédiation des NAPLs par les techniques courantes

Le choix d'une stratégie de dépollution est le résultat de la prise en compte d'une multitude de critères tels que la nature du polluant (ayant des propriétés physico-chimiques propres telles que la volatilité, la solubilité, la sorption, ou

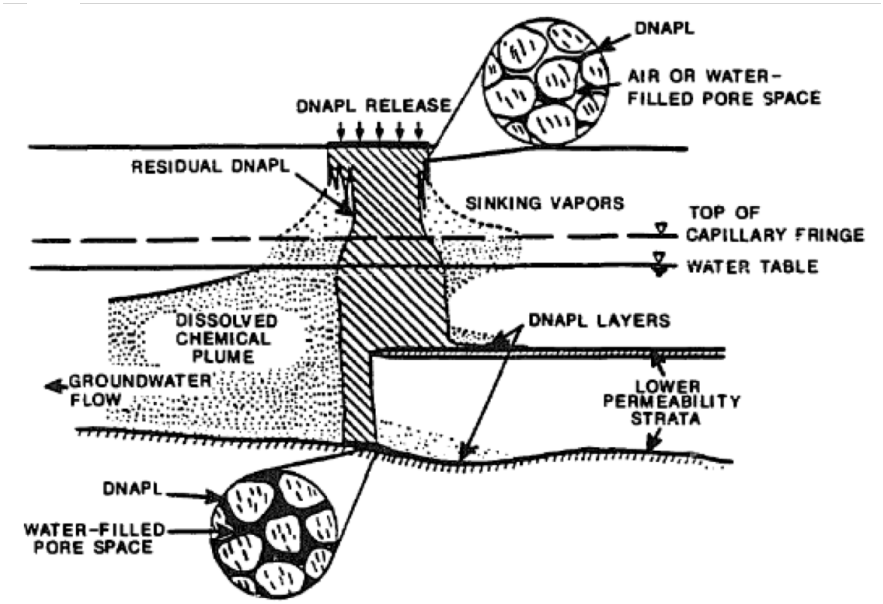

Figure 2.1 : Représentation schématique de la distribution des DNAPLs après une fuite accidentelle d'après Mercer et Cohen (1990)

la biodégradation), les conditions des milieux (homogène/hétérogène, propriétés hydrogéologiques de la nappe impactée), l'objectif et le coût total de la remédiation. Le traitement d'une pollution peut s'appliquer sur une zone source et/ou sur un panache. Les techniques classiques de remédiation peuvent se diviser en trois familles et se dérouler in-situ ou ex-situ (Brusseau *et al.*, 2001) :

- Les traitement physiques et thermiques qui visent soit à la suppression des voies de transfert par des moyens physiques (confinement), soit au transfert des polluants vers une phase plus accessible (en général l'air ou l'eau) via leurs propriétés physico-chimiques (sparging, pompage et écrémage).

- Les traitements chimiques ont pour but d'oxyder, de réduire les contaminants par l'ajout d'agents chimiques. Dans les cas des solvants chlorés, les oxydants les plus couramment utilisés sont le permanganate de potassium et le persulfate tandis que le Fe(0) est le réducteur le plus commun. Certains traitements permettent d'augmenter la mobilisation par l'ajout de tensioactifs.

- Les traitements biologiques permettent la dégradation des solvants chlorés par les micro-organismes (bio remédiation et atténuation naturelle) ou par l'absorption des organismes végétaux via les systèmes racinaires (phytoremédiation)

Si en théorie les différents traitements peuvent être adaptés dans le cadre d'une contamination par des solvants chlorés, la réalité du terrain et les critères de développement de la pollution (tels que les hétérogénéités) les rendent parfois inutilisables, peu efficaces, ou moyennant des coûts de réhabilitation trop importants. Que ce soit pour le lavage aux tensioactifs (Dekker et Abriola, 2000;

Saenton *et al.*, 2002), pour le sparging (Benner *et al.*, 2000; Rogers et Ong, 2000), l'oxydation/réduction (Krembs *et al.*, 2010; Schnarr *et al.*, 1998), de telles conditions de piégeage liées au milieu hétérogène, limite l'accessibilité (Atteia *et al.*, 2017) aux DNAPLs et la réhabilitation ne permet que très rarement d'atteindre des concentrations dans l'eau inférieures aux limites de potabilité (McGuire *et al.*, 2006; Soga *et al.*, 2004).

2.1.4 La notion de stabilisation de profil, une notion en voie de développement

Pour forcer les écoulements vers les milieux les moins perméables et donc augmenter l'accessibilité des contaminants, de nouvelles techniques sont apparues au cours du temps. Le principe fondamental de ces nouvelles approches repose sur le contrôle de la mobilité. Parmi les agents de contrôle de la mobilité, il existe :

- Les polymères
- Les mousses de tensioactifs

Les polymères proviennent souvent de l'industrie alimentaire, par exemple le xanthan. Ils sont choisis pour leur capacité à accroître la viscosité de l'eau, c'est-à-dire à augmenter la capacité de résistance aux contraintes de cisaillements. Ainsi, injectés dans les aquifères, les polymères tendent à augmenter la viscosité dans les milieux les plus perméables. Cette augmentation de viscosité induit une forte diminution de la vitesse d'écoulement de l'eau souterraine dans les zones à haute perméabilité et ne la modifie pas dans les régions à faible perméabilité (Robert *et al.*, 2006).

En laboratoire, Sale *et al.* (1989) ont comparé la quantité nécessaire de tensioactifs avant et après l'injection de polymères pour un rendement de récupération des polluants équivalent. Le ratio obtenu de 3 :1 (tensioactif :NAPL) est bien inférieur à ceux couramment exposé dans le cas d'un simple flushing avec des tensioactifs (Fountain *et al.*, 1996; Ramsburg *et al.*, 2005). Ce processus a été confirmé par Robert *et al.* (2006).

Sur le terrain, plusieurs études ont été menées dont les tests sur le site de Thouin Sant Pit (sablière Thouins, Canada) sur une aire de 8 m^2 et 1 m de profondeur (Martel *et al.*, 1998). Grâce à un procédé alliant une première injection de polymères (xanthan) puis une injection de tensioactifs, 86% des DNAPLs ont été récupérés au bout de 4 jours d'injection. Par ailleurs l'utilisation de seulement 0,9 VP de solution prouve l'efficacité mais aussi les avantages au niveau des coûts opérationnels par rapport à d'autres techniques.

Il apparait néanmoins que la réussite d'un tel procédé n'est pas uniquement lié à l'introduction d'un fluide visqueux dans l'aquifère mais aussi à la méthode et aux conditions d'injections. Martel *et al.* (2004) attribuent la réussite de cette injection tant à l'importance du procédé d'injection (injection de faible volume de solution très concentré sous forme de *slugs*) que par la mise en place d'un système de pompage favorisant l'envahissement homogène de la zone investiguée.

Les mousses ont un comportement similaire aux polymères, conduisant à des fronts de déplacement homogènes. L'un des avantages majeurs de l'utilisation des mousses est la réduction des quantités de tensioactifs et l'injection de volumes d'air importants. Faisant l'objet de cette thèse, les mécanismes de formation, de contrôle et l'utilité des mousses seront développés dans les parties suivantes.

2.1.5 Le confinement d'une zone source de pollution

Le confinement consiste à isoler la source de pollution à l'aide de matériaux argileux et/ou synthétiques peu perméables et non réactifs, et à établir une surveillance à l'aide d'un réseau de piézomètres. Ce procédé peut être implanté au pourtour, en aval ou en amont de la source de pollution en fonction des conditions environnementales et des enjeux à protéger (Devlin et Parker, 1996). Les différents types de confinement issus du domaine du bâtiment sont nombreux, impliquant un grand nombre de configurations envisageables (Bodocsi *et al.*, 1995). Une conductivité hydraulique inférieure à 10^{-7} m.s^{-1} est considérée comme la limite supérieure pour les matériaux isolants (Bodocsi *et al.*, 1995).

Du fait de besoins en matériel conséquents et spécifiques, son utilisation reste marginale et ne coïncide qu'avec des volumes importants de terres à confiner. De même, dans le contexte d'une usine en activité, l'applicabilité de cette technique est très limitée par l'accessibilité de la zone à confiner. La présence de machines et fondations ancrées dans le sol limite aussi la réalisation d'une paroi étanche continue. Par ailleurs, la présence de DNAPLs peut être un frein à l'utilisation des techniques de confinement classiques. Lors de l'installation du système de confinement, des formes de DNAPLs peuvent être mobilisés et déplacés vers des zones précédemment non contaminées (exemple de zones sous-jacentes). De même, le confinement complet en nappe peut aussi conduire à un accroissement de la surface piézométrique. Ainsi, l'installation doit veiller à ce qu'une mobilisation de DNAPLs ne soit pas induite par cette injection.

L'objectif de cette thèse est de développer l'injection de mousse pour le confinement d'une zone source. Cette application n'a à ce jour jamais été testée dans cette configuration. En théorie, la mousse apparaît comme une technologie moins invasive que les méthodes classiques de confinement et semble être adaptable dans le contexte d'une usine en activité. En effet, la mousse peut se propager dans le milieu poreux et donc être injectée via un piézomètre (Wang et Mulligan, 2004) et se propager sur des distances raisonnables (section 2.2.4.5). Cette propriété réduit considérablement l'invasivité de la technique et le nombre d'ouvrages à réaliser pour injecter ce fluide confinant (en comparaison aux techniques classiques), impactant directement le coût global de l'opération. L'utilisation majoritaire d'un gaz pour la formation de mousse permet aussi de réduire les coûts. L'un des inconvénients de cette solution concerne la rémanence de la mousse dans le milieu poreux. S'agissant par définition d'un fluide instable, le confinement par la mousse ne dispose pas de la même efficacité dans le temps (quelques heures à quelques mois) qu'un confinement classique (une dizaine d'années).

2.2 Propriétés de la mousse dans le milieu poreux et applications pour la dépollution des sols

2.2.1 Concepts théoriques relatif au milieu poreux

2.2.1.1 Ecoulement monophasique

La loi de Darcy

En 1856, Henry Darcy défini, à partir des écoulements d'eau à travers des filtres de sables, une loi physique qui exprime la valeur du débit d'un fluide incompressible transitant à travers un milieu poreux appelé communément "loi de Darcy". La conductivité hydraulique et le gradient de pression du fluide entre deux points détermine la circulation du fluide (équation (2.1)). Le rapport entre dH et dL est défini comme étant le gradient hydraulique i.

$$Q = AK \times \frac{dH}{dL} \tag{2.1}$$

Avec

- Q : Débit volumique d'eau [$m^3.s^{-1}$]
- A : Section d'écoulement [m^2]
- K : Conductivité hydraulique [$m.s^{-1}$]
- $\frac{dH}{dL}$: Gradient hydraulique [m/m]

La loi de Darcy peut aussi s'exprimer indépendamment de la section d'écoulement A, ce qui correspond à la vitesse de Darcy u ($m.s^{-1}$) (équation (2.2)).

$$u = \frac{Q}{A} \tag{2.2}$$

Avec

- u : Vitesse de Darcy [$m.s^{-1}$]

En appliquant les expressions des équations précédentes à la loi de Darcy, on obtient une expression en fonction du gradient où le signe négatif indique que le flux est positif dans la direction de l'écoulement.

$$u = -K\frac{dH}{dL} \tag{2.3}$$

Avec

- $\frac{dH}{dL}$: Gradient hydraulique [m/m]

Comme dit précédemment, la loi de Darcy définit un flux à travers une section d'écoulement. Dans le cas d'un milieu poreux, la section d'écoulement n'est pas uniquement constituée de pores saturés en eau mais aussi d'une matrice solide. Ainsi, l'aire disponible pour l'écoulement correspond à la multiplication de la porosité ϕ, correspondant à l'ensemble des vides d'un matériau solide, par l'aire totale d'écoulement (dans le cas où l'on considère que l'ensemble des pores participe à l'écoulement, dans le cas contraire on parlera de porosité cinématique ϕ_c).

$$v = \frac{u}{\phi_c} \tag{2.4}$$

Avec

- v : Vitesse interstitielle [m.s^{-1}]
- ϕ_c : Porosité cinématique [-]

La conductivité hydraulique K et la perméabilité intrinsèque k

L'une des composantes majeures de la loi de Darcy est la définition de la conductivité hydraulique K, qui d'après l'équation (2.1) correspond à la pente de la régression linéaire reliant le flux de Darcy au gradient hydraulique. La conductivité hydraulique K est une grandeur qui exprime l'aptitude d'un milieu poreux à laisser passer un fluide sous l'effet d'un gradient de pression, et s'exprime couramment comme suit :

$$K = \frac{k \times \rho \times g}{\mu} \tag{2.5}$$

Avec

- k : Perméabilité intrinsèque [m^2]
- ρ : Masse volumique du fluide [kg.m^{-3}]
- g : Accélération de la pesanteur [m.s^{-2}]
- μ : Viscosité dynamique du fluide [Pa.s]

La conductivité hydraulique est ainsi définie par une composante du milieu poreux appelée perméabilité intrinsèque k et par les propriétés (masse volumique ρ et viscosité μ) du fluide traversant le milieu poreux en question.

Finalement on obtient une expression de la loi de Darcy qui intègre le concept de perméabilité, en termes de charge h ou de potentiel, incluant la pression P et la hauteur z

$$u = -k \times \frac{\rho g}{\mu} \times \frac{dh}{dl} = -\frac{k}{\mu}\left(\frac{dP}{dl} + \rho g \frac{dz}{dl}\right) \tag{2.6}$$

Avec

- dP : Variation de la pression [Pa]
- z : Cote [m]

La viscosité du fluide

Mentionnée dans les équations (2.5) et (2.6), la viscosité se définit de manière générale comme l'ensemble des phénomènes de résistance à l'écoulement se produisant dans la masse d'une matière, pour un écoulement uniforme et sans turbulence. Plus la viscosité augmente, et plus la capacité du fluide à s'écouler facilement diminue. On distingue la viscosité dynamique (Pa.s) (plus couramment utilisée) comme étant le rapport de la contrainte de cisaillement au gradient de vitesse perpendiculaire au plan de cisaillement. Elle est reliée à la viscosité cinématique ($m^2.s^{-1}$) par la masse volumique du fluide ρ pour traduire la capacité d'un fluide à s'écouler.

2.2.1.2 Ecoulement polyphasique

Le déplacement d'un fluide par un autre fluide non miscible est un sujet d'intérêt majeur, notamment dans le cadre des sites et sols pollués. Dans le cadre de cette thèse, l'air et l'eau, composants de la mousse, sont deux fluides immiscibles. Cette section vise à introduire les différentes notions décrivant les écoulements polyphasiques, et exposer les bases pour la compréhension du déplacement de la mousse dans un milieu poreux saturé en eau.

Saturation

La saturation est décrite comme l'abondance relative d'un fluide dans un milieu. Dans le cas d'un système polyphasique, deux fluides immiscibles sont présents dans le milieu poreux. Pour un fluide i donné, la saturation S_i est définie comme étant le rapport volumique du fluide V_i sur le volume de vides V_{vides}.

$$S_i = \frac{V_i}{V_{vides}} \tag{2.7}$$

La somme de toutes les saturations des fluides est égale à 1.

Tension interfaciale, mouillabilité et angle de contact

La tension interfaciale σ est définie comme étant l'énergie nécessaire pour séparer une unité de surface à l'interface entre deux fluides immiscibles. Cette tension existe de par le déséquilibre des forces d'attractions entre les différentes molécules des fluides en leur point de contact.

La mouillabilité correspond à la tendance d'un fluide à être attiré vers une surface, préférentiellement à un autre fluide. Elle exprime donc l'attraction d'un fluide pour les surfaces solides. La mouillabilité est une propriété unique des solides et des fluides. Par exemple, l'eau est toujours le liquide mouillant par rapport à l'air et presque toujours par rapport aux huiles sur les minéraux d'une

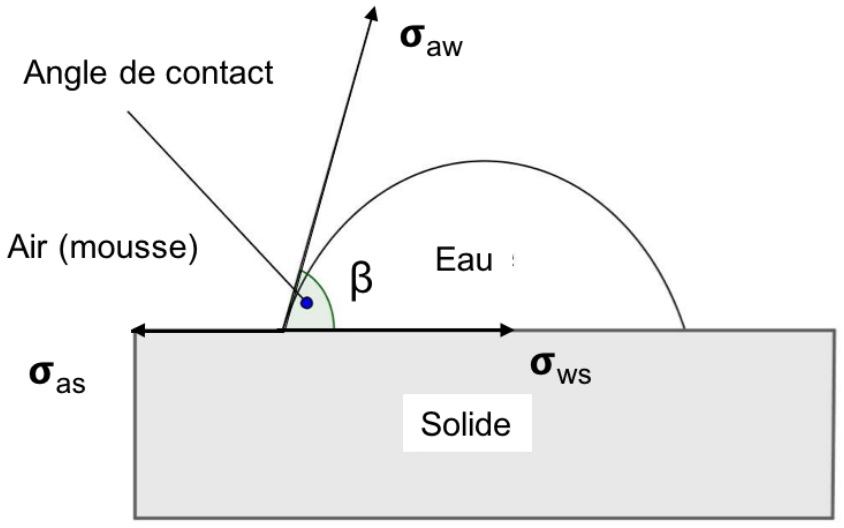

Figure 2.2 : Mouillabilité et angle de contact entre l'air (ou mousse), l'eau et le solide

roche. Par contre, l'huile devient le liquide mouillant par rapport à l'eau pour les surfaces organiques (type matière organique, ou bien dans certains cas de réservoirs pétroliers).

La mouillabilité impacte directement la distribution des fluides dans le milieu poreux et donc *afortiori* l'écoulement de ceux-ci. La mouillabilité se mesure expérimentalement hors milieu poreux et est définie par l'angle de contact β entre le fluide et la matrice solide. Un angle de contact inférieur à 90 ° définit les liquides mouillants, tandis qu'un angle de contact supérieur indique que le fluide est non mouillant.

Pression capillaire

Il existe, entre deux fluides immiscibles en contact, une interface qui engendre une différence de pression entre ces fluides appelée pression capillaire P_c.

$$P_c = P_w - P_g \tag{2.8}$$

Avec

- P_c : Pression capillaire [Pa]
- P_w : Pression de l'eau [Pa]
- P_g : Pression de l'air [Pa]

La loi de Laplace, aussi appelée équation de Young-Laplace, est une loi qui lie la courbure locale de l'interface séparant deux fluides à la différence de pression

soit la pression capillaire (équation (2.9)).

$$P_c = \frac{2\sigma}{R} \tag{2.9}$$

Avec

- R : Rayon de courbure moyen [m]
- σ : Tension interfaciale [N.m^{-1}]

La pression capillaire P_c peut se calculer à partir d'un simple tube capillaire relié à un réservoir contenant un liquide mouillant (angle de contact inférieur à 90 °) surmonté d'un gaz. La pression à l'intérieur du liquide est inférieure à celle de la phase gazeuse. Dans ce cas, il existe un équilibre entre la pression capillaire qui tend à faire monter le fluide et la gravité qui tend à le faire descendre. Cette position d'équilibre z permet de calculer la pression capillaire selon la relation suivante (Loi de Jurin) :

$$P_c = (\rho_w - \rho_g)gz \tag{2.10}$$

Imbibition et drainage

L'imbibition et le drainage sont deux processus dans lesquels un fluide en déplace un autre. L'imbibition correspond au déplacement d'un fluide mouillant par un fluide non mouillant, tandis que le drainage correspond au processus opposé (cas d'une injection de mousse dans un aquifère).

En pratique, dans le cas du drainage, la quantité de fluide mouillant déplacée est mesurée en fonction de la pression capillaire appliquée. En répétant le processus, après plusieurs itérations, la saturation du fluide mouillant diminue jusqu'à un état d'équilibre atteint pour une saturation irréductible S_{wi}, ce qui permet d'établir la courbe de drainage appelée drainage primaire. On peut noter que la saturation irréductible résulte d'un volume de fluide mouillant piégé ne pouvant être déplacé qu'à des pressions capillaires très élevées.

Dans le cas de l'imbibition, le processus est inversé par diminution progressive de la pression du fluide non mouillant entrainant la pénétration du fluide mouillant dans le milieu poreux. La saturation en fluide mouillant à pression capillaire nulle n'est pas totale. Une certaine quantité de phase non mouillante reste piégée correspondant à la saturation résiduelle (S_{gr} dans le cas du gaz).

La loi de Darcy généralisée à un écoulement polyphasique

Un écoulement polyphasique est généralement décrit par la loi de Darcy généralisée. Dans le cas d'un écoulement unidirectionnel (1D), l'équation de Darcy pour deux fluides (eau et air) s'écrit de la manière suivante :

$$u_w = -\frac{k_w}{\mu_w} \times \left(\frac{dP_w}{dx} + \rho_w g sin\theta \right) \tag{2.11}$$

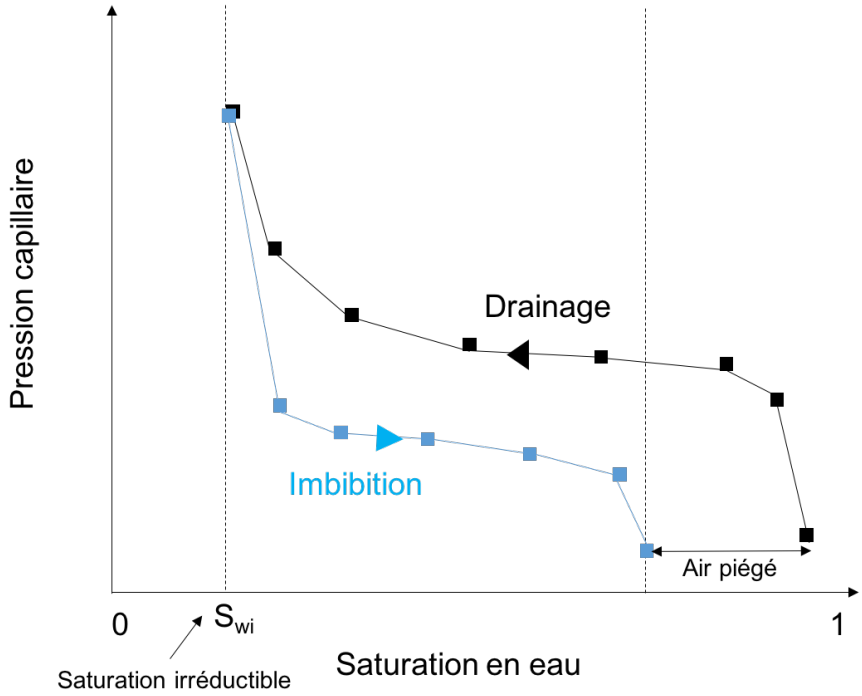

Figure 2.3 : Représentation schématique des courbes d'imbibition et de drainage

$$u_g = -\frac{k_g}{\mu_g} \times \left(\frac{dP_g}{dx} + \rho_g g sin\theta \right) \tag{2.12}$$

Avec

- P : Pression du fluide considéré [Pa]
- μ : Viscosité dynamique du fluide considéré [Pa.s^{-1}]
- θ : Angle par rapport à l'horizontale [-]

La perméabilité relative

Dans un écoulement polyphasique, on admet que chaque fluide suit séparément la loi de Darcy, comme le montrent les équations (2.11) et (2.12). Par ailleurs les flux de Darcy de chaque fluide ne sont pas colinéaires, et sont dans certains cas, diamétralement opposés (exemple de l'eau et du gaz). La capacité du milieu à transmettre un fluide en même temps qu'un autre, est appelée perméabilité effective k_i. Plus la portion du milieu poreux occupée par le fluide est grande, plus la perméabilité liée à ce fluide sera grande. Ainsi, la notion de saturation est introduite dans les équations de la perméabilité effective d'un fluide (équation (2.13)

$$k_i = k k_{ri}(S_i) \tag{2.13}$$

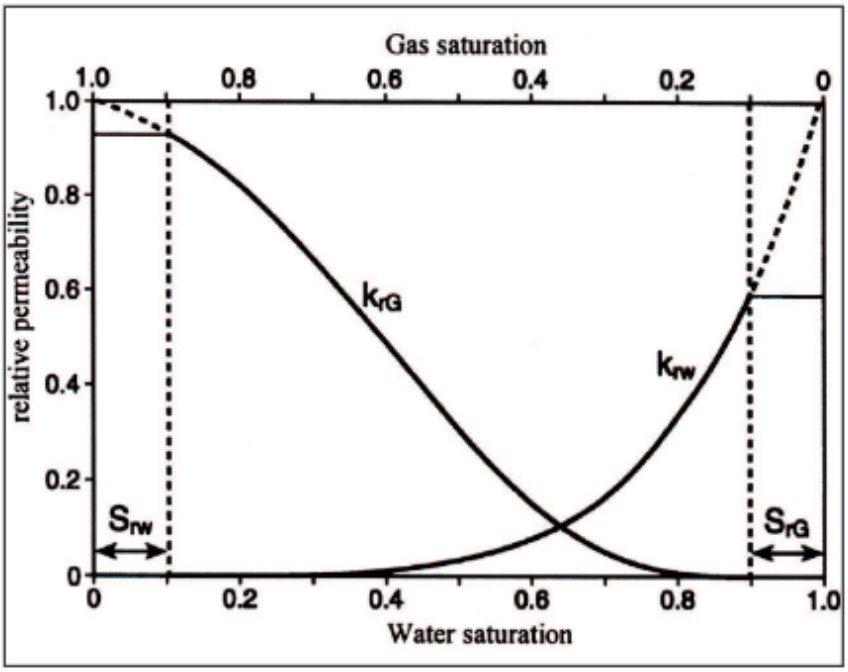

Figure 2.4 : Évolution de la perméabilité relative en fonction de la saturation en eau (ou en gaz) (Cohen, 2013)

Avec

- k_i : Perméabilité effective du fluide [m^2]
- k_{ri} : Perméabilité relative du fluide [-] fonction de sa saturation S_i

En dessous d'une certaine saturation limite S_{wr} (en eau par exemple), la phase n'est plus continue et la perméabilité à l'eau est nulle. Par ailleurs, la somme des perméabilités relatives des deux fluides n'est pas constante, et est le plus souvent inférieure ou égale à la perméabilité intrinsèque absolue.

Le concept de perméabilité relative exprime l'interférence entre plusieurs fluides lors de leur circulation. La figure 2.5 montre qu'en milieu diphasique, fixer la saturation du fluide mouillant définit implicitement la saturation relative du fluide non mouillant.

2.2.1.3 Les modèles de capillarité et de perméabilité relative

Comme vu précédemment dans le cadre de l'imbibition et du drainage, les propriétés capillaires contrôlent la saturation des fluides en présence. De même, d'après l'équation (2.13), la saturation détermine la perméabilité relative des fluides.

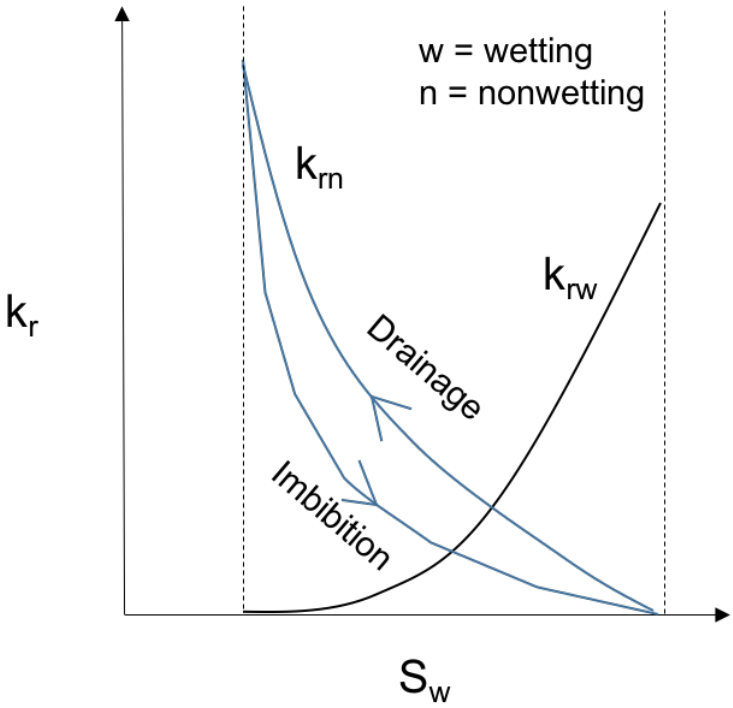

Figure 2.5 : Courbe de perméabilité relative typique

Les modèles de Brooks et Corey, et Burdine

Le modèle de Brooks et Corey (1964) met en relation la saturation effective S_{we} (2.14) et la pression capillaire par la relation suivante (2.15) :

$$S_{we} = \frac{S_w - S_{wi}}{1 - S_{wi}} \tag{2.14}$$

Avec

- S_{we} : Saturation effective [-]
- S_{wi} : Saturation irréductible (de l'eau) [-]
- S_w : Saturation en eau [-]

$$P_c = P_d(S_{we})^{-\frac{1}{\lambda}}; P_c \geq P_d \tag{2.15}$$

Avec

- P_d : Pression de déplacement [Pa]
- λ : Coefficient de Brooks et Corey représentant la distribution des pores [-]

Le modèle de Brooks et Corey est ensuite intégré dans le modèle de perméabilité de Burdine *et al.* (1953) afin d'obtenir une relation directe entre la perméabilité relative et la saturation en eau.

$$k_{rw} = (S_{we})^{\frac{2+3\lambda}{\lambda}} \tag{2.16}$$

Avec

- k_{rw} : Perméabilité relative à l'eau [-]

Les modèles de Van Genuchten et Mualem

Le modèle de Van Genuchten (1980) établit lui aussi une relation entre la pression capillaire et la saturation effective. Par rapport au modèle de Brooks et Corey, le modèle de Van Genuchten s'applique aussi lorsque que $P_c \leq P_d$. Il est défini à partir de trois paramètres empiriques de calage de la courbe de la pression capillaire en fonction de la saturation : n et m sont des paramètres définissant la courbure tandis que α défini l'augmentation de la pression capillaire pour une saturation donnée.

La relation empirique prend la forme suivante (2.17) :

$$S_{we} = (1 + (\alpha P_c)^n)^{-m} \tag{2.17}$$

Avec

- α : Paramètre de Van Genuchten [m^{-1}]
- n : Paramètre de Van Genuchten [-]
- $m = 1 - 1/n$ [-]

Le modèle de Van Genuchten est classiquement intégré dans le modèle de perméabilité relative de Mualem (1976) :

$$k_{rw} = \sqrt{S_{we}} \left(1 - (1 - S_{we}^{1/m})^m\right)^2 \tag{2.18}$$

2.2.2 Généralités sur les tensioactifs

2.2.2.1 Définition des tensioactifs

Le terme tensioactif ou *surfactant* en anglais décrit des molécules comportant la présence d'une tête hydrophile et une chaine hydrophobe (Schramm, 2000). La tête pouvant être constituée par un ou plusieurs groupements polaires ioniques ou non ioniques qui interagissent fortement avec les environnements aqueux. La partie hydrophobe est composé d'une chaine hydrocarbonée (C8-C22) (Rosen, 2012). Au regard de la nature du groupement hydrophile, les tensioactifs peuvent être classés en 4 classes (Myers, 2005; Rosen, 2012) :

- Les tensioactifs anioniques. Il s'agit de la classe de tensioactifs la plus utilisée dans l'industrie. Ces tensioactifs sont composés d'un anion amphiphile (carboxylate, sulfate, sulfonate ou phosphate). La surface active de la molécule porte une charge négative. Les savons (sels d'acides gras), les détergents synthétiques, les agents moussants et humectant font partie de ce groupe.
- Les tensioactifs cationiques. Ces tensioactifs sont composés d'un cation amphiphile. La surface active de la molécule porte une charge positive.
- Les tensioactifs zwitterioniques ou amphotères. La surface active est composée de deux groupes ioniques (un anion et un cation). La surface active porte une charge négative pour les valeurs de pH élevées, tandis que pour un faible pH la surface active porte une charge positive.
- Les tensioactifs non ioniques. A l'inverse des tensioactifs cités plus haut, la surface active des tensioactifs non ioniques ne porte aucune charge apparente. L'activité de surface (hydrophilie, solubilité...) est régie par la présence d'hétéroatomes (oxygène et azote) dans les groupements fonctionnels (de type alcool, amide, ester, ether).

2.2.2.2 Concentration micellaire critique CMC

La double nature hydrophile-hydrophobe permet aux molécules tensioactives de s'adsorber au droit des interfaces de type liquide-liquide, liquide-solide, liquide-gaz. D'après Preston (1948), ce phénomène entraine un abaissement de la tension interfaciale entre les deux phases considérées. A de faibles concentrations, les molécules de tensioactif s'adsorbent sous la forme d'un film monomoléculaire au droit de l'interface en abaissant graduellement la tension superficielle. Au-delà d'une certaine concentration appelée concentration micellaire critique (CMC), la surface se retrouve saturée en tensioactifs et la tension interfaciale devient constante. Les monomères de tensioactifs s'autoassocient alors sous forme d'agrégats appelés micelles. Une micelle est une forme organisée sphérique des molécules de tensioactif. La partie hydrophile de la molécule de tensioactifs se dirige vers l'extérieur de la micelle en contact avec l'eau tandis que la chaine hydrophobe se trouve au centre de la micelle sans contact avec l'eau. De cette configuration naît l'augmentation du pouvoir de solubilisation. Les molécules non aqueuses (comme l'huile) peuvent se répartir dans les noyaux hydrophobes des micelles. De même, les propriétés physiques (capacité de solubilisation) changent notablement une fois la CMC dépassée.

2.2.3 Utilisation des tensioactifs sous forme de mousse hors milieu poreux

2.2.3.1 Description de la mousse

Bikerman (1973) a défini la mousse comme une agglomération de bulles de gaz séparées les unes des autres par des films liquides minces. Ce film liquide est

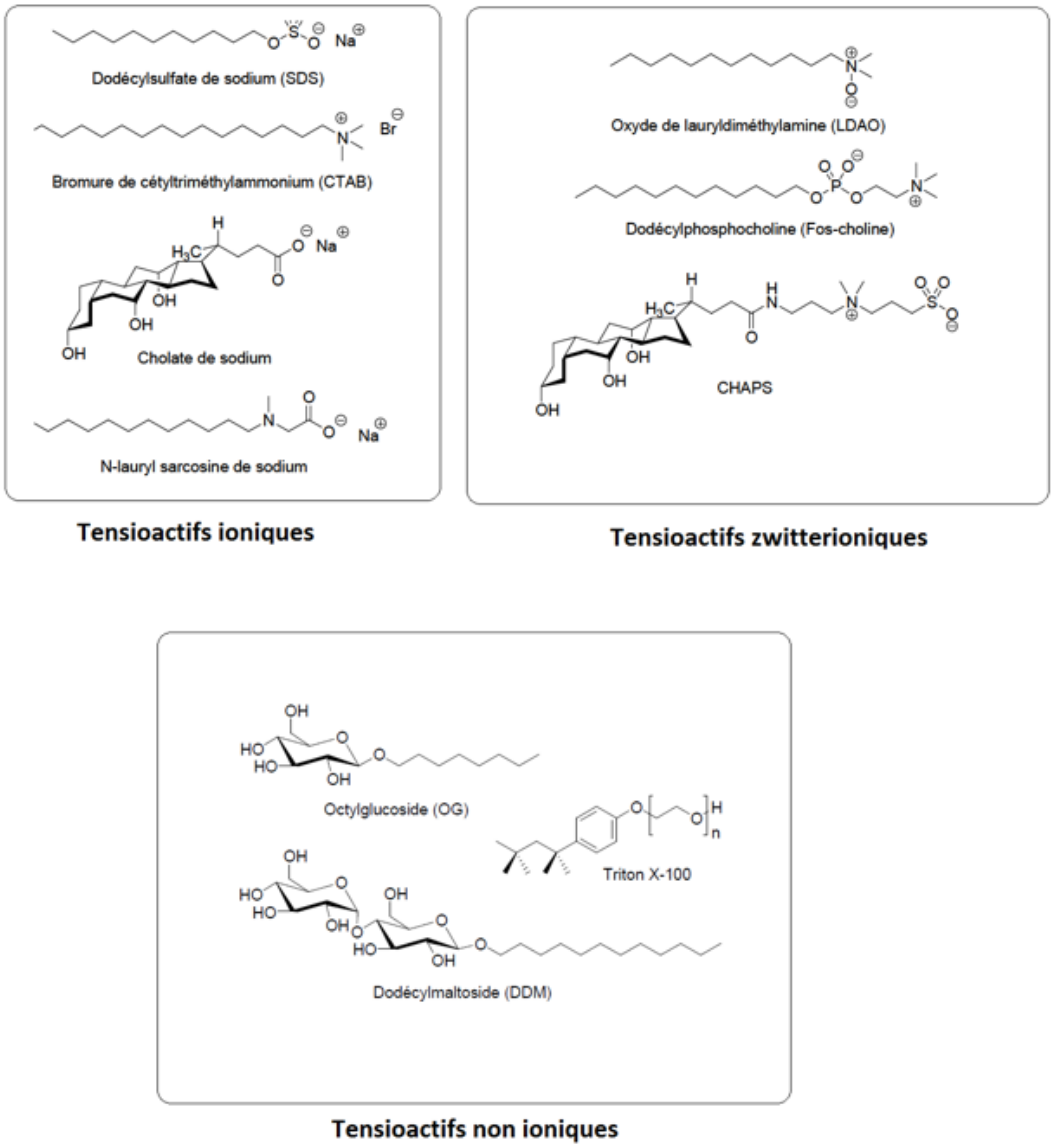

Figure 2.6 : Structure de quelques tensio-actifs en fonction de leur classes (Dauvergne, 2010)

communément appelé lamelle. Il est stabilisé par les molécules de tensioactifs. A la rencontre entre trois films (appelée bords de plateau), des canaux se forment ou le liquide peut s'écouler. Les mousses ne sont pas thermodynamiquement stables et s'effondrent au cours du temps. La mousse se déstabilise lorsque la pression capillaire est trop forte, entraînant le détachement des lamelles et la diffusion du gaz à travers celle-ci. Ce processus s'observe avec la diminution du nombre de bulles jusqu'à leur disparition totale de la mousse.

2.2.3.2 Structure de la mousse

La formation de mousse procède de la création d'interfaces stabilisées par des tensioactifs lors du mélange d'un gaz et d'un liquide. Communément, on définit la mousse par le ratio entre la fraction volumique gazeuse et la fraction volumique totale (comprenant le gaz et l'eau) appelée la qualité de la mousse f_q ou débit fractionnaire de gaz (équation (2.19) :

$$f_q = \frac{V_{gaz}}{V_{mousse}} \tag{2.19}$$

Le physicien belge Joseph Plateau (19eme siècle), a été le premier à décrire les mousses sèches. Il définit trois règles :

1. La paroi d'une bulle isolée est constituée d'un film de courbure constante.

2. Les parois se rencontrent par trois et forme un angle de 120 ° appelé bord de Plateau. Dans les mousses, les bords de Plateau forment un réseau dans lequel le liquide s'écoule.

3. Les bords de Plateau se rencontrent toujours par quatre et forment entre eux un angle de 109,5 ° .

2.2.3.3 Stabilité de la mousse

Les forces exercées au niveau des lamelles, largement dépendantes du type de tensioactif, constituent les facteurs décisifs pour la stabilité de la mousse (Chambers et Radke, 1990). En accord avec la loi de Young-Laplace, la pression du liquide est plus faible dans les bords de plateau qu'au sein des lamelles. Ainsi, un gradient est créé, tendant à drainer les liquides vers les bords de plateau. Une voie exposée par Chambers et Radke (1990) pour surmonter ces forces de succion capillaire est la présence d'un stress ou contrainte normale s'exerçant de part et d'autre de la lamelle appelé la pression de jonction/disjonction π (*conjoining/disjoining pressure*). Cette pression correspond à la résultante de forces répulsives et de forces attractives. Les lamelles en milieu poreux peuvent équilibrer les forces de succion capillaire uniquement si π est positif. En première approximation, cette pression est fonction de la distance h comprise entre deux surfaces d'un film. L'isotherme de cette pression met en lumière la contribution de trois termes distincts. La première contribution correspond à une force d'attraction de type Van der Walls (π_A). La seconde correspond à une force de répulsion (π_R) à deux composantes. Une composante majoritaire est la force électrostatique de répulsion entre deux molécules de même charge électrique. Une autre, minoritaire, est la force de répulsion stérique entre les molécules de tensioactifs. Ainsi la pression de jonction/disjonction s'exprime :

$$\pi = \pi_A + \pi_R \tag{2.20}$$

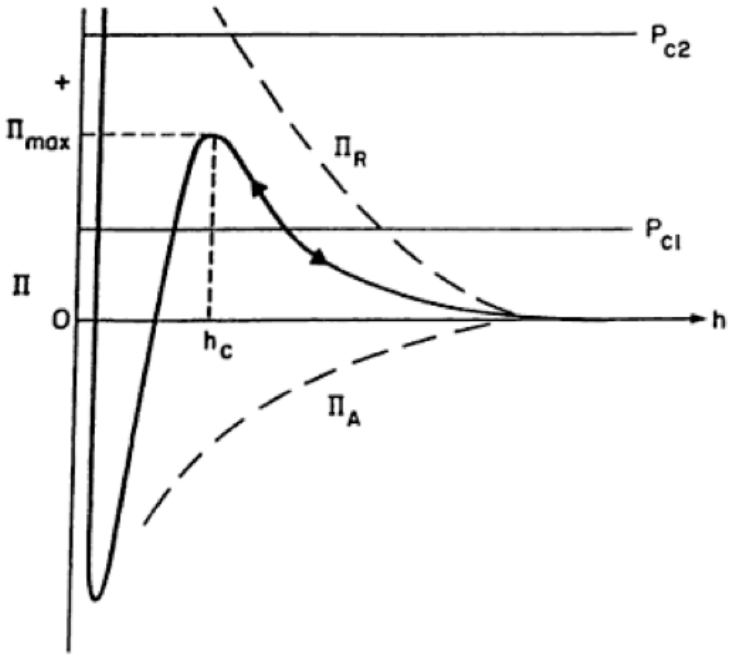

Figure 2.7 : Représentation schématique d'une isotherme de pression de jonction/disjonction avec les contributions des forces attractives et répulsives (Chambers et Radke, 1990)

Si l'on veut exprimer une pression de jonction, alors les forces de répulsions doivent être exprimées négativement et les forces d'attractions doivent être exprimées positivement, et inversement si l'on exprime une pression de disjonction.

Une fois la mousse formée, celle-ci subit une déstabilisation plus ou moins lente, sous l'effet de 3 mécanismes majeurs :

1. La diffusion gazeuse correspond à la diffusion du gaz contenu dans une bulle de petite taille vers une bulle de taille plus importante. En effet, la pression interne à la petite bulle est plus forte et aura tendance à se diffuser dans la plus grosse bulle à travers leur paroi commune. Ce comportement dépend donc de la structure de la mousse et de la répartition des tailles de bulles.

2. Le drainage capillaire ou succion capillaire est due à l'existence de pression entre les types de structures. En effet, la concavité des surfaces entraîne des différences de pression et tend à drainer le liquide hors du film vers les bords de Plateau (là où la pression est plus faible).

3. Le drainage gravitationnel ou ségrégation gravitaire correspondant au processus majeur de dégradation de la mousse. L'écoulement des liquides et donc l'assèchement des films est régi par l'action de la pesanteur.

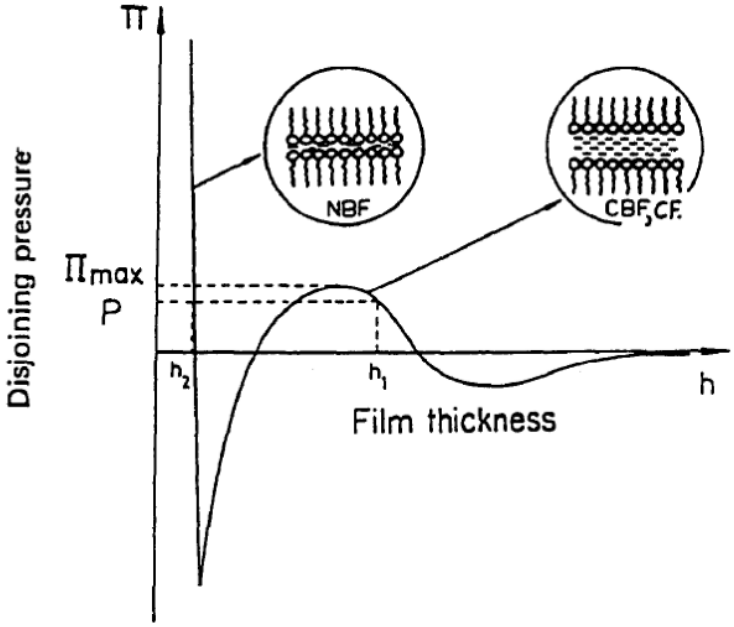

Figure 2.8 : Représentation schématique d'une isotherme de pression de jonction/disjonction en fonction de l'épaisseur du film (Pugh, 1996)

2.2.3.4 Effet Gibbs – Marangoni

A l'équilibre, au niveau d'une lamelle, les molécules de tensioactifs sont adsorbées au niveau des interfaces et réduisent la tension interfaciale. Ce phénomène est appelée l'effet Gibbs. Dans le cas de l'extension soudaine d'une lamelle, le film en question subit une augmentation de sa surface et donc une baisse de la concentration de molécules tensioactives. La baisse de tensioactifs dans cette région provoque une augmentation soudaine de la tension interfaciale. Ainsi, cet étirement entraîne un gradient de tension interfaciale qui induit un flux de liquide de la zone non étirée vers la zone étirée. Ce transport de fluide et de molécules tensioactives dû à la création d'un gradient de tension superficielle est appelé l'effet Marangoni (Adamson, 1982; Clunie *et al.*, 1971; Ross et Morrison, 1988).

Trois cas ont été identifiés par Pugh (1996). Le premier correspond à un système dans lequel la solution de tensioactifs est trop diluée. Dans ce cas, le gradient de tension superficielle crée est très faible et ne permet pas de stabiliser correctement le film. Un deuxième système se distingue lorsque la solution de tensioactifs est trop concentrée. La différence de tension entre la zone étirée et les zones voisines est trop rapidement comblée par l'ajout de molécules de tensioactifs. Il en résulte un amincissement de la zone initialement étirée, ce qui conduit à des films instables. Dans la pratique, des études ont été menées et ont nuancé ce concept théorique (Estrada, 2014). Le troisième système correspond à l'intermédiaire entre les deux systèmes évoqués précédemment. Les films, après avoir subi une contrainte, retrouvent leur configuration initiale grâce au déplacement des molécules de tensioactifs, ce système est donc temporairement stable.

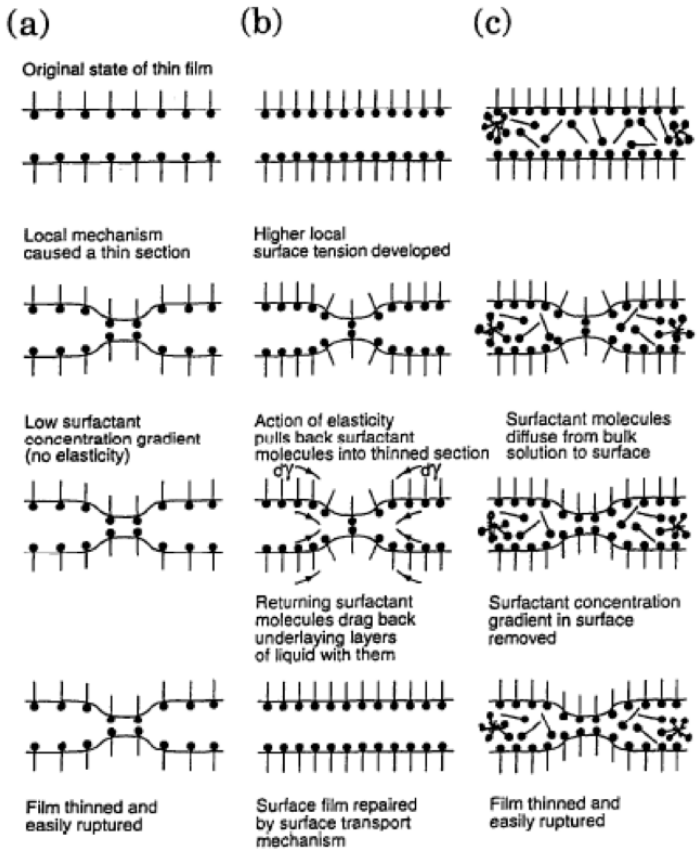

Figure 2.9 : Illustration de l'effet Gibbs-Marangoni dans un film liquide. (a) Faible concentration en tensio-actifs. (b) Concentration en tensio-actifs proche de la CMC. (c) Concentration en tensio-actifs supérieur à la CMC (Pugh, 1996)

2.2.4 Comportement de la mousse en milieu poreux

2.2.4.1 Adsorption des tensioactifs sur les matrices solides

Dans la perspective de remédiation des eaux souterraines par l'utilisation des tensioactifs sous forme solubilisée ou sous forme de mousse, l'adsorption sur le milieu poreux est un phénomène à prendre en considération. Cette adsorption constitue une perte plus ou moins importante de tensioactifs et donc des coûts économiques plus importants. Le comportement des tensioactifs à l'interface solide-liquide est contrôlé par diverses propriétés chimiques à la fois du solide, du tensioactif et du solvant (ici l'eau de l'aquifère). De nombreux facteurs influencent l'adsorption (Myers, 2005) :

- La nature des interactions entre les tensioactifs et le solide. Les phénomènes d'adsorptions sont principalement dus aux interactions électrostatiques, aux interactions de Van der Walls, aux liaisons hydrogènes, ou via des phénomènes de solvatation et désolvatation entre le milieu poreux et les molécules de tensioactifs.

- La forme de l'isotherme et la signification du plateau atteint

- L'étendue de l'adsorption (sous-entendu : monocouche, ou plusieurs couches formées)

- Les interactions entre l'eau souterraine et la matrice solide. Dans certains cas, l'adsorption de tensioactifs peut changer la mouillabilité des surfaces (Schramm, 2000). Dans le cas des aquifères, les surfaces sont mouillables à l'eau et l'adsorption des tensioactifs peut rendre les surfaces plus hydrophobes.

- L'orientation des molécules de tensioactifs adsorbées sur les surfaces.

- Les effets des paramètres physico-chimiques tels que la température, le pH.

L'isotherme de type Langmuir (L2) est l'isotherme typique d'adsorption des tensioactifs. Il est possible de distinguer 3 régions (cf. Figure 2.10)

La région I correspond à l'adsorption des monomères de façon indépendante les uns des autres via des liaisons hydrogènes pour les tensioactifs non ioniques, et via des liaisons électrostatiques pour les tensioactifs ioniques. La région II correspond à l'association des monomères précédemment adsorbés via les queues hydrophobes pour former des agrégats. La région III correspond à un plateau d'adsorption. Ce plateau est observé à la CMC. L'interface où s'adsorbent les tensioactifs est proche de la saturation.

2.2.4.2 Stabilité de la mousse dans le milieu poreux

Dans le milieu poreux, la mousse se trouve en régime stabilisé autour d'une certaine valeur de pression capillaire appelée pression capillaire limite P_c^* (Khatib *et al.*, 1988). Cette pression capillaire limite est fonction du tensioactif, de la

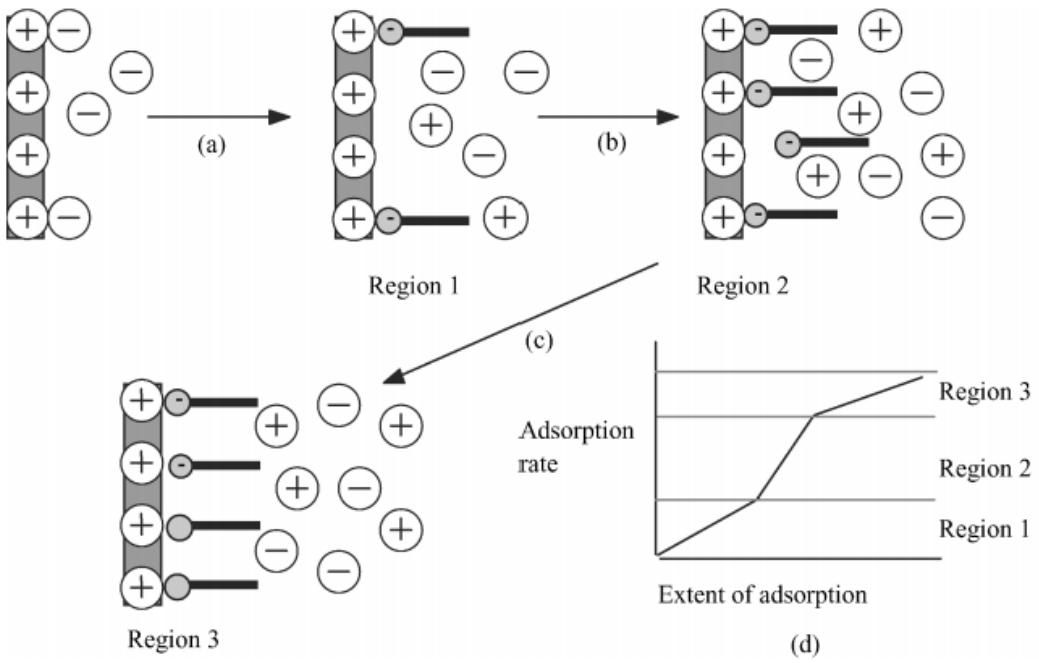

Figure 2.10 : Isotherme d'adsorption pour les tensio-actifs d'après Myers (2005)

concentration, de la vitesse du gaz. Pour un tensioactif donné, la pression capillaire limite P_c^* diminue avec l'augmentation de la vitesse du gaz.

Comme exposé précédemment dans les modèles de capillarité, la pression capillaire est une fonction de la saturation. Khatib *et al.* (1988) ont montré que l'écoulement de mousse ne pouvait s'effectuer au-delà de la pression capillaire limite P_c^*, ce qui signifie qu'il existe une saturation minimale du liquide requise S_w^* comme le montre la figure 2.11.

Dans le cas où le gaz et le liquide s'écoulent sous la forme d'une mousse de taille de bulle constante (pour une vitesse de gaz donnée), à mesure que le débit fractionnaire du gaz f_g augmente, la saturation du liquide diminue jusqu'à ce que la valeur limite S_w^* (pour P_c^* donnée) soit atteinte. Si le flux fractionnaire de gaz augmente encore, la texture de la mousse doit grossir pour éviter que la pression capillaire ne dépasse la valeur limite (figure 2.12).

Khatib *et al.* (1988) définissent une relation logarithmique entre la perméabilité et la pression capillaire limite P_c^*. La diminution de la pression capillaire limite est reliée à une augmentation de la perméabilité. Ainsi, une perméabilité accrue a un effet déstabilisant sur la mousse qui s'écoule (figure 2.13).

Dans leurs expériences, Khatib *et al.* (1988) remarquent qu'en dessous d'une certaine perméabilité (800 mD, ou 7,89 $\times$ 10^{-12} m^2), la pression capillaire d'entrée est plus grande que la pression capillaire limite P_c^*. En théorie, cela signifie qu'aucun écoulement de mousse n'est possible et que l'on observe seulement un écoulement distinct de liquide et de gaz. Khatib *et al.* (1988) nuancent cette théorie, en considérant que la mobilité du gaz est tout de même réduite du fait

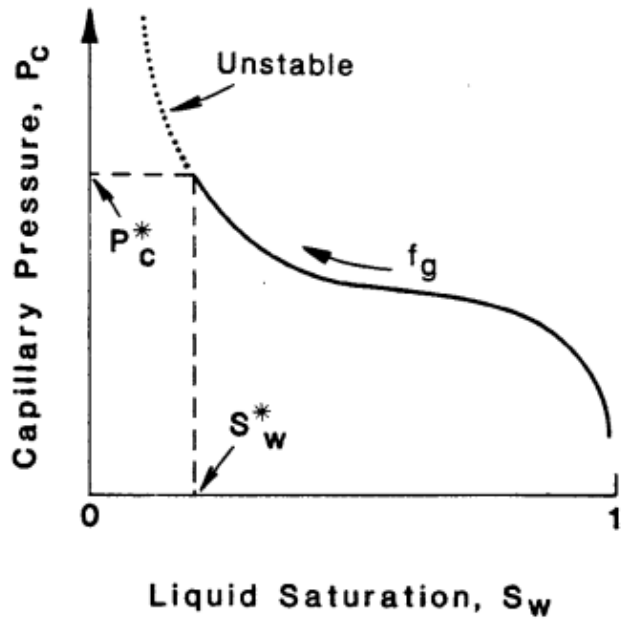

Figure 2.11 : Relation entre la pression capillaire P_c et la saturation du liquide S_w d'après (Khatib *et al.*, 1988)

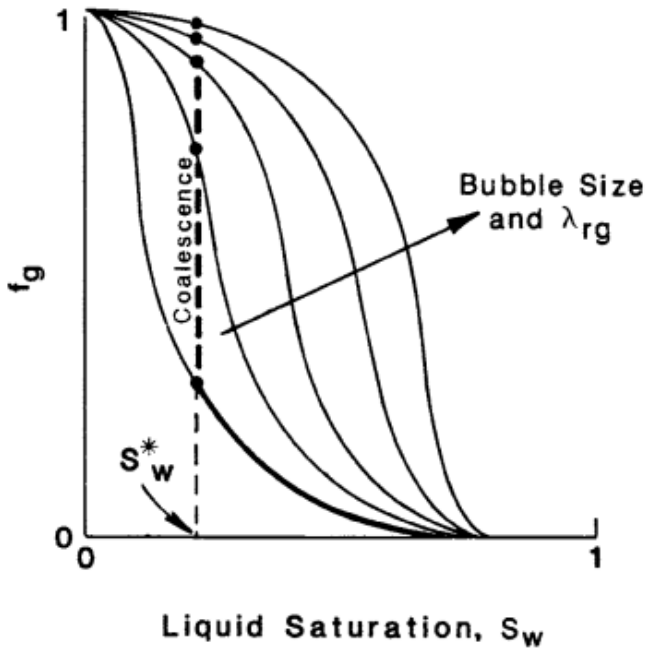

Figure 2.12 : Relation entre le débit fractionnaire de gaz et la saturation d'après (Khatib *et al.*, 1988)

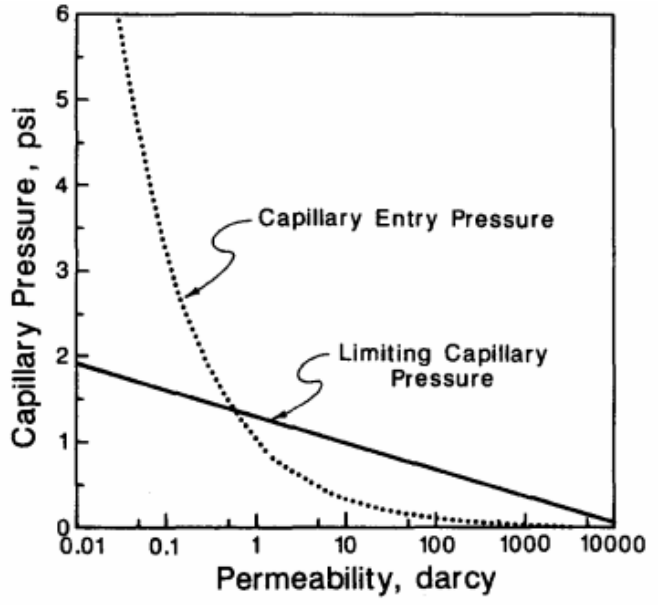

Figure 2.13 : Relation entre les pressions capillaires d'entrée et la pression capillaire limite avec la perméabilité du milieu poreux d'après (Khatib *et al.*, 1988)

de la présence de tensioactifs, favorisant le piégeage d'une partie du gaz. Del Campo Estrada *et al.* (2015) confirment la difficulté de générer de la mousse dans les milieux peu perméables (250 mD). Les mêmes auteurs constatent aussi que l'augmentation de la perméabilité vers de très hautes valeurs (100 D) a un effet négatif sur la stabilité de la mousse.

2.2.4.3 Régime à l'état stationnaire

La densité de bulles est connu sous le nom de texture de mousse. Les mousses à texture fine ont des bulles très petites qui entraînent une forte réduction de la mobilité, tandis que les mousses plus grossières qui contiennent moins de lamelles pour limiter le flux n'influencent pas autant la mobilité. Par conséquent, les mousses à texture fine sont également souvent appelées *strong foam*, et les mousses grossières ont tendance à être appelées *weak foam*. En milieu poreux, ce type de mousse correspond souvent à des zones de plusieurs pores occupées uniquement par du gaz. Il existe aussi une configuration où le gaz et le liquide s'écoulent séparément correspondant à un état sans formation de mousse (figure 2.14).

Le régime *weak foam* se traduit par une augmentation relativement modérée de la pression (ou une diminution relativement modérée de la mobilité du gaz), tandis que le régime *strong foam* conduit à une augmentation drastique de la pression (ou une diminution drastique de la mobilité des gaz). Le passage entre les deux états est appelé « génération de mousse ».

Gauglitz *et al.* (2002) montre que la rhéologie de la mousse dans les milieux poreux suit une tendance démontrée par la théorie des catastrophes qui caractérise

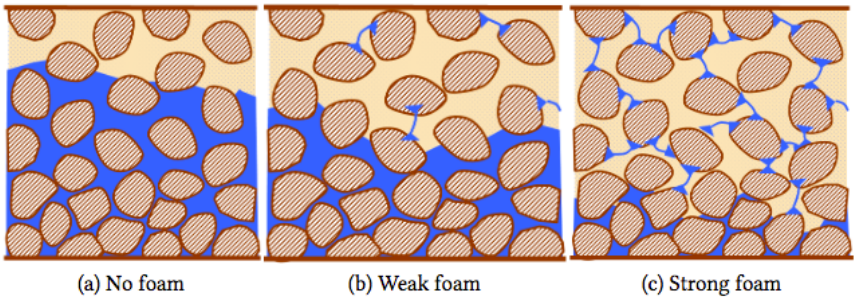

Figure 2.14 : Schéma des différents régimes de mousse en milieu poreux d'après (Afsharpoor, 2009)

un phénomène physique par un changement soudain et imprévisible conduisant à des changements drastiques.

Leur étude prouve qu'un tel comportement catastrophique des mousses dans les milieux poreux, appelé "théorie de la catastrophe en mousse" dans des études ultérieures (Afsharpoor, 2009; Afsharpoor *et al.*, 2010), existe pour un large éventail de conditions expérimentales allant du type de gaz (N_2 et CO_2), au type de tensioactif et sa concentration, ainsi qu'aux caractéristiques du milieu poreux.

Osterloh *et al.* (1992) ont constaté qu'il existe deux régimes d'écoulements de la mousse dans les milieux poreux : l'un où le gradient de pression qui en résulte est uniquement fonction de la vitesse du gaz et le second où le gradient de pression dépend uniquement de la vitesse de l'eau. Ces régimes sont respectivement appelés régimes *low quality* et *high quality*, où la qualité signifie le débit fractionnaire de gaz (f_g).

Le *high quality* régime est caractérisé par un comportement de type principalement "Newtonien" (Alvarez *et al.*, 2001) où la taille des bulles est fonction de la qualité de la mousse. Le *low quality* régime est caractérisé par un comportement *shear thinning* où la taille de bulles est égale à la taille des pores (Rossen *et al.*, 1997).

La figure 2.15 montre les contours de chute de pression en fonction de la vitesse superficielle de l'eau et du gaz. Chaque point représente une pression à l'état d'équilibre, et les contours sont dessinés en conséquence. Le *high quality* régime correspond aux contours verticaux, tandis que le *low quality* régime correspond aux contours horizontaux (Alvarez *et al.*, 2001; Osterloh *et al.*, 1992). Il est plus courant de réaliser des expériences à un débit total fixe avec une qualité de mousse variable pour définir les deux régimes de mousses (Chowdiah *et al.*, 1998; Ma *et al.*, 2013).

2.2.4.4 Les différents modes d'injections de la mousse en milieu poreux

Les modes d'injections diffèrent par la manière dont la mousse est générée. Il existe trois types d'injections :

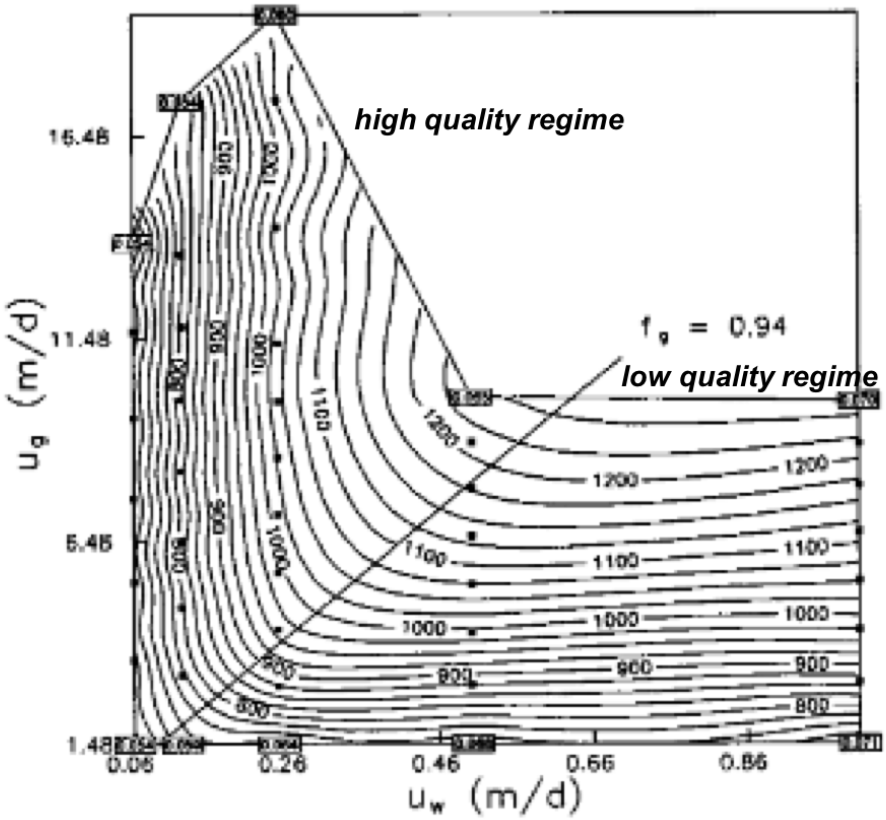

Figure 2.15 : Représentation graphique des contours de pressions (psi) en fonction de la vitesse superficielle du gaz u_g et de l'eau u_w pour une injection de mousse dans une colonne de sable d'après Osterloh *et al.* (1992)

- La pré génération de mousse : Générée en dehors du milieu poreux à l'aide d'un générateur de mousse, la mousse est ensuite directement injectée dans le milieu poreux.
- La co-injection : La mousse est générée in-situ par l'injection simultanée d'un gaz et d'une solution d'eau contenant du tensioactif. La mousse est générée proche de l'injecteur.
- Le *Surfactant Alternating Gas* ou SAG consiste en l'injection alternée d'un gaz puis de la solution de tensioactifs. La mousse est ainsi générée dans le milieu poreux la ou le gaz entre en contact avec des zones saturées en tensioactifs.

2.2.4.5 La problématique de la ségrégation gravitaire pour le balayage des aquifères

Le terme *gravity override* définit la compétition entre la force de gravité (liée à la différence de densité entre l'eau et la mousse) et le gradient de pression,

imposé pour générer un déplacement de la mousse. L'un des problèmes majeurs lors de l'injection de mousse est la ségrégation du gaz sous l'effet de la gravité qui tend à réduire le balayage global de l'aquifère. Stone *et al.* (1982) ont développé un modèle pour tenir compte des effets de ségrégation plus tard confirmé par Jenkins *et al.* (1984) dans le cas d'une injection simultanée d'air et d'eau dans un milieu poreux homogène (équation 2.21). Lorsque le gaz et l'eau sont injectés simultanément dans un réservoir, les phases se séparent en raison de la différence de densité des fluides. En plus d'une zone mélangé d'eau et de gaz, deux zones distinctes de gaz d'eau sont formées comme illustré à la figure 2.16. D'après Stone et Jenkins, les extensions des différentes zones dépendent du rapport visqueux à la gravité appelé *viscous to gravity ration* ou VGR.

$$VGR = \frac{Q_t}{g \times \Delta\rho \times k_v \times a \times \left(\frac{k_{rw}^m}{\mu_w} + \frac{k_{rg}^m}{\mu_g}\right)} \tag{2.21}$$

Avec, Q_t le débit total d'injection ($m^3.s^{-1}$), g l'accélération de la gravité ($m.s^{-1}$), $\Delta\rho$ la différence de densité entre la phase gaz et eau ($kg.m^{-3}$), k_v la perméabilité absolue verticale (m^2), a l'aire horizontale entre les puits d'injection et de production (m^2), k_{rw}^m la perméabilité relative de l'eau dans la phase de mélange, μ_w la viscosité dynamique de l'eau (kg/ms), k_{rg}^m la perméabilité relative du gaz dans la phase de mélange, μ_g la viscosité dynamique du gaz (kg/ms).

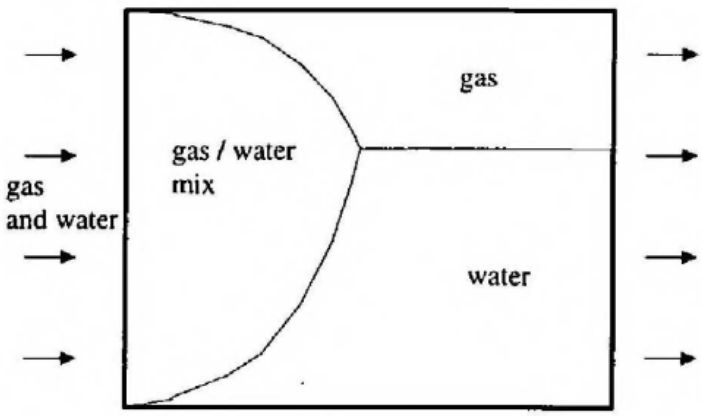

Figure 2.16 : Zones de flux des phases gaz, eau et du mélange eau/gaz, d'après Holt et Vassenden (1997)

Adapté au cas de la mousse, Holt et Vassenden (1997) ont confimé expérimentalement la théorie de Stone et Jenkins en 2D. Shi et Rossen (1998) ont traduit les équations de Stone et Jenkins dans le cas d'une injection de mousse pour un réservoir cylindrique. L'équation 2.22 (ré arrangée pour tenir compte des unités couramment utilisées dans l'industrie pétrolière) est traduite depuis dans les

modèles de mousse (Cheng *et al.*, 2000).

$$\left(\frac{r'_g}{r'_e}\right)^2 = R_{vg} = 282,4 \times \frac{Q_t \times f_w \times \mu_g}{k_v \times (r'_e)^2 \times k_{rw}(S_w^f)} \tag{2.22}$$

Avec, r'_g le rayon à partir duquel la ségrégation du gaz est complète, r'_e correspond à la distance entre deux puits, f_w le débit fractionnaire d'eau, S_w^f correspond à la saturation en eau en présence de mousse, R_{vg} le *viscous/gravity ratio.*.

Les équations de Stone et Jenkins traduites en terme d'écoulement de mousse, définissent la distance maximale atteignable par la mousse avant la ségrégation complète du gaz (correspondant au paramètre r'_g dans l'équation 2.22). Ces équations sont valables pour une couche homogène avec des limites hautes et basses étanches. De même le puits doit être totalement pénétrant.

Co-injection. Rossen *et al.* (2010) concluent que la réduction de l'intervalle d'injection (sous-entendu la réduction de la fenêtre d'injection) ne permet pas d'augmenter la distance de propagation de la mousse. Au contraire, cette configuration entraîne une baisse de l'injectivité de la mousse et donc une augmentation trop importante de la pression d'injection. Dans ce cas d'injection, l'une des voies d'amélioration est l'injection d'eau sus-jacente à l'injection de gaz dans le piézomètre. Cette configuration entraîne une augmentation de la mobilité générale directement en sortie du piézomètre (et donc une augmentation de l'injectivité), mais aussi une augmentation de la distance de propagation de la mousse d'un facteur 2 (Rossen *et al.*, 2010).

SAG. Shan *et al.* (2002) ont montré que dans le cas d'une injection de type SAG avec des *slugs* importants (eau puis air), le balayage vertical était amélioré sans pour autant affecter la pression d'injection. En effet le SAG combine à la fois une forte injectivité et une réduction de la mobilité au niveau du front de mousse. L'injectivité résulte du déplacement de l'eau dans la région de mélange des phases (proche du piézomètre d'injection) où se forme de la *weak foam*. Le balayage dépend principalement de la capacité de la mousse à réduire la mobilité du gaz au front de mousse.

2.2.5 Description des phénomènes par la modélisation

Il existe deux principaux types de modèles pour décrire le comportement de la mousse dans les milieux poreux.

Le *population balance model* (Falls *et al.*, 1988; Kam *et al.*, 2007; Kovscek et Radke, 1994) vise à modéliser toute la physique décrivant la rhéologie de la mousse. Ce type de modèles représente explicitement la dynamique de la création et de la destruction des bulles, ainsi que l'effet de la taille des bulles sur la mobilité des gaz. Ces modèles prennent en compte les mécanismes à l'échelle du pore pour décrire les phénomènes de génération et de destruction de lamelles, et la difficulté réside dans l'expression de ces deux phénomènes. Le *population balance model* est mathématiquement très complexe et nécessite l'établissement d'une équation de bilan de population. Ces équations ne tiennent pas compte des différentes échelles de temps entre la dynamique des bulles et l'avancée globale de la mousse (Boeije,

2016). Ces modèles souffrent aussi de la difficulté à obtenir des paramètres fiables représentant les phénomènes complexes à l'échelle du pore (Estrada, 2014).

Les modèles *implicit texture* n'ont pas vocation à décrire tous les phénomènes physiques de la densité et du comportement des bulles de gaz (création et destruction). A l'inverse des modèles *population balance*, les modèles *implicit texture* supposent une génération et une coalescence égale à l'état d'équilibre (régime permanent de l'injection), ce qui simplifie grandement l'équation de bilan de population. Les modèles de mousse *implicit texture* sont valables pour une augmentation abrupte de la mobilité des gaz à une pression capillaire P_c^* ou à une saturation en eau S_w^* limitantes, représentant la transition entre le *high quality regime* et *low quality regime* (Cheng *et al.*, 2000; Ma *et al.*, 2013). Les modèles *implicit texture* sont déclinés en différents simulateurs comme Shlumberger ECLIPSE et CMG STARS.

Dans le cas du simulateur STARS (Kular *et al.*, 1989), la mousse est représentée par sa capacité à réduire la mobilité du gaz et est traduite par une modification de la perméabilité relative du gaz. La perméabilité relative pour l'autre fluide n'est pas affectée et est considérée égale à la perméabilité relative dans le cas d'une modélisation d'un système multiphasique. Une fonction FM est implémentée pour contrôler la réduction de la mobilité du gaz en présence de mousse (équation (2.23)

$$k_{rg}^f = k_{rg}(S_w) \times FM \tag{2.23}$$

oú k_{rg}^f correspond à la perméabilité relative du gaz en présence de mousse, k_{rg} est la perméabilité relative du gaz sans mousse en fonction de la saturation en eau. La fonction FM est le résultat d'un produit d'autres fonctions (F1, F2,... F6), qui ont pour but de prendre en considération les différents effets physiques liés à la mousse. La fonction FM se définit par l'équation (2.24) (Cheng *et al.*, 2000) :

$$FM = \frac{1}{1 + fmmobF_1F_2F_3F_4F_5F_6} \tag{2.24}$$

Le paramètre $fmmob$ correspond à la réduction de mobilité maximale atteignable. Les fonctions F_1 à F_6 sont comprises entre 0 et 1 et peuvent donc seulement réduire la fonction FM, sous-entendu réduire encore la réduction de la mobilité du gaz. Les différentes fonctions considèrent l'effet de la concentration en tensioactifs (F_1), la saturation en huile (F_3), la vitesse du gaz (F_4), le nombre capillaire (F_5) (comportement *shear thinning*), et le nombre capillaire critique ($F6$). La fonction F_2 représente les effets de la saturation en eau (ou de la pression capillaire) sur les propriétés de la mousse et est donnée par la relation (2.25), comme le montre la figure 2.17.

$$F_2 = 0,5 + \frac{arctan(epdry(S_w - fmdry))}{\pi} \tag{2.25}$$

Ainsi, le modèle contient 3 autres paramètres ($fmmob$, $epdry$, $fmdry$). Le paramètre $fmmob$ correspond à la réduction de mobilité maximale atteignable.

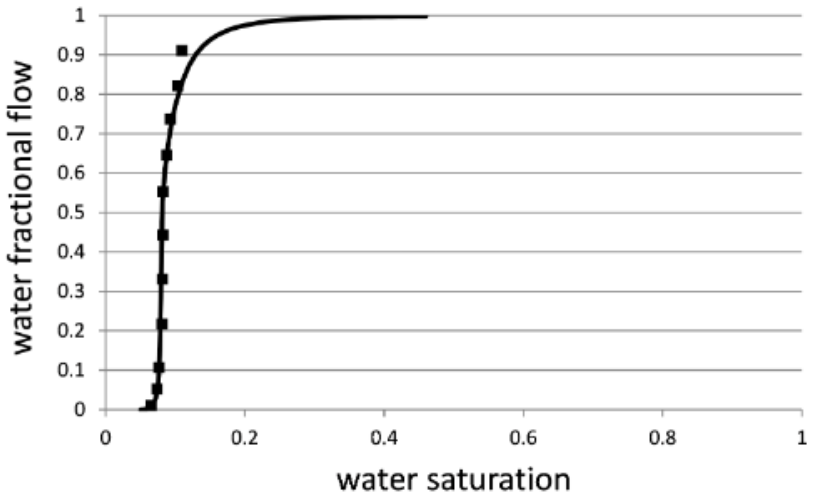

Figure 2.17 : Coubre F2 type. Modèle calé par Boeije (2016) à partir des données de Ma *et al.* (2013)

Le paramètre $fmdry$ est égal à la saturation limite S_w^* à partir de laquelle la mousse collapse. A l'état d'équilibre, la saturation finale obtenue correspond à cette valeur pour une injection de mousse donnée. Le paramètre *epdry* contrôle le changement brusque lié à la coalescence de la mousse (fonction de la saturation en eau). Les valeurs faibles correspondent à un changement graduel entre le stade *strong foam* et la coalescence complète, quand des valeurs élevées traduisent une transition nette.

Chapitre 3

Caractérisation du site d'étude

Le site d'étude a fait l'objet de plusieurs caractérisations environnementales au cours du temps (de 2000 à 2006). Au travers de ces études, plusieurs zones sources de pollution potentielles ont pu être identifiées. Basée sur les conclusions de ces premières études, une migration potentielle des polluants en dehors de la limite de propriété est suspectée. En 2008, un essai pilote de bio-remédiation in-situ a été mis en place sur deux zones. L'objectif de cet essai était d'étudier la viabilité technico-économique de différentes alternatives pour un traitement à grande échelle. Ces tests, non concluants, ont souffert d'une caractérisation du milieu insuffisante. De 2009 à 2013, un contrôle annuel des eaux souterraines a été effectué et, celui-ci, combiné à l'ajout de piézomètres, a permis de mettre en évidence une pollution aux solvants chlorés importante et mieux caractérisée.

Ce chapitre de thèse présente les caractéristiques du site, le diagnostic de la pollution à partir des données antérieures (essentiellement acquises par divers bureaux d'études dans le cadre de suivis réglementaires) et acquises pendant cette thèse. Par souci de confidentialité, la localisation du site ne sera pas révélée.

3.1 Description du site d'étude et contexte environnemental

Le site d'étude est une usine de fabrication de pièces automobiles en activité depuis novembre 1965. Plusieurs unités de productions ont été construites autour du site d'étude entre 1971 et 1983. La superficie totale du site de production est d'environ 210 ha, totalement imperméabilisée, tandis que le site d'étude s'étend sur une superficie d'environ 26 ha.

3.1.1 Situation géographique

L'usine est située sur une plaine légèrement ondulée à une altitude d'environ 705 m (équivalent m NGF). A proximité du site d'étude, deux rivières sont présentes : l'une à 3 km au Nord s'écoulant du Nord-Est vers le Sud-Ouest (rivière 1) et

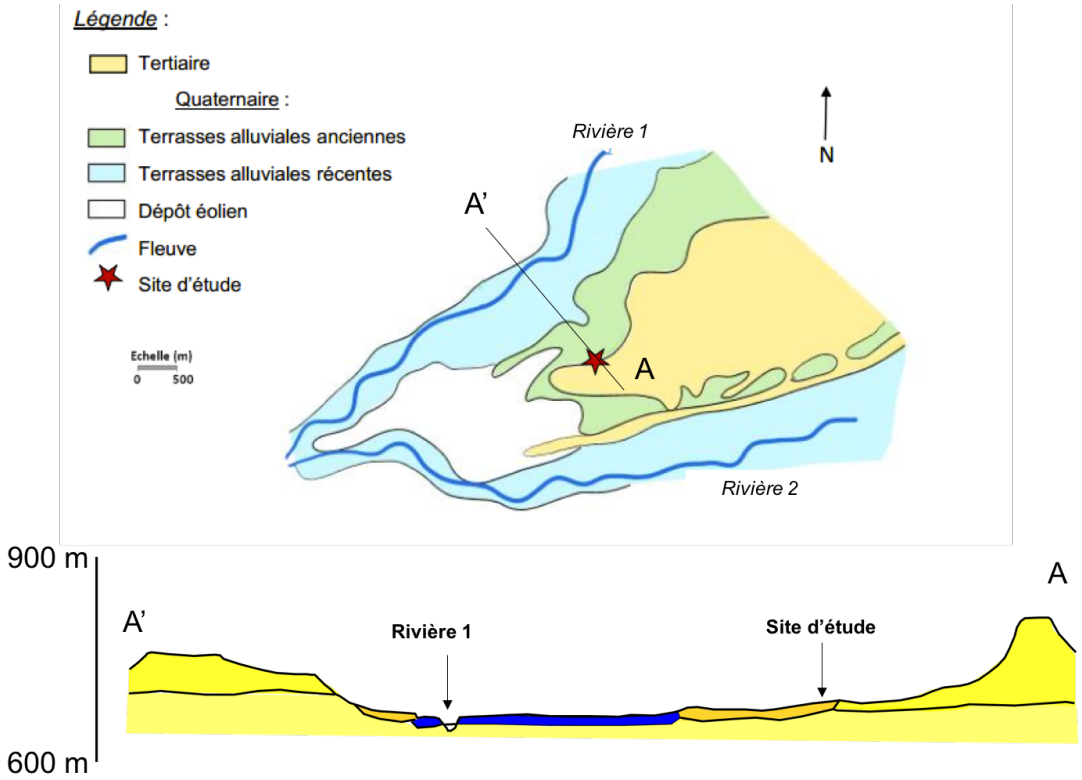

Figure 3.1 : Géologie régionale du site d'étude

une plus au Sud à 4 km s'écoulant d'Est en Ouest (rivière 2). Ces deux rivières confluent plus à l'Ouest du site (>10 km).

3.1.2 Contexte géologique

3.1.2.1 Au niveau régional

Le site est implanté au carrefour de deux grandes unités géologiques (figure 3.1). Les formations les plus anciennes sont datées du Tertiaire, correspondant principalement à des formations détritiques de type silt-sableux et à des lentilles argileuses intercalées. Ces éléments ont été déposés par la rivière 2. Il apparait que l'hétérogénéité est très marquée dans ces formations. Les formations les plus récentes sont datées du Quaternaire. Elles correspondent à des dépôts alluviaux provenant de la rivière 1 et la rivière 2, constituées de sédiments meubles détritiques : graviers, sables et quelques cailloux ayant des épaisseurs d'environ 5 à 10 mètres. Le site est construit sur les formations quaternaires. Les rivières 1 et 2 ont incisé progressivement les dépôts tertiaires donnant lieu à la formation de terrasses alluviales (anciennes et récentes) (figure 3.1).

3.1.2.2 Au niveau local

Au niveau local, la lithologie, la continuité et l'épaisseur des dépôts ont été précisées en décembre 2014 suite à une campagne de 15 sondages de reconnaissance des sols allant jusqu'à 20 m de profondeur maximum (figure 3.2). L'unité Tertiaire n'a pas été investiguée dans sa totalité car d'après la notice géologique du secteur, sa puissance maximale est de l'ordre de la centaine de mètres.

Au droit du site, une hiérarchisation est visible dans les dépôts tertiaires, avec deux bancs sableux (de -10 m à -11 m, et de -14 m à -20 m) séparés par une couche à dominante argileuse (de -11 m et -14 m). Cette configuration est repérée sur tous les sondages effectués à ce jour. A noter que les bancs sableux présentent des hétérogénéités spatiales marquées, allant de sables fins limoneux à des sables moyens. Il apparaît que la fraction limoneuse est relativement importante et variable dans ces sables. La couche argileuse séparant les deux bancs sableux est elle aussi hétérogène. Par endroits, cette couche est à dominante limono-sableuse et à d'autres à dominante argileuse compacte.

Les dépôts tertiaires sont scellés par un banc argileux d'une épaisseur de 3 à 4 mètres. Le faciès dominant correspond à des argiles compactes avec quelques nodules carbonatés. Par endroits, il apparaît que la fraction limoneuse est plus importante. Quelques passages limono-sableux ont été détectés. Dans son ensemble, cette couche semble continue en terme d'épaisseur mais relativement hétérogène localement.

L'unité Quaternaire a une épaisseur de l'ordre de 8 à 9 mètres. Il existe une certaine hétérogénéité des faciès avec un banc sableux allant de sables fins à sables moyens à grossiers avec des intercalations voire des bancs argilo-limoneux. Sur la verticale, il peut y avoir par endroits un banc sableux hétérogène mais continu surmonté par un banc argileux. Par endroit la couche argileuse sus jacente est absente.

Dans son ensemble, le système apparaît très hétérogène et donc complexe. De plus, la hiérarchisation des dépôts révèle un ensemble multicouche.

3.1.3 Contexte hydrologique

Les données fournies par la station météorologique la plus proche du site d'étude indiquent une moyenne annuelle de 447 mm d'eau précipitée sur la période 1973-2016, avec un minima en 1991 de 227 mm, et un maxima en 1997 de 810 mm. Sur une année, la hauteur précipitée moyenne maximale se situe entre octobre et décembre (entre 55 mm et 60 mm), tandis que la saison sèche est située entre juillet et août (avec en moyenne 15 mm d'eau précipitée).

D'un point de vue climatique, le bassin hydrographique correspond à un régime subméditerranéen en région centrale (là où est localisé le site), tandis que les régions plus montagneuses sont caractérisées par un régime méditerranéen.

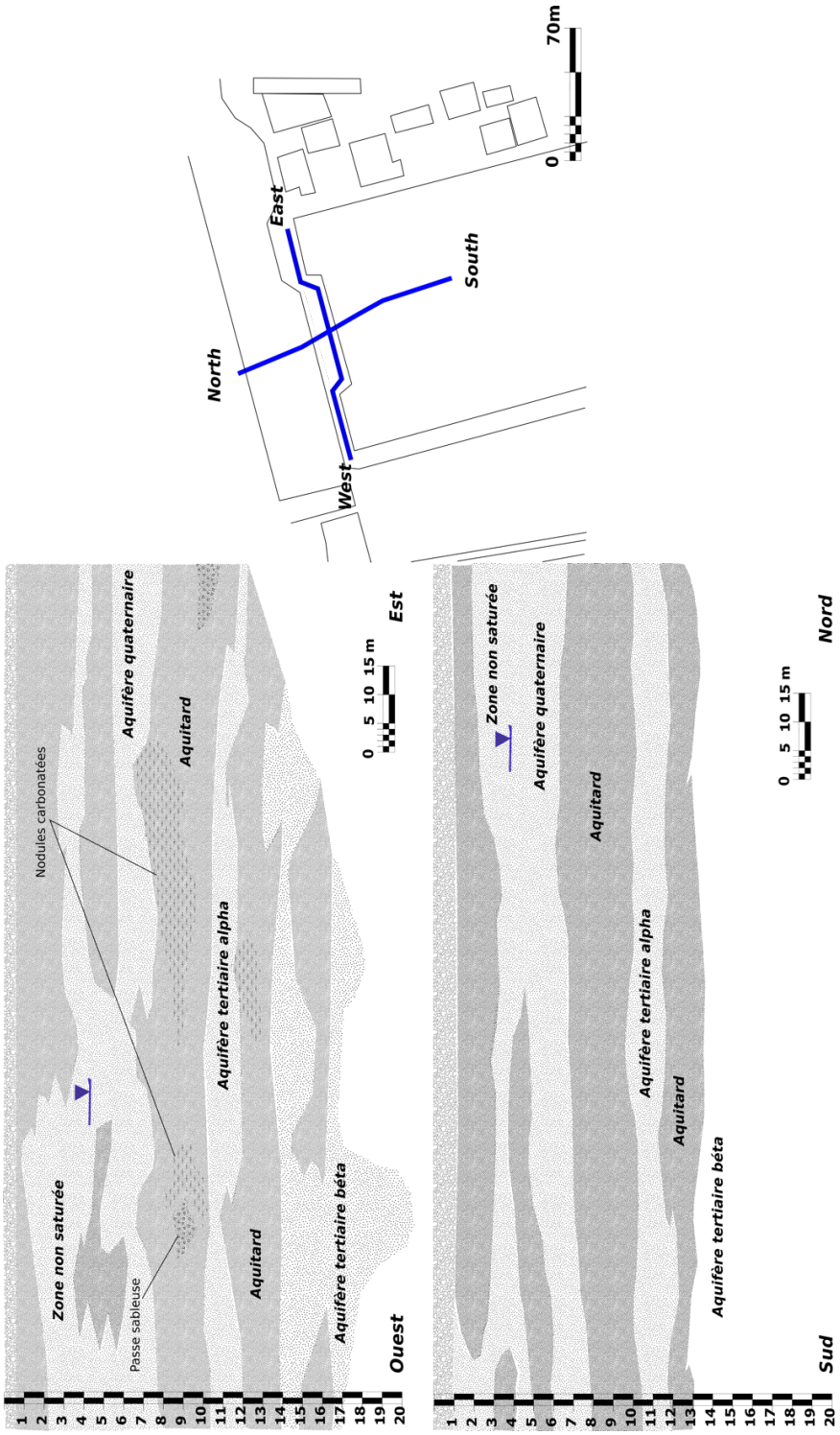

Figure 3.2 : Profils géologiques au droit du site

Le régime hydrologique est de type pluvio-nival dû à l'aire d'alimentation montagneuse de la rivière 2. Les débits augmentent de novembre-décembre jusqu'à mars-avril suite aux précipitations et aux dégels des zones montagneuses.

3.1.4 Contexte hydrogéologique

Il existe au droit du site d'étude deux entités hydrogéologiques identifiables :

1. l'aquifère des alluvions quaternaires (**Aquifère quaternaire**) : à la fois libre et captif sous le site d'étude, en fonction de la présence ou non d'un banc argileux compact sus-jacent. Celui-ci est composé d'alluvions des anciennes terrasses et de limons à dominante sableuse (de fins à grossiers) d'une puissance de l'ordre de 2 mètres (captif) à 4 mètres (libre).

2. l'aquifère des dépôts tertiaires (**Aquifère tertiaire**) : il s'agit d'une nappe captive dont les propriétés sont observées uniquement entre -11 m et -20 m de profondeur.

La nappe des alluvions quaternaires alimente la rivière 1 au nord. Son sens d'écoulement est globalement du sud vers le nord à l'échelle régionale.

La nappe des dépôts tertiaires, quant à elle, alimente à la fois la rivière 1 mais aussi la rivière 2 au sud. Les cartes hydrogéologiques du secteur font état d'un dôme piézométrique. Ainsi, la direction des écoulements souterrains dans cet aquifère peut varier en fonction de la localisation par rapport au dôme piézométrique. D'après ces cartes hydrogéologiques, il semblerait que l'écoulement général au droit du site soit orienté du sud-est vers le nord-ouest.

Dynamique au droit du site d'étude

Historiquement, le site faisait l'objet d'un suivi piézométrique pluri-annuel de 2010 à 2013 sur 12 piézomètres captant l'aquifère quaternaire, 7 piézomètres captant l'aquifère tertiaire. Depuis, le site a été équipé de nouveaux piézomètres captant l'aquifère quaternaire (8) et l'aquifère tertiaire (11) (figure 3.4). Ces travaux ont été réalisés en août 2015.

Données piézométriques

La piézométrie observée dans l'aquifère quaternaire (figure 3.3(b)) fait état d'un battement de la nappe de l'ordre de 1 m pour chaque piézomètre entre les périodes de basses et hautes eaux. Les différents relevés piézométriques montrent une altitude de la nappe phréatique entre 699,5 mNGF et 700,5 mNGF au droit du site d'étude.

La nappe tertiaire présente, quant à elle, de fortes différences de niveau piézométrique dans sa globalité (figure 3.3(c)). Sur cette même figure, les courbes représentent les piézomètres captant le premier banc sableux (appelé aquifère tertiaire alpha) présentent une amplitude de la nappe allant de 697,5 mNGF à 700 mNGF. De même la différence de charge de l'ordre de 1 m avec l'aquifère

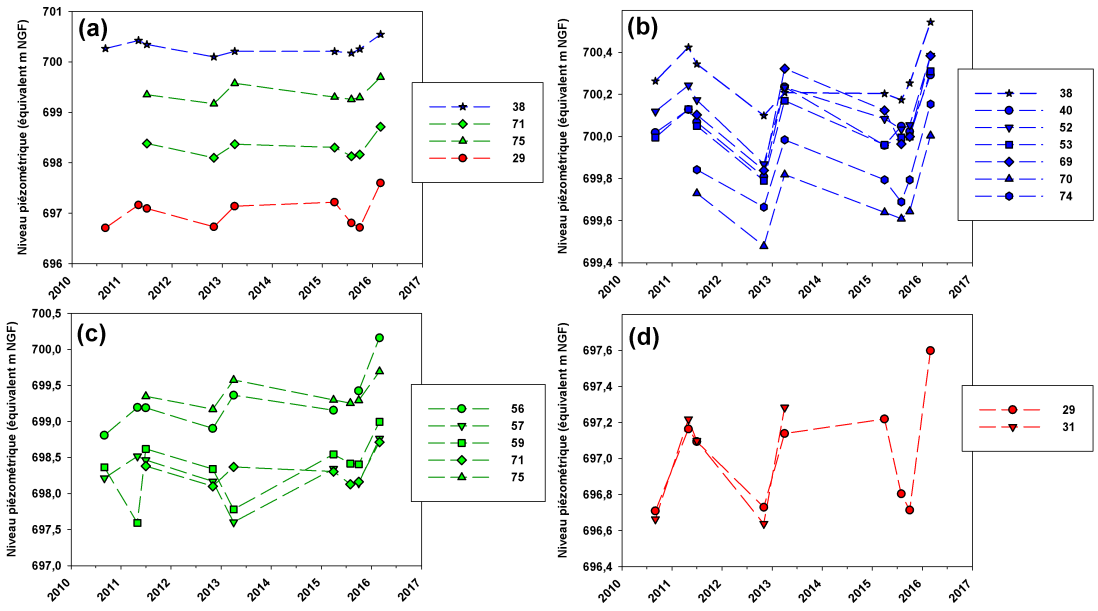

Figure 3.3 : Evolution de la piézométrie : (a) Différences de charges entre les différentes entités, (b) aquifère quaternaire, (c) aquifère tertiaire alpha, (d) aquifère tertiaire béta

quaternaire indique une potentielle drainance descendante. Peu de données sont à disposition pour caractériser la dynamique du deuxième banc sableux (appelé aquifère tertiaire bêta), néanmoins il existe une différence de charge entre la partie alpha et la partie bêta de l'ordre de 1 m, qui rend possible, là encore, une drainance verticale descendante.

Les fortes différences de charges entre toutes les entités décrites précédemment peuvent s'expliquer par la présence d'une éponte argileuse relativement étanche entre chaque nappe, rendant captives les parties sous-jacentes et suggérant des transferts d'eaux à priori relativement faibles.

La comparaison des niveaux piézométriques entre les différentes entités met en évidence une concomitance des évènements de montée et de descente des niveaux piézométriques. Ce comportement similaire traduit une même zone d'alimentation. Cette zone d'alimentation se situe au sud pour l'aquifère tertiaire qui affleure en surface dans cette zone, alors que le quaternaire affleure à la fois au sud mais aussi au nord du site. L'alimentation par la partie nord parait difficile en raison de la direction des écoulements, bien identifiée dans cet aquifère (figure 3.1). Au droit de l'usine, du fait de l'imperméabilisation, la recharge est considérée comme nulle.

Sens d'écoulement

Au niveau des écoulements souterrains, la nappe quaternaire est essentiellement drainée au nord par la rivière, imposant un sens d'écoulement globalement du sud vers le nord (figure 3.5) au droit du site. La distribution spatiale des isopièzes met en évidence le caractère fortement hétérogène du champ de conduc-

Figure 3.4 : Localisation des différents sondages de reconnaissances (en haut) et des piézomètres (en bas) captant l'aquifère quaternaire (bleu), l'aquifère tertiaire alpha (vert) et l'aquifère tertiaire bêta (rouge)

tivité hydraulique. En effet, on observe à la fois une zone de faible conductivité hydraulique, traduite par un resserrement des isopièzes (autour des piézomètres 38, 114, 116 et 118), tandis que plus en aval hydraulique (à l'Est des piézomètres 40 et 67), les isopièzes sont bien plus espacés traduisant une zone de plus forte conductivité hydraulique.

L'établissement des cartes piézométriques pour l'aquifère tertiaire alpha est rendu très difficile du fait des fortes différences de charges entre les piézomètres (figure 3.5). Le sens d'écoulement ne peut être connu par la simple interpolation des mesures de charges hydrauliques. En se réfèrant uniquement aux valeurs de charges hydrauliques, les potentiels les plus élevés sont situés au nord du site et les potentiels les plus faibles au sud du site. Ceci semble donc être en contradiction avec l'écoulement régional orienté dans le sens opposé de celui indiqué par les valeurs de charges au droit du site d'étude.

Vitesses d'écoulements

Pour définir la vitesse d'écoulement de la nappe de l'aquifère quaternaire, un essai de traçage a été effectué à partir d'une eau avec une conductivité de 450 μS/cm, et injectée dans le piézomètre 38 (conductivité à 1700 μS/cm). Cet essai n'a donné aucun résultat exploitable.

Grâce à l'outil *Passive Flux Meter* (PFM) (Hatfield *et al.*, 2004) la vitesse d'écoulement de la nappe a pu être localement estimée entre 5 et 15 cm/jour (au droit des piézomètres 117 et 118). Cette indication reste néanmoins locale, et compte tenu de l'hétérogénéité suspectée, ne peut être utilisée pour moyenner la vitesse d'écoulement globale dans l'aquifère quaternaire.

Aucun test n'a été effectué pour l'aquifère tertiaire.

Champ de conductivité hydraulique

Au droit du site d'étude, les différents sondages ont mis en lumière la forte hétérogénéité des sédiments et donc potentiellement une forte hétérogénéité au niveau des propriétés hydrauliques. Deux tests principaux ont été effectués pour définir la conductivité hydraulique.

L'essai *slug test* consiste à appliquer un changement brutal du niveau piézométrique soit de manière mécanique (ajout d'un volume d'eau, ou en immergeant un objet ayant un volume connu), soit de manière pneumatique. Le suivi de la remontée ou de la redescente du niveau piézométrique jusqu'au niveau initial peut ensuite être utilisé pour calculer la conductivité hydraulique (Bouwer, 1989; Bouwer et Rice, 1976; Hvorslev, 1951; Papadopulos *et al.*, 1973).

L'essai de pompage consiste à pomper dans un puits à un débit connu et à suivre le rabattement occasionné par cette sollicitation au puits et sur un ou plusieurs puits d'observations. L'analyse du régime transitoire et l'application des équations de Theis ou Cooper-Jacob permettent de calculer la conductivité hydraulique (au puits de pompage et au piézomètre d'observation) et le coefficient de stockage (au piézomètre d'observation) (Cooper et Jacob, 1946; Theis, 1935).

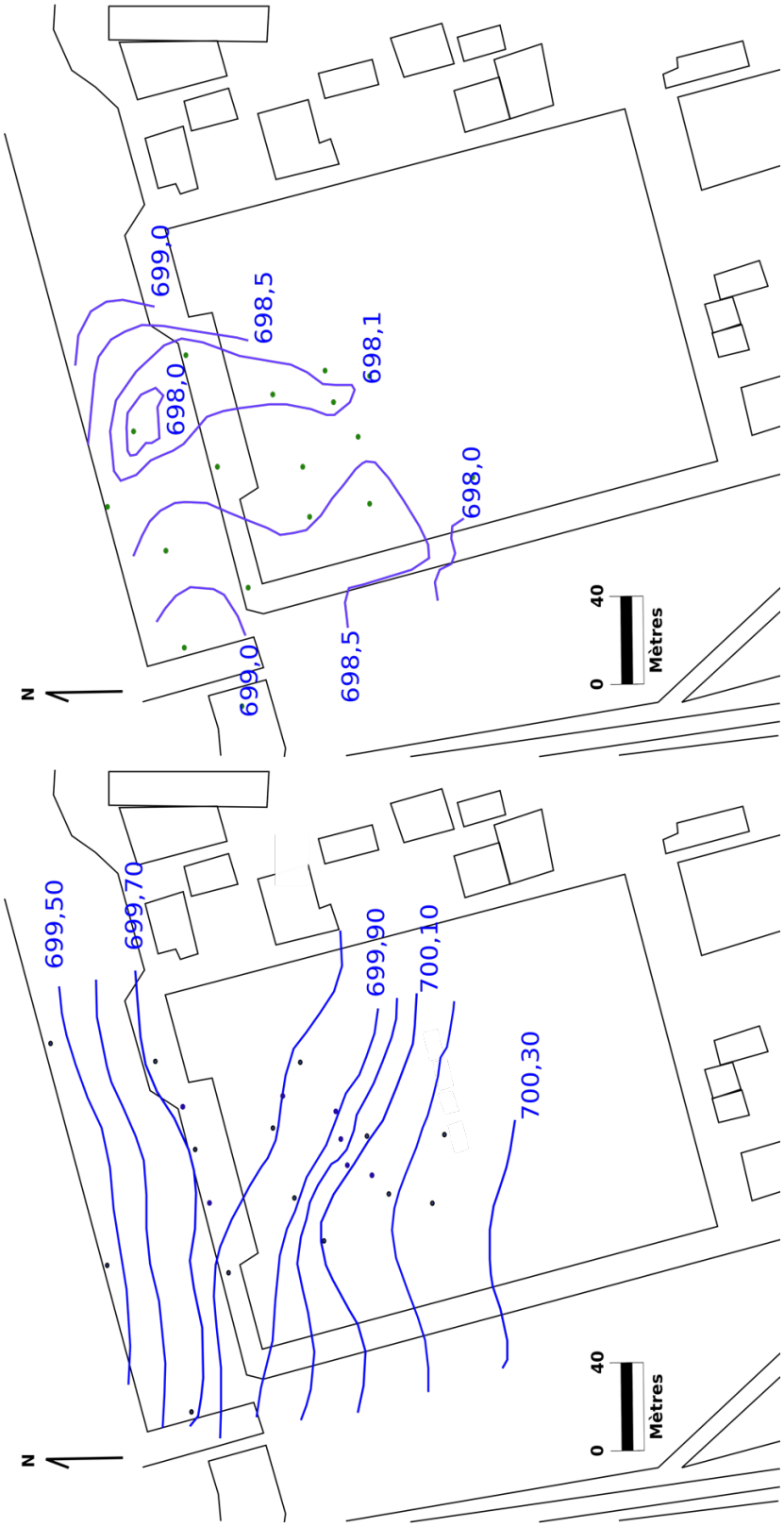

Figure 3.5 : Carte piézométrique de l'aquifère quaternaire (en bas) et de l'aquifère tertiaire alpha (en haut)

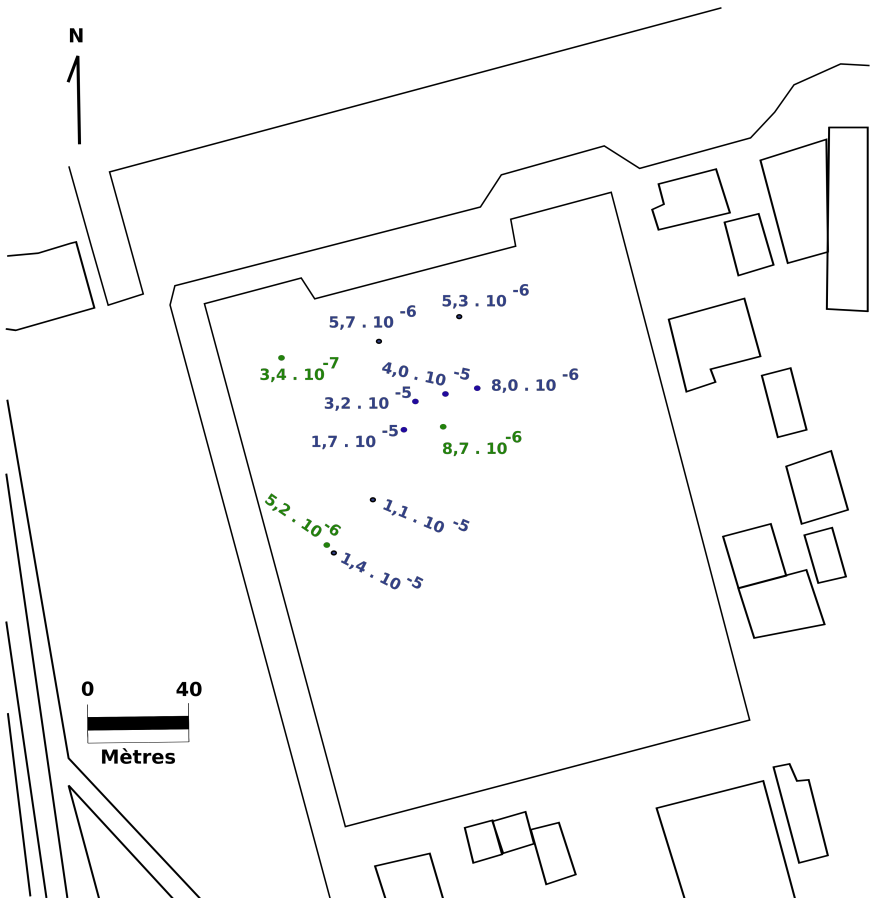

Figure 3.6 : Champ de conductivité hydraulique mesuré (m.s^{-1}) (vert) aquifère tertiaire alpha, (bleu) aquifère quaternaire

Tableau 3.1 : Valeur de conductivité hydraulique mesurée sur site (m.s^{-1})

Aquifère Quaternaire			**Aquifère Tertiaire alpha**	
Piézomètre	**Slug test**	**Essai de pompage**	**Piézomètre**	**Slug test**
37	$1{,}4 \times 10^{-5}$	-	56	$5{,}2 \times 10^{-7}$
52	$5{,}7 \times 10^{-6}$	-	57	$8{,}7 \times 10^{-6}$
53	$5{,}3 \times 10^{-6}$	-	59	$3{,}4 \times 10^{-6}$
55	$1{,}1 \times 10^{-5}$	-		
109	$4{,}1 \times 10^{-5}$	-		
114	-	$1{,}7 \times 10^{-5}$		
116	-	$3{,}2 \times 10^{-5}$		
117	-	$8{,}0 \times 10^{-6}$		
118	-	$4{,}0 \times 10^{-5}$		

L'aquifère quaternaire présente des conductivités hydrauliques de l'ordre de 10^{-6} à 4×10^{-5} m.s^{-1} d'après les essais de *slug test* et de pompage. Les essais réalisés mettent en avant l'hétérogénéité du champ de conductivité hydraulique avec des variations d'un ordre de grandeur sur de faibles distances (par exemple entre les piézomètres 118 et 52, distants d'environ 35 mètres) (figure 3.6).

Peu de tests ont été réalisés pour l'aquifère tertiaire alpha. Néanmoins, la conductivité hydraulique semble plus faible que celle de l'aquifère quaternaire avec là aussi des variations d'un ordre de grandeur.

Ces champs de conductivités hydrauliques très hétérogènes sont la conséquence du système de dépôt des sédiments pendant le tertiaire puis le quaternaire.

3.2 Caractérisation de la pollution

3.2.1 Origine(s) et source(s) de pollution

3.2.1.1 Localisation des zones sources de pollution

Le site fait l'objet de plusieurs types de pollution (principalement aux solvants chlorés et aux HCT, HAP et BTEX). La pollution la plus importante provient d'une zone source identifiée (principalement du TCE) relarguant des solvants chlorés sous forme dissoute dans les eaux souterraines. La limite de propriété semble être atteinte par le panache de composés dissous.

Historiquement, le site de production a utilisé de grandes quantités de TCE liée à l'activité de dégraissage des pièces métalliques. D'après les plans et docu-

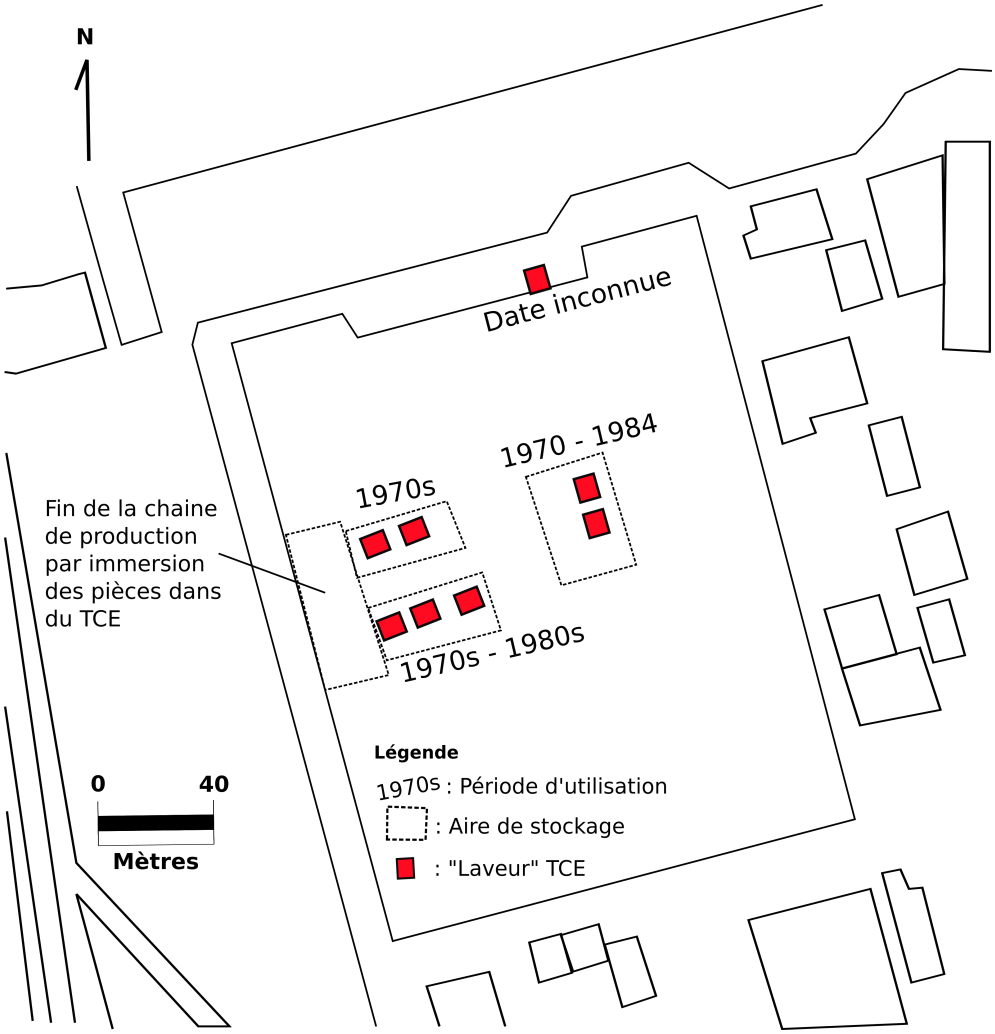

Figure 3.7 : Localisation des zones d'utilisation et de stockages du TCE

ments internes, il existait plusieurs zones de stockages et d'utilisation du TCE. La figure 3.7 présente la localisation des usages du TCE et les périodes d'utilisations.

La première étude environnementale effectuée sur le site remonte à l'année 2000. Cette étude recensait principalement les activités potentiellement polluantes. Au regard des conclusions de cette étude, un effort de compréhension du milieu naturel a été entrepris de 2000 à 2006, notamment par la caractérisation hydrogéologique du site et de la qualité des nappes sous-jacentes. Ces études ont mis en évidence la migration de solvants chlorés à l'extérieur du site, conduisant à un risque sanitaire non acceptable, sans pour autant détecter de source permettant une telle migration. De 2008 à 2009, un essai pilote de bio-remédiation *in-situ* a été mis en place sur deux zones. Ces pilotes placés au Nord-Ouest et au Sud-Ouest du site se basant sur une relative faible connaissance du système (réseau de piézomètres relativement faible et construit en dehors des zones potentielles

de pollution) ne furent que peu concluants. Il a été conclu que les paramètres physico-chimiques et hydrauliques des eaux souterraines n'étaient pas favorables à ce type de traitement. De plus, il a été supposé la présence de sources de pollution non identifiées alimentant en continu un panache de contamination des eaux souterraines.

En 2010, une campagne de réalisation de piézomètres, d'analyses de sols et des eaux souterraines a mis en évidence la présence d'une contamination importante principalement dans les eaux souterraines. Au droit du piézomètre 38, la concentration en TCE était égale à 23 mg/kg MS dans les sols et à 300 000 μg/L dans les eaux souterraines. Les données historiques ne font mention d'aucune fuite au niveau des "laveurs" ou au niveau des zones de stockage des produits. Néanmoins, les quantités analysées dans les sols et eaux souterraines suggèrent une ou des fuites diffuses dans le temps.

Il existe peu de données sur la zone source, ce qui est en partie expliqué par sa faible accessibilité. En effet, la zone identifiée est au coeur des lignes de productions et les contraintes liées à l'activité rendent les investigations très complexes. Les travaux d'excavation ne sont dans cette configuration aucunement envisageables. De même, les mesures relativement locales n'ont pas permis d'élucider la présence ou non d'une phase organique coulante ni d'approximer les quantités de solvants chlorés au droit de cette zone.

3.2.1.2 Sondages de reconnaissance des sols et analyses associées

En décembre 2014, une campagne de 15 sondages de sols a été effectuée pour préciser la géologie. Cinq de ces sondages, implantés proches de la zone source, ont permis la collecte d'échantillons de sols. Aucune phase organique n'a été détectée dans les sols ni même de traces de solvants chlorés (maximum mesuré à 309 μg/L d'eau porale). Ainsi, au regard de ces résultats, les premières hypothèses de ces essais s'orientent vers une source de faible envergure et très localisée.

3.2.2 Panache de composés dissous

Au regard des données historiques en présence, il a été jugé nécessaire d'obtenir un plus grand nombre de données et d'avoir une représentation spatiale plus étendue de la contamination.

En premier lieu, une campagne menée par l'ENSEGID en avril 2015 a permis d'obtenir une vision globale et actualisée de la pollution dissoute. Des travaux de modélisation, associés à cette thèse, ont été réalisés afin de guider l'implantation de nouveaux piézomètres dans les zones d'incertitudes.

En août 2015, 19 piézomètres supplémentaires ont été installés : 8 pour l'aquifère quaternaire et 11 pour l'aquifère tertiaire alpha. L'objectif pour l'aquifère quaternaire était de disposer d'un réseau suffisant pour contraindre les premières hypothèses formulées à partir des résultats de la campagne d'avril 2015. Pour l'aquifère tertiaire, au vu du faible nombre de piézomètres, il était nécessaire de définir le sens des écoulements, de caractériser les possibles liens et transferts

entre les deux aquifères et de localiser le panache de pollution. En suivant, 3 campagnes de collecte et d'analyse des eaux souterraines (août et octobre 2015, et mars 2016) ont permis de préciser le comportement de la pollution dissoute. Les programmes d'analyses des échantillons d'eaux sont présentés en Annexe.

3.2.2.1 Analyse par transect

Aquifère quaternaire

Source. Les concentrations molaires sont maximales au droit du piézomètre 38 (5750 μM/L au maximum en avril 2015). Les concentrations fluctuent dans le temps avec des écarts de concentrations supérieurs à un ordre de grandeur et une moyenne avoisinant les 1500 μM/L (figure 3.8).

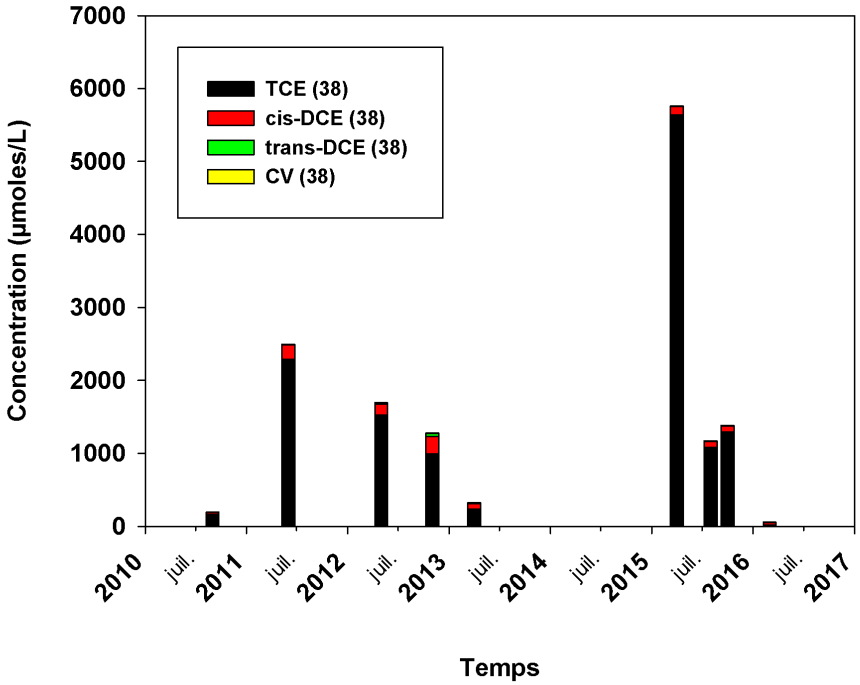

Figure 3.8 : Evolution des concentrations molaires en solvants chlorés proche de la source (piézomètre 38)

En termes de proportion, le composé majoritaire est le TCE présent entre 33% et 98% . On note la présence de produit de dégradation avec en majorité du cis-DCE présent entre 2% et 60% (le 60% c'est pour la campagne de mars 2016, mais comme les valeurs sont faibles en effet on le voit pas sur le graphique). Le CV est présent à 0%-7% de la somme molaire totale, avec des concentrations très élevées (entre 0,8 et 10,3 μM/L). La proportion de chaque solvant chloré semble être stabilisée dans le temps (excepté pour la campagne de mars 2016, ou le cis-DCE est le composé majoritaire). Les concentrations significatives en TCE

(allant jusqu'à 30% de la solubilité) indiquent la proximité immédiate avec la zone source contenant une phase pure. La détection de tous ces solvants chlorés indique que la déchloration réductrice est effective au niveau de la zone source, au moins aux abords de celle-ci. Cette source semble stabilisée et donc susceptible de relarguer des composés encore sur une ou plusieurs décennies dans l'aquifère supérieur. **L'hypothèse principale est que la source se situe dans l'aire immédiate du piézomètre 38, en amont hydraulique (quelques mètres seulement). La localisation précise, ni même son étendue, ne peuvent être déterminées dans l'état actuel des connaissances. Néanmoins, la faible occurrence des solvants chlorés dans les sols indique une zone source de relative faible extension.**

Ligne des piézomètres 114, 116, 118, 117 (Transect 1). Ce transect est situé directement en aval hydraulique de la zone source. La figure 3.9 présente la distribution spatiale des solvants chlorés suivant ce transect.

Un gradient important de concentration important est visible du piézomètre 114 (le plus à l'ouest) au piézomètre 117 (le plus à l'est). En termes de répartition des parts de solvants chlorés, le piézomètre 117 présente une majorité de TCE (de 52% à 73%) et une minorité de cis-DCE (de 26% à 42%). Cette répartition semble similaire à la répartition des solvants chlorés au droit de la zone source. Les piézomètres 116 et 118 présentent une majorité de composés dégradés, principalement du CV (116) et cis-DCE (118). Il apparaît ainsi que les bords du panache subissent une dégradation. **L'hypothèse principale est que le centre du panache passe à proximité du piézomètre 117. Par rapport à sa localisation, il apparaît que le panache est fortement dévié vers l'Est au sortir de la zone source. Par ailleurs, le gradient de concentration observé confirme l'hypothèse d'une zone source de faible extension.**

Ligne des piézomètres 54, 52, 110, 53, 112, 40 (Transect 2). Excepté pour les campagnes de juin 2011 et mai 2012 (pour le piézomètre 53), on observe globalement une atténuation importante de la concentration de solvants chlorés entre le transect 1 et le transect 2 (figure 3.10). Les piézomètres 54, 52 et 110 ont une composition relativement similaire avec des concentrations molaires faibles (inférieure à 10 μM/L) en comparaison avec le reste du transect.

Les concentrations molaires les plus élevées sont mesurées au niveau du piézomètre 53 (de 33,8 μM/L à 485,8 μM/L). Deux phases sont notables dans l'évolution globale des teneurs. La première, de septembre 2010 à juin 2011 est caractérisée par une augmentation de la concentration en solvants chlorés (SC). Dans cette période, la part du cis-DCE passe de 59% à 98%. La deuxième période, de juin 2011 à mars 2016, est caractérisée par une baisse générale de la somme totale des solvants chlorés. Cette baisse est accompagnée par l'augmentation de la part du CV jusqu'à atteindre 68% de la part totale des solvants chlorés (avril 2013).

Au droit du piézomètre 40, les teneurs mesurées sont nettement plus faibles (entre 7,7 et 25,7 μM/L) que pour le piézomètre 53. Excepté quelques dates, les concentrations totales en SC sont assez constantes dans le temps. Le pourcentage

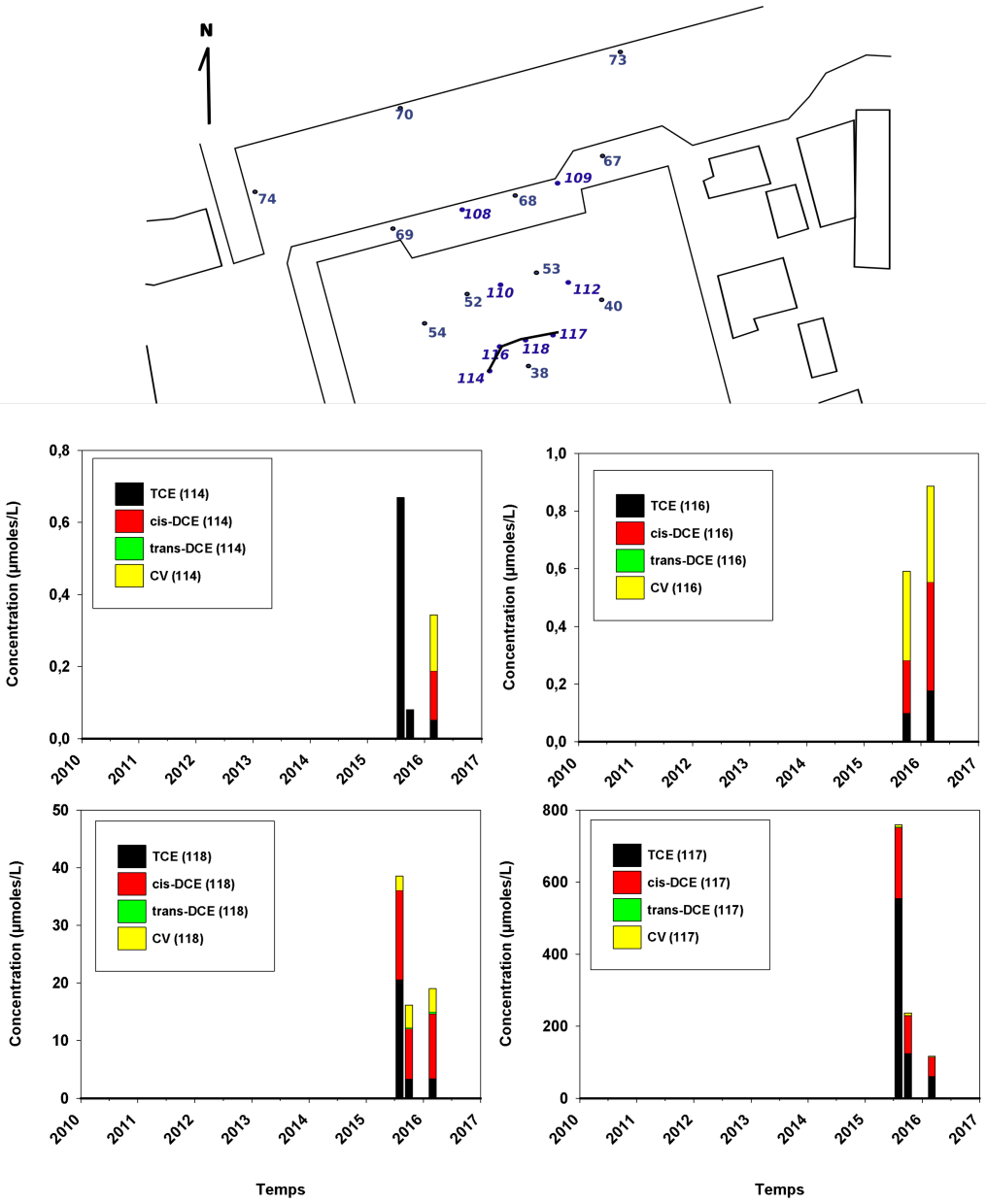

Figure 3.9 : Evolution des concentrations molaires (μM/L) en solvants chlorés suivant le transect 1

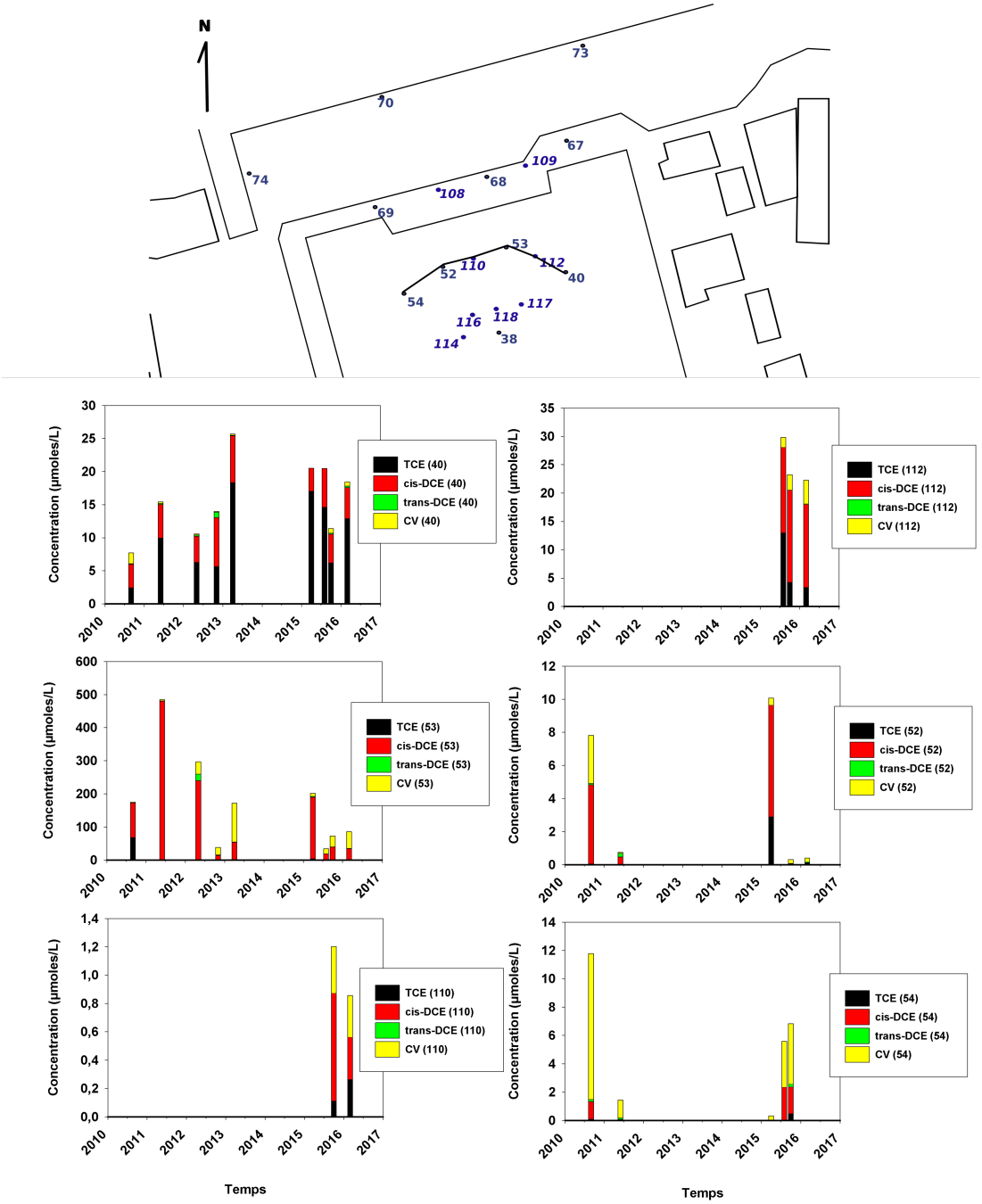

Figure 3.10 : Evolution des concentrations molaires (μM/L) en solvants chlorés suivant le transect 2

molaire de chaque composé démontre une certaine stabilité au niveau du ratio entre les différents SC. Les composés majoritaires sont le TCE (qui varient entre 32% et 83% de la concentration totale, avec un maximum mesuré en avril 2013 à 18,6 μM/L) et le cis-DCE (qui varient entre 17% et 53% de la concentration totale). La composition de l'eau du piézomètre 40 est similaire à celle du piézomètre 117. En comparaison avec le piézomètre 53, il semble que l'activité de dégradation des SC soit moins importante dans la zone du piézomètre 40. Cette différence peut s'expliquer par la présence d'huile observée dans les puits 52, 110 et 53, favorisant le passage en condition anaérobie.

Le piézomètre 112 semble marquer une zone de transition entre la zone dégradée identifiée au droit du piézomètre 53 et la zone non dégradée proche du piézomètre 40. Bien que le cis-DCE soit le composé majoritaire (entre 50% et 70%) dans cette zone, le TCE est présent en une part non négligeable (entre 15% et 44%).

Plusieurs hypothèses émanent de l'analyse de ce transect. Il apparait que le panache provenant du piézomètre 117, s'étale ou se divise en deux avec une partie qui se dégrade proche de la zone impactée par les huiles (zone du piézomètre 53) et une seconde partie non dégradée (zone du piézomètre 40). Par ailleurs, au regard des valeurs de concentration molaire, il semble que le panache principal soit encadré par les piézomètres 53, 112 et 40 avec une proximité du centre du panache au niveau du piézomètre 53. Il semble également y avoir une forte atténuation des concentrations au niveau de ce transect par rapport au transect 1. De même, on observe un gradient de concentration très élevé entre le piézomètre 53 et le piézomètre 110 qui peut être lié à une faible dispersivité.

Ligne des piézomètres 67, 109, 68, 108, 69 (Transect 3). La figure 3.11 présente les chroniques des concentrations molaires le long du transect 3.

Sur ce transect, les piézomètres 67 et 109 peuvent être groupés car ils présentent les mêmes concentrations molaires et la même distribution de solvants chlorés (majorité de cis-DCE) que le piézomètre 112 (amont hydraulique). Le piézomètre 68 présente une anomalie au niveau de la part des solvants chlorés avec une majorité de TCE (de 55% à 93%). En effet, ce piézomètre est en aval hydraulique du piézomètre 53 (d'après la carte piézométrique) qui enregistre des maximums en composés dégradés. Ainsi, il n'est pas possible que le piézomètre 53 "alimente" le piézomètre 68. Au regard de la position des anciens laveurs TCE (figure 3.7), il est probable qu'une source secondaire soit responsable de cette distribution. Par ailleurs, cette source secondaire doit avoir une faible extension au regard des valeurs de concentrations molaires.

Le piézomètre 108 enregistre de fortes variations au niveau de la concentration molaire (de 2,5 à 60,4 μM/L). La distribution des solvants chlorés (33-70% en cis-DCE et 10-49% en CV) est similaire à la signature des piézomètres présents en amont avec une majorité de composés dégradés (53, 110, 52).

L'analyse de la répartition des solvants chlorés par piézomètre per-

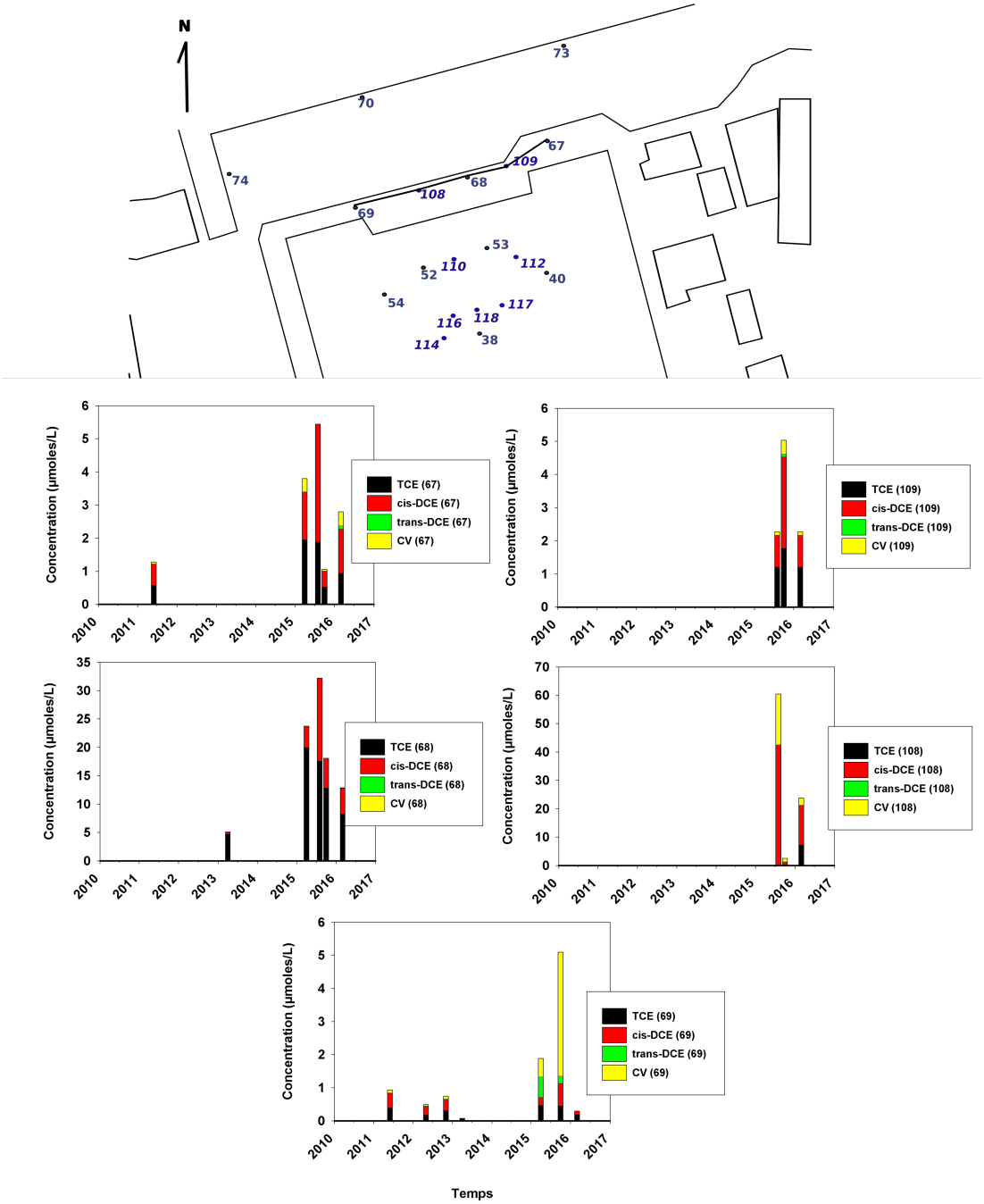

Figure 3.11 : Evolution des concentrations molaires (μM/L) en solvants chlorés suivant le transect 3

met d'identifier une anomalie couplée à la localisation d'un ancien laveur à TCE qui semble constituer une source secondaire de faible dimension.

Ligne des piézomètres 73, 70, 74 (Transect 4). Peu de données sont disponibles pour le piézomètre 73. Néanmoins, la part du TCE est très majoritaire (91-100 %) avec une très légère fraction en cis-DCE (0-9%). Plus en amont hydraulique, seul le piézomètre 40 dispose de la même répartition. Le panache de composés non dégradés semble avoir atteint le piézomètre 73.

Le piézomètre 70 présente une inversion de la répartition molaire à partir de la campagne d'août 2015. Précédemment, le cis-DCE et trans-DCE étaient majoritaires (72-81%) avec le CV (15-26%). A partir des campagnes d'août 2015 et octobre 2015, 100% de TCE est mesuré dans le piézomètre 70, suggérant que les eaux, à cette période, ne peuvent provenir du piézomètre 53, mais plutôt de la partie du panache qui alimente le 73.

Aquifère tertiaire alpha

Piézomètre 57. Le piézomètre 57 capte l'aquifère tertiaire alpha directement sous la zone source localisée dans l'aquifère quaternaire. Les teneurs molaires enregistrées au cours du temps sont variables entre 26 μM/L et 177 μM/L avec un pic à 785 μM/L enregistré en novembre 2012 (figure 3.13). Le suivi permet de mettre en évidence une inversion brusque du ratio entre la concentration en TCE et cis-DCE ($\geq$ 90%) à partir d'avril 2015. Avant cette date, le TCE était globalement majoritaire (41-95 %) et le cis-DCE minoritaire (0-51%).

Distribution spatiale dans l'aquifère tertiaire alpha. Hormis les piézomètres 75, 119 et 120 (campagne de mars 2017), tous les piézomètres de l'aquifère tertiaire alpha présentent la même composition en solvants chlorés (figures 3.14 et 3.15). En effet, le composé majoritaire est le TCE (supérieur à 50%). Les conditions géochimiques de l'aquifère semblent permettre la dégradation d'une partie du TCE en cis-DCE mais pas celle du cis-DCE en CV (contrairement à l'aquifère quaternaire). Par ailleurs, on remarque que la concentration est relativement homogène dans l'espace. Par exemple, les piézomètres 121 et 71, pourtant distants d'environ 135 m, ne présentent qu'une différence de concentration d'un facteur 2. Ce même facteur 2 se retrouve d'Est en Ouest au niveau des piézomètres 106 (entre 32 et 90 μM/L) et 59 (entre 10 et 41 μM/L). Ces deux exemples montrent l'homogénéité des concentrations molaires dans l'espace.

Au regard de la distribution spatiale de la concentration molaire, il apparaît que le panache de polluants est beaucoup plus large que dans l'aquifère quaternaire. De même, les valeurs de concentrations sont bien supérieures à celles enregistrées dans l'entité sus-jacente (exception faite pour le piézomètre 38 et 117). Par ailleurs, l'inversement du ratio entre le TCE et le cis-DCE, observé au piézomètre 57, n'est pas enregistré dans les autres piézomètres de l'aquifère tertiaire alpha. De ce constat apparait que les eaux du piézomètre 57 ne peuvent alimen-

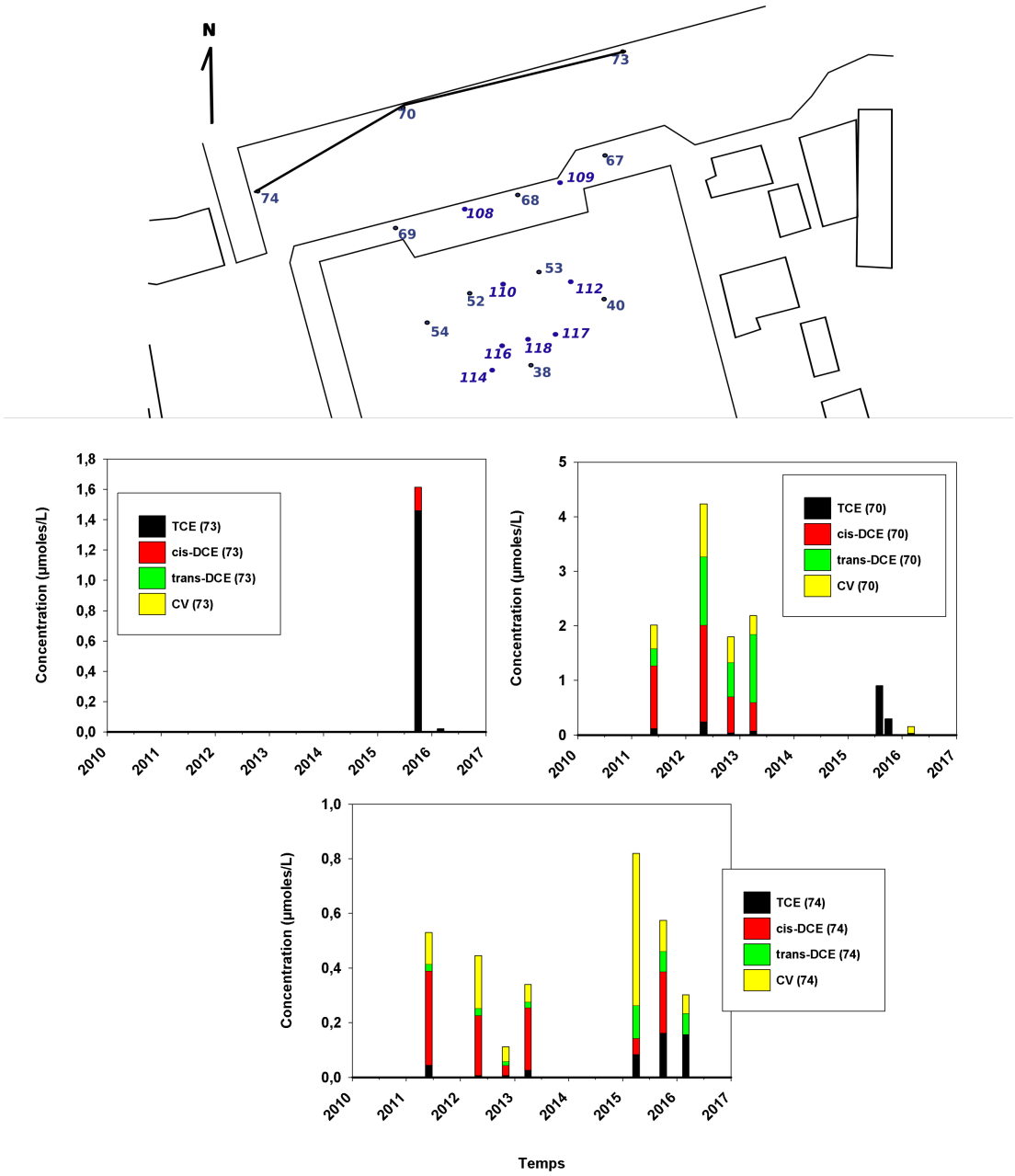

Figure 3.12 : Evolution des concentrations molaires (μM/L) en solvants chlorés suivant le transect 4

ter les zones décrites par les autres piézomètres de l'aquifère. Il existe donc deux possibilités pour expliquer ce phénomène : l'existence d'une autre source présente dans l'aquifère tertiaire, ou bien une alimentation en TCE provenant de l'aquifère quaternaire via une infiltration pà travers l'éponte.

Le piézomètre 75. Le piézomètre 75 se distingue du reste des piézomètres

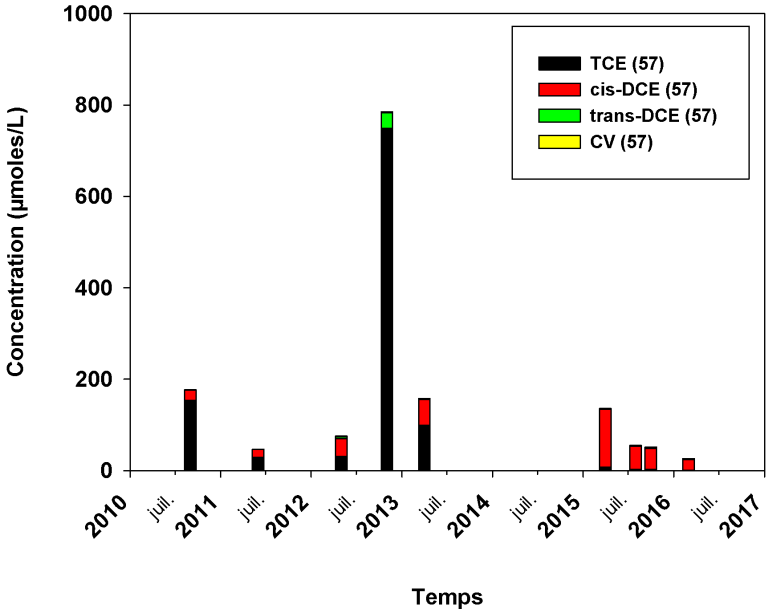

Figure 3.13 : Evolution des concentrations molaires (μM/L) en solvants chlorés au droit du piézomètre 57

par sa part majoritaire de cis-DCE (entre 28 et 63%) et par la présence de CV (entre 1 et 34%) (figure 3.16). Il est intéressant de constater que sa composition ressemble fortement à celle du piézomètre 74, captant l'aquifère quaternaire et proche du piézomètre 75, avec une majorité en cis-DCE (entre 7 et 65%) et en CV (entre 19 et 66%).

De ce constat ressurgit la potentielle infiltration des eaux de l'aquifère quaternaire vers l'aquifère tertiaire, au droit de zones localisées.

3.2.3 Confrontation des écoulements à l'analyse des ions majeurs

Afin d'améliorer la compréhension du système, un partenariat avec l'Université d'Aix-Marseille a été mis en place pour compléter les connaissances. Les mesures de concentrations en ions majeurs à partir d'échantillons d'eaux souterraines (mars 2016) ont permis de préciser les écoulements globaux et de comprendre les échanges entre les différentes entités aquifères.

Les diagrammes de Piper et de Stiff

Différentes représentations ont été utilisées pour illustrer ces résultats comme le diagramme de Piper (figure 3.17) et les diagrammes de Stiff (figures 3.19 ;

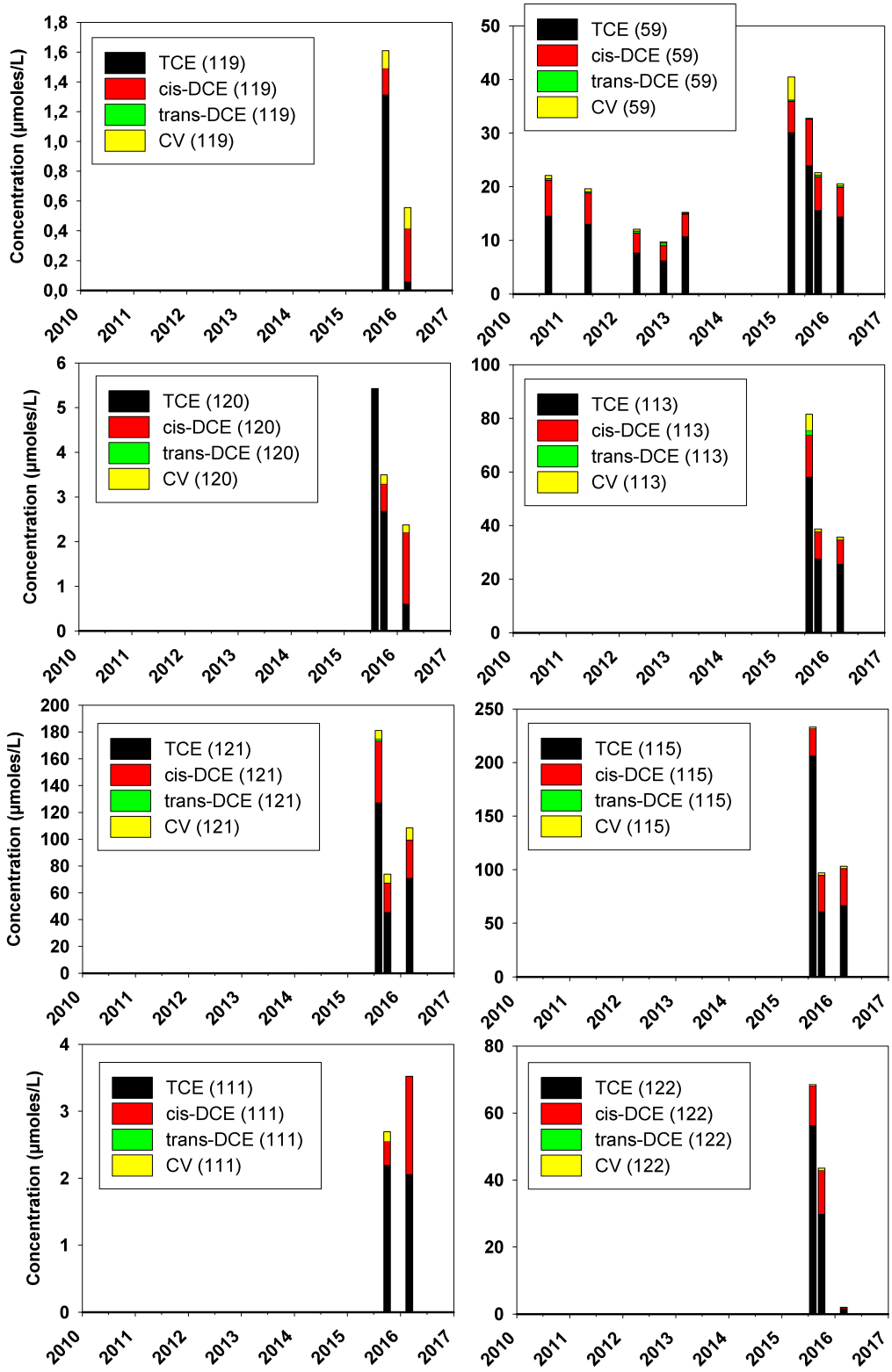

Figure 3.14 : Evolution des concentrations molaires (μM/L) en solvants chlorés dans l'aquifère tertiaire (1)

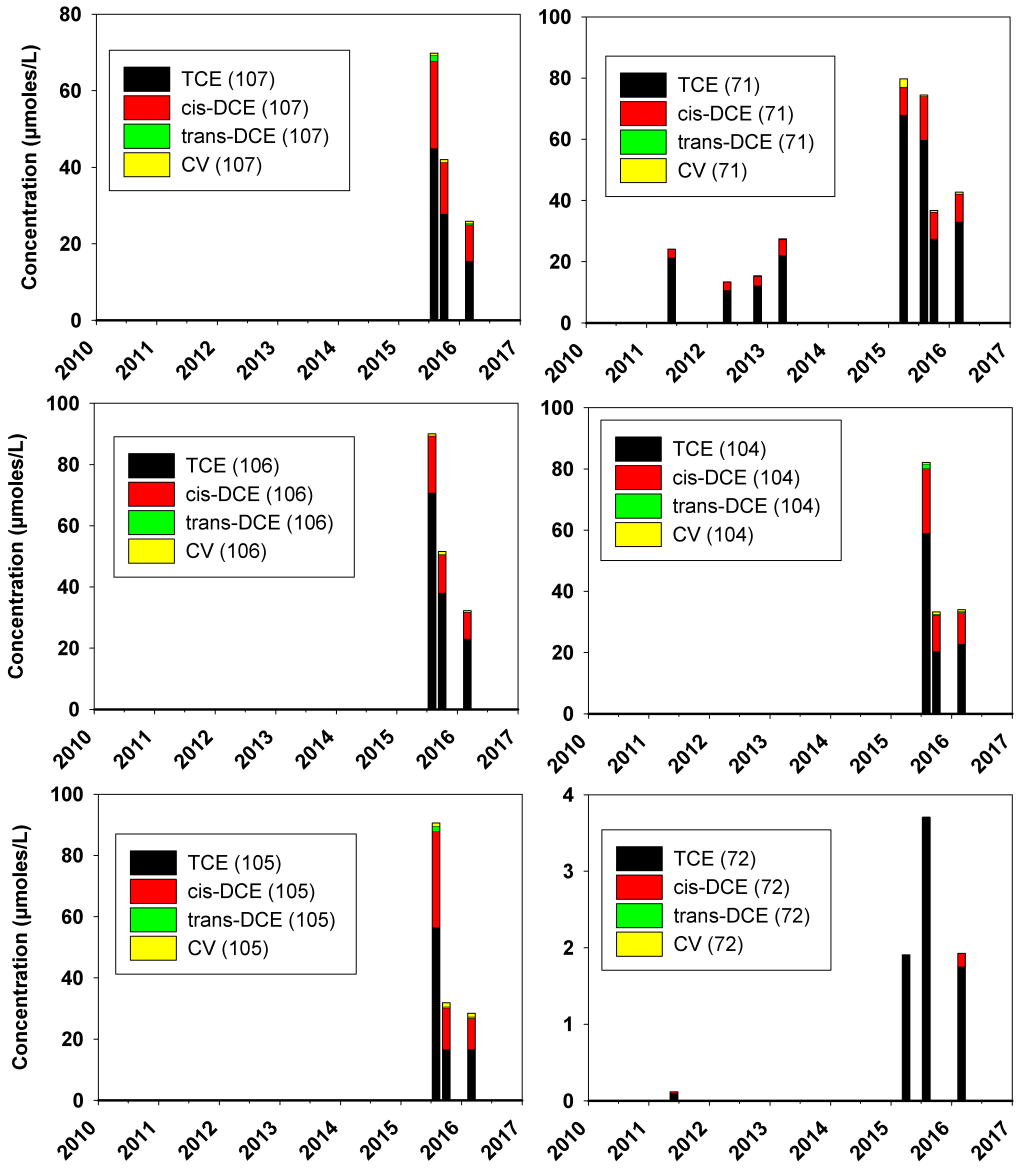

Figure 3.15 : Evolution des concentrations molaires (μM/L) en solvants chlorés dans l'aquifère tertiaire (2)

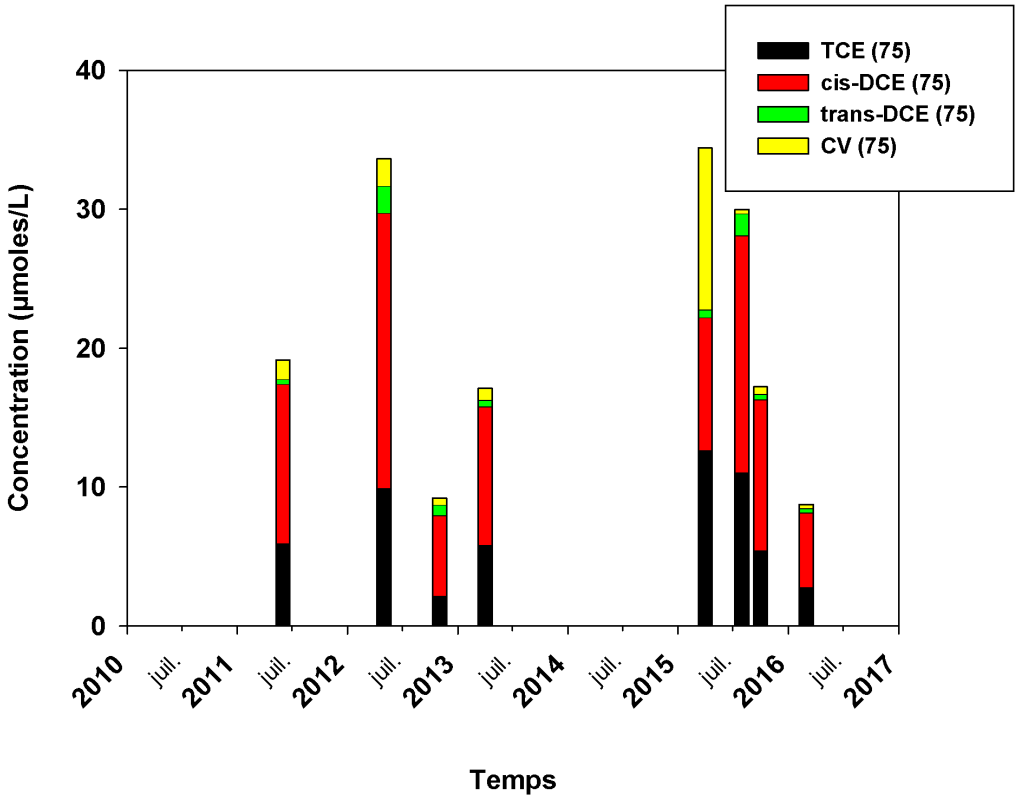

Figure 3.16 : Evolution des concentrations molaires (μM/L) en solvants chlorés au droit du piézomètre 75

3.20). Ces diagrammes ont permis de représenter la distribution spatiale de la composition ionique.

Concernant les cations, le Mg^{2+}, Ca^{2+}, Na^{+} ont été retrouvés dans l'ensemble des échantillons : le Ca^{2+}sur des gammes de 23,5 mg/L à 238,4 mg/L, le Mg^{2+} de 20,4 mg/L à 104,1 mg/L avec une valeur particulière (350,6 mg/L) dans le piézomètre 57. Pour le Na^{+}, le point 67 se distingue avec une concentration de 330,6 mg/L contre une gamme de concentration globale de 33,3 mg/L à 224,9 mg/L. A noter que pour le sodium les valeurs les plus hautes sont observées dans l'aquifère quaternaire. Le potassium est absent de 8 piézomètres et présente une plage de valeurs plus faible (11 mg/L à 0,9 mg/L). Enfin, l'ammonium n'a pas été détecté dans 19 piézomètres et a une concentration variant entre 6,6 mg/L et 114,7 mg/L dans les autres. Dans l'aquifère quaternaire, l'ammonium est pratiquement omniprésent excepté dans les piézomètres 69, 68, 73, 74 et 77 dans lesquels sont retrouvés des nitrates avec un maximum mesuré dans les piézomètres 114 (114,7 mg/L), 110 (108,4 mg/L) et 40 (104,9 mg/L). Dans l'aquifère tertiaire, seuls 3 piézomètres affichent des concentrations notables en ammonium : le 57 (85,6 mg/L), le 119 (85,6 mg/L) et le 120 (53,6 mg/L). Les piézomètres 72, 68 et 74 présentent des nitrates en quantités non négligeables, respectivement de 128, 57 et 39 mg/L.

Le diagramme de Piper évalue la répartition des eaux en fonction de leur composition. On constate ici une grande hétérogénéité des compositions en ions majeurs, car les échantillons sont répartis dans une vaste aire du losange du diagramme. Pour les anions, les échantillons s'alignent majoritairement suivant une droite reliant les chlorures aux sulfates, sans distinction entre les eaux des deux aquifères (figure 3.18). La comparaison du diagramme binaire au diagramme de Piper met en évidence la déviation de la composition ionique des piézomètres 68 et 72, qui se caractérisent par la plus forte proportion de nitrates. Ce diagramme met en évidence l'existence d'un mélange entre une eau chargée en sulfate et chlorure et une autre quasiment pure contenant uniquement des hydrogénocarbonates.

Dans le triangle des cations, un groupement de piézomètres se détache des autres : le 68, 67, 108 et 73. Ces échantillons présentent les plus hautes concentrations en sodium. Les autres points divergeant de la tendance sont le 77, peu concentré en magnésium, et le 57 qui, au contraire, est celui qui contient le plus de magnésium dans l'aquifère.

Les figures 3.19 et 3.20 permettent de différencier les chimies des eaux. D'après les formes des diagrammes de Stiff, la chimie des eaux semble similaire le long de l'écoulement excepté pour la zone du piézomètre 68. A l'Ouest, on peut noter tout de même une différenciation selon l'axe des piézomètres 77, 30 et 74. Le piézomètre 77 se différencie du reste de l'aquifère par sa faible minéralisation.

Pour l'aquifère inférieur, les eaux ont globalement une composition semblable. Il est intéressant de noter que les eaux les plus concentrées en solvants chlorés présentent une chimie différente des eaux les moins polluées. Les piézomètres les moins pollués (56, 111, 122 et 72) présentent une fraction calcique plus importante. Par ailleurs, le piézomètre 57 présente une eau plus magnésienne que le reste du système.

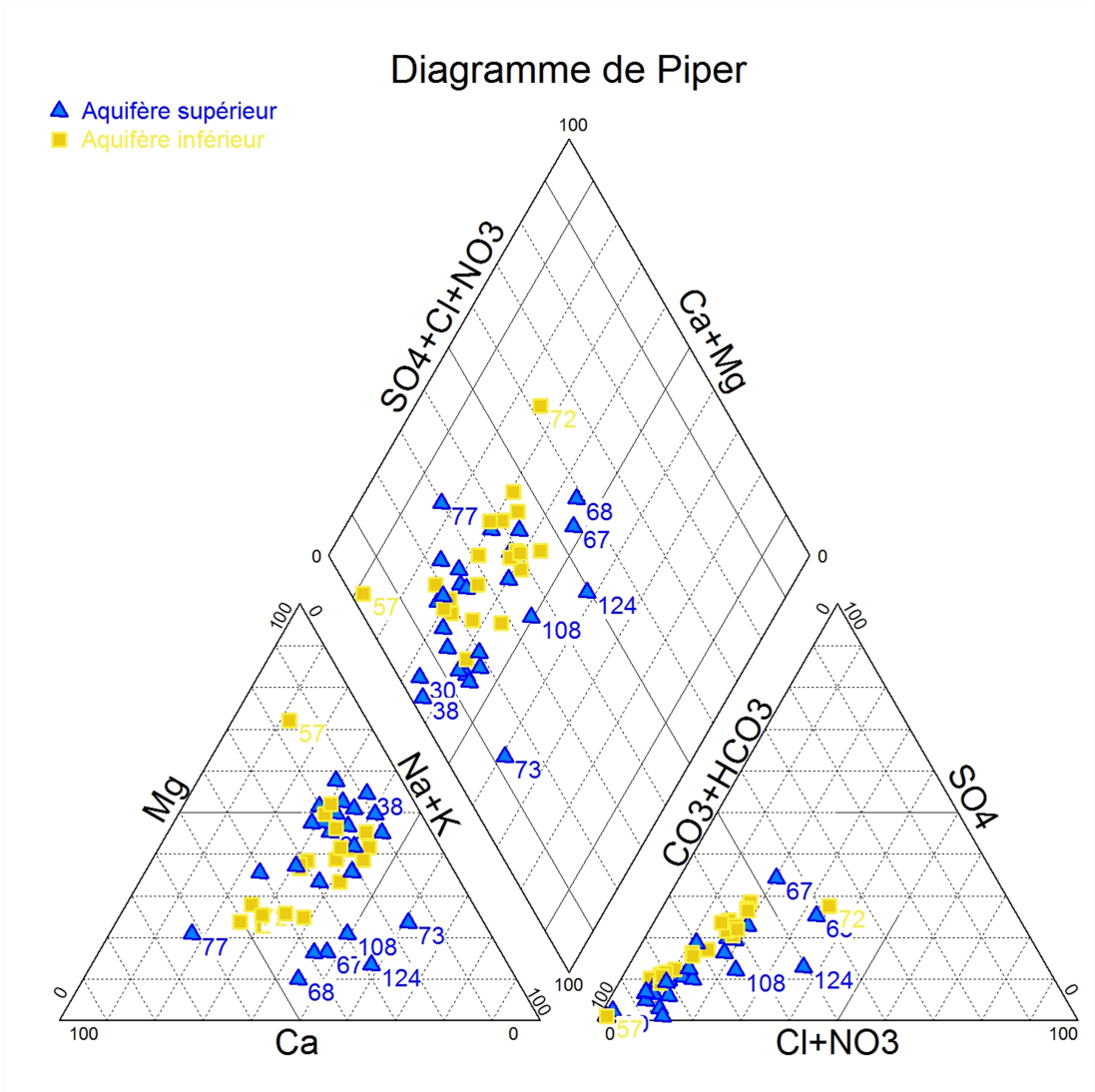

Figure 3.17 : Diagramme de Piper regroupant les mesures d'ions majeurs. Le triangle de gauche représente les cations, celui de droite représente les anions, tandis que le losange représente la totalité des ions

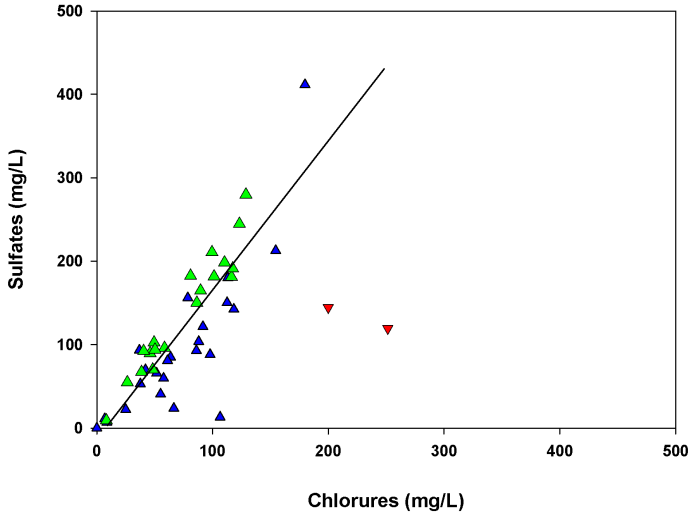

Figure 3.18 : Diagramme binaire entre les chlorures et les sulfates pour les eaux des aquifère quaternaire (en bleu) et tertiaire alpha (en vert). Les triangles rouges correspondent aux piézomètre 108 et 124, et n'ont pas été utilisés pour la régression linéaire

Pour les deux aquifères, et à l'exception du piézomètre 68, les eaux les plus polluées sont marquées par une forte minéralisation majoritairement sodique et magnésienne pour les cations et chargés en hydrogénocarbonates (plus faiblement pour l'aquifère tertiaire). *A contrario*, les eaux les moins polluées sont plus faiblement minéralisées et présentent une fraction calcique plus importante, notamment dans l'aquifère tertiaire. La composition similaire des eaux les plus polluées des deux aquifères représente un indice d'une potentielle infiltration des eaux de l'aquifère quaternaire vers l'aquifère tertiaire. Il apparaît que cette infiltration n'est pas localisée proche du piézomètre 68, ni sous la zone source identifiée du fait de la composition des eaux du piézomètre 57 fortement magnésienne.

L'ammonium peut aussi constituer un marqueur de l'infiltration, car il ne peut s'écouler en zone argileuse du fait de la capacité d'échange des argiles (Atteia, 2005). Son occurrence indique donc à la fois des zones préférentiellement sableuses mais peut également signaler des zones d'infiltrations si l'on retrouve le composé dans les piézomètres sous-jacents. Ainsi, il pourrait exister une zone d'infiltration directement proche des piézomètres 38 et 40 et 117. En effet, dans l'aquifère quaternaire, l'ammonium est largement représenté, avec des valeurs hautes en amont de l'écoulement sud-ouest nord-est (piézomètres 114, 116, 39). A l'inverse, dans le tertiaire, seuls les points situés sous la zone de haute concentration de l'aquifère supérieur contiennent ce composé. Ceci exprime l'existence d'une zone d'infiltration préférentielle entre les deux aquifères en ce point. Ce fait rejoint les hypothèses d'infiltrations entre les entités aquifères exposées dans la partie 3.2.2.

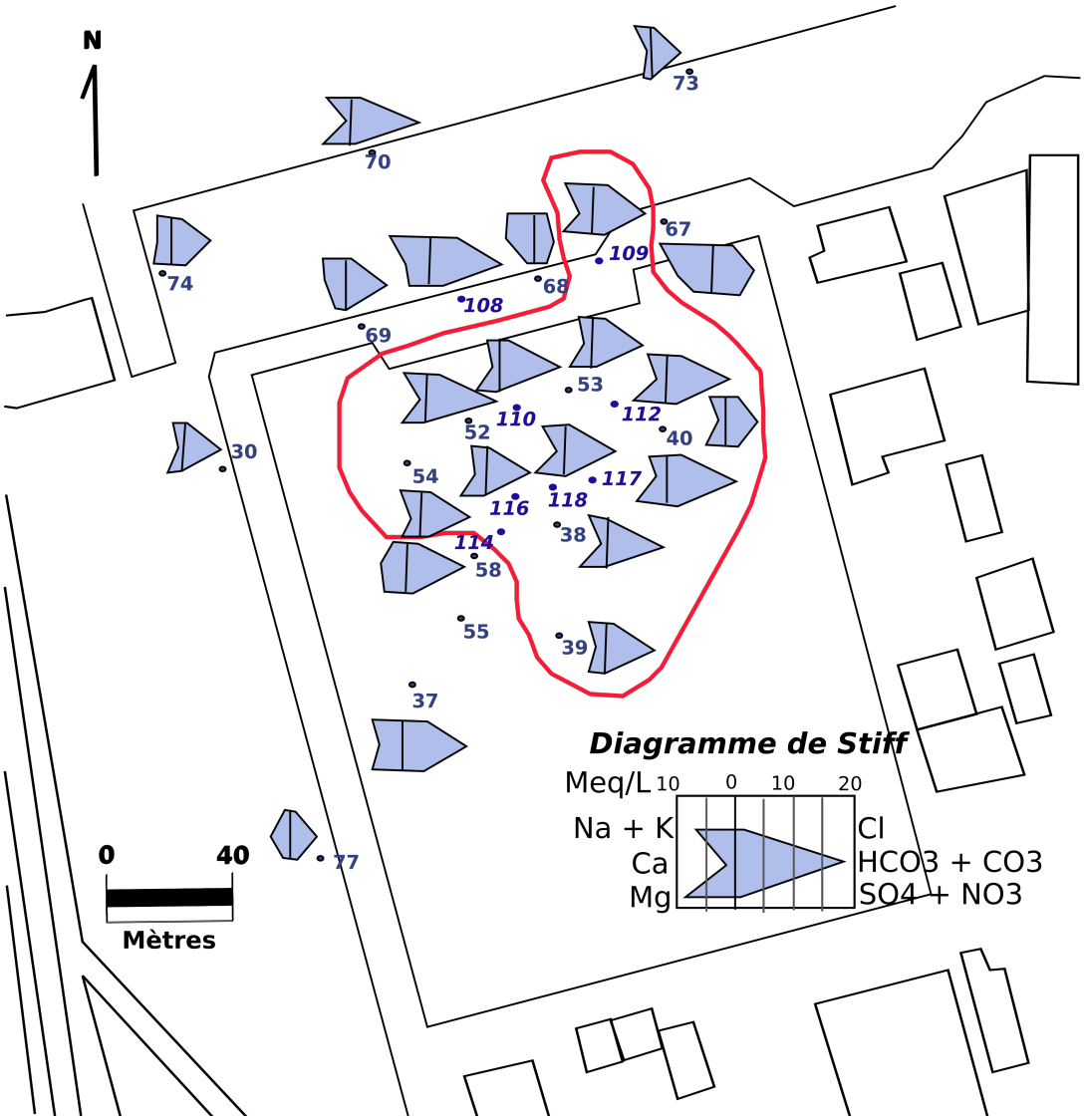

Figure 3.19 : Caractérisation de la chimie des eaux de l'aquifère quaternaire. La répartition des ions est présentée suivant le diagramme de Stiff

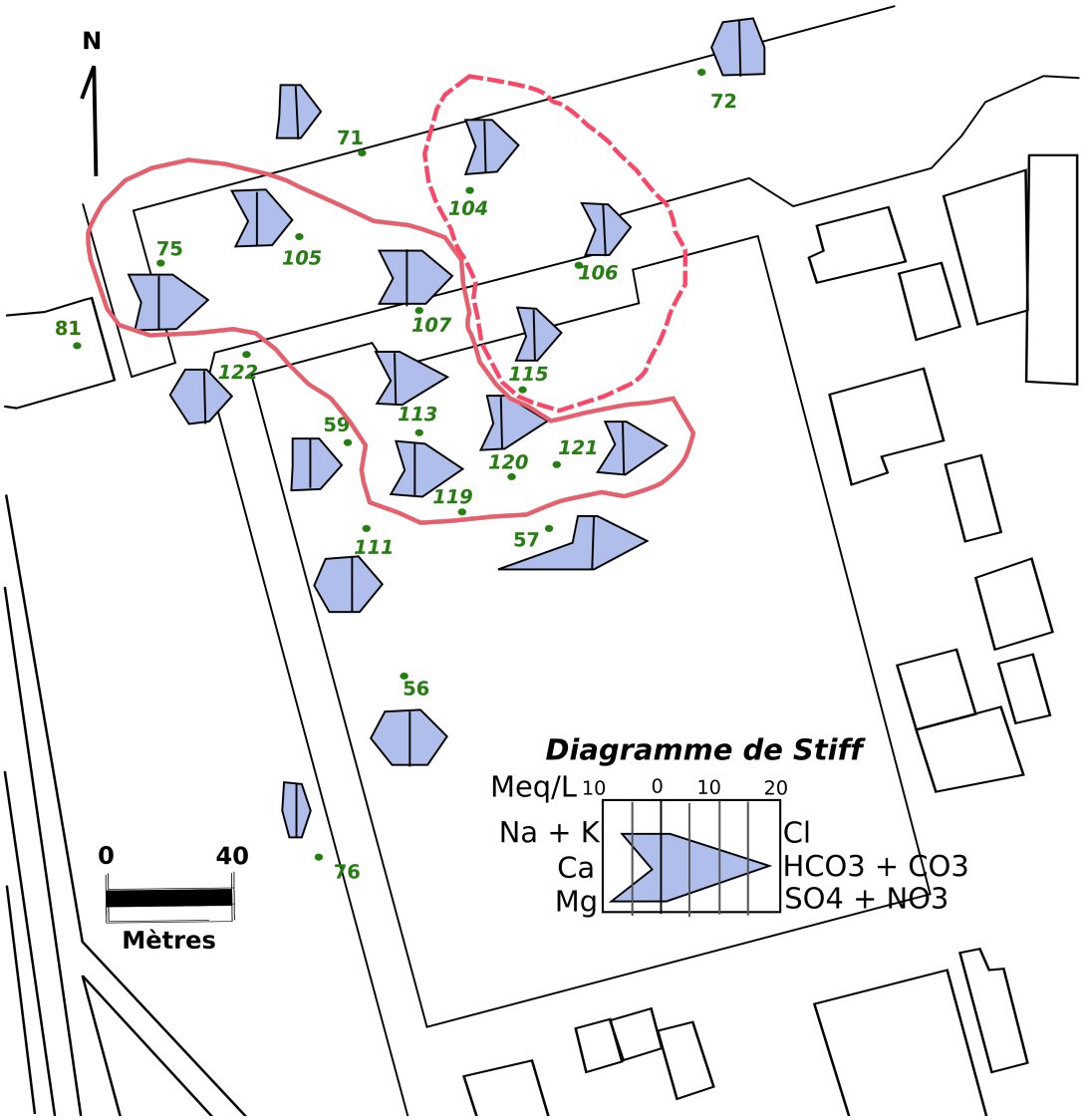

Figure 3.20 : Caractérisation de la chimie des eaux de l'aquifère Tertiaire Alpha. La répartition des ions est présentée suivant le diagramme de Stiff

3.3 Modèle conceptuel

3.3.1 Données hydrodispersives

3.3.1.1 Hydrodynamique

Comme évoqué précédemment, au cours du forage de piézomètres, une forte hétérogénéité des dépôts sableux a été mise en évidence, avec une gamme allant du sable grossier au sable fin, avec la présence d'argiles à certains endroits spécifiques. Les essais de pompage et *slug tests* ont montré une conductivité hydraulique de l'ordre de 10^{-6} à 4×10^{-5} m.s^{-1} dans la plupart des puits, à l'exception de quelques puits forés dans les argiles. Dans l'aquifère tertiaire alpha, la conductivité hydraulique semble avoir le même ordre de grandeur que dans l'aquifère quaternaire, tout en étant légèrement plus faible, avec des valeurs autour de 10^{-6} m.s^{-1}.

La porosité efficace n'a pas été mesurée sur site. Une mesure entre les forages est possible uniquement à l'aide d'essais de traçage très contrôlés. En première approximation, nous considérerons que la porosité efficace est comprise entre 10% et 25%.

3.3.1.2 Estimation de la dispersivité

Pour définir la dispersion hydrodynamique dans un panache, un essai de traçage avec un traceur non réactif (type fluorescéine) peut être utilisé. Pour déterminer la dispersivité, un test de traçage à partir d'une eau à 450 μS.cm^{-1} injectée dans le piézomètre 38 a été réalisé, l'eau du site présentant des conductivités supérieures à 1700 μS.cm^{-1}. Malgré l'équipement du piézomètre 117 avec une sonde de type Solinst, le signal relatif à une baisse de la conductivité n'a pu être capté. De ce fait, une estimation a été effectuée partir des concentrations mesurées dans les forages.

La méthode la plus couramment utilisée est basée sur le fait que la dispersivité longitudinale est fonction de la distance effectuée par un contaminant à partir d'une source (Gelhar *et al.*, 1992). Gelhar *et al.* (1992) définissent une relation linéaire entre la dispersivité longitudinale (α_L [m]) et la longueur du panache (L [m]) à partir d'un ensemble de dispersivité mesurée ou estimée sur le terrain. Cette régression a pour pente 0,1 (tableau 3.2). D'autres méthodes sont également employées pour préciser la dispersivité longitudinale par des relations empiriques qui tiennent compte des longueurs de panaches (Neumann, 1990; Xu et Eckstein, 1995).

La dispersivité transversale peut aussi être approchée par des relations empiriques comme celle de Gelhar *et al.* (1992) :

$$\alpha_T = 0,1\alpha_L \tag{3.1}$$

Wiedemeier (1999) confirme que la dispersivité transversale est 10 à 20 fois plus faible que la dispersivité longitudinale, et ce jusqu'à 33 fois d'après l'EPA (1986).

Tableau 3.2 : Relation permettant de calculer la dispersivité longitudinale α_L

Auteur	**Equation**
(Gelhar *et al.*, 1992)	$\alpha_L = 0,1L$
(Neumann, 1990)	Pour $L \leq 100$m : $\alpha_L = 0,075L^{1,46}$
(Neumann, 1990)	Pour $L \geq 100$m : $\alpha_L = 0,32L^{0,83}$
(Xu et Eckstein, 1995)	$\alpha_L = 0,83 \cdot log(L)^{2,414}$

Wiedemeier (1999) définit aussi que la dispersivité verticale α_V est inférieure à la dispersivité transversale d'un facteur 2.

Se basant sur les relations empiriques précédentes, un premier ordre de grandeur pour les différentes dispersivités a pu être établi (tableau 3.3), servant de point de départ à tout processus de modélisation. Nous avons comparé la dispersivité calculée à partir des équations présentées dans le tableau 3.3, à une application de la solution analytique de Domenico (1987) en 2D . La solution analytique, implémentée dans Excel, est comparée aux mesures de terrain à l'aval de la zone source, ce qui permet d'estimer une valeur maximale de la dispersivité transversale. Avec cette méthode, nous avons estimé une dispersivité transversale de l'ordre de 0,2 à 0,7 m (pour différentes campagnes de mesures) pour l'aquifère quaternaire.

Cependant, ces calculs sont à modérer pour deux raisons. La première est que la longueur du panache n'est pas explicitement connue. Aussi, dans le cas de l'existence de voies de transfert préférentielles, l'utilisation des paramètres hydrodispersifs comme la dispersivité pour décrire le transport des contaminants doit être modérée (Anderson, 1991). Se basant sur la répartition spatiale des SC dans l'aquifère quaternaire, la suspicion de chemins de transfert préférentiels est grande. Ce schéma ne semble pas reproductible pour l'aquifère tertiaire alpha au regard des concentrations spatialement homogènes. Ainsi, il est probable que les valeurs de dispersivité calculées pour l'aquifère quaternaire soient surestimées. Aussi, nous proposons d'utiliser une gamme de valeurs pour la dispersivité transversale de l'ordre de 0,1 m à 0,5 m.

La répartition homogène des SC dans l'aquifère tertiaire peut être associée à une dispersion plus importante conduisant à un étalement des composés, soit parce que le milieu est plus dispersif que l'aquifère quaternaire (sous-entendu moins dominé par des chemins préférentiels), soit du fait de variations de directions d'écoulements (jusqu'ici non observées à l'échelle des mesures piézométriques) (Cirpka et Attinger, 2003; Dentz et Carrera, 2005). Classiquement, Goode et Konikow (1990) rapportent que ce phénomène est souvent englobé dans une valeur de dispersivité transversale apparente conduisant à une surestimation du paramètre. Ainsi, les valeurs calculées dans le tableau 3.3 correspondent à des premières approximations.

Tableau 3.3 : Calcul des différentes dispersivités α_L, α_T et α_V

Aquifère Quaternaire		
Paramètre	**d'après (Gelhar *et al.*, 1992)**	**d'après (Xu et Eckstein, 1995)**
Longueur du panache [m]	100	100
α_L [m]	10	4
α_T [m]	1 - 3,3	0,4 - 1,2
α_V [m]	0,5 -1,65	0,2 - 0,6
Aquifère Tertiaire		
Paramètre	**d'après (Gelhar *et al.*, 1992)**	**d'après (Xu et Eckstein, 1995)**
Longueur du panache [m]	300	300
α_L [m]	30	7,4
α_T [m]	3 - 10	0,74 - 2,5
α_V [m]	1,5 - 5	0,37 - 1,25

3.3.2 Calcul de flux de SC

Le calcul des flux vise à déterminer la possibilité ou non de la présence d'une source secondaire localisée dans l'aquifère tertiaire et/ou à définir l'emplacement des zones d'infiltration suspectées. Le modèle conceptuel du site est schématiquement représenté à la figure 3.21. L'hypothèse d'une source de TCE pure située directement dans l'aquifère tertiaire semble difficile à justifier, notamment par le fait que sa position ne coïnciderait pas avec un stockage identifié. De même, la largeur de la source à l'origine du panache observé dans l'aquifère tertiaire devrait être très importante. Les tableaux 3.4 et 3.5 présentent les flux molaires totaux calculés à partir des analyses chimiques, de la largeur approximative du panache et des vitesses locales approximatives, à différentes distances de la source. Comme le panache est considéré comme relativement ancien et s'étant dispersé au-delà des zones retenues pour les calculs, il peut être considéré à l'état d'équilibre. Ainsi, la somme des flux en aval hydraulique doit être égale au flux émanant de la source, c'est à dire 100%. Ces calculs restent approximatifs au vu des données d'entrée et seront par conséquent utilisés de façon qualitative.

Premièrement, à partir des données de la campagne d'octobre 2015, ∼97% du flux total de SC, qui est estimé à 102 mmol/j, semblent dirigés vers le piézomètre 117 et seulement ∼3% du flux total vers les piézomètres 118 et 116. En aval, les flux calculés dans le piézomètre 40 (∼3%) et dans l'aire immédiate des piézomètres 52 et 112 (∼27%) suggèrent une perte de ∼67% des flux de SC provenant de la zone source, soit environ 68 mmol/j. Ainsi, une zone d'infiltration pourrait être à l'origine de cette perte et du panache observé dans l'aquifère tertiaire. A titre d'exemple (Tableau 3.6), une zone d'infiltration localisée entre les piézomètre 117

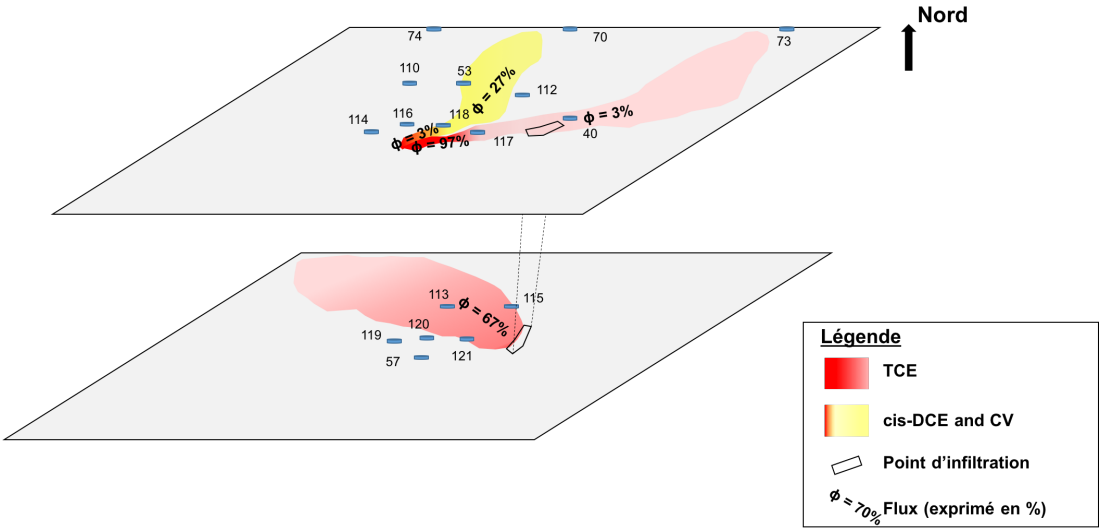

Figure 3.21 : Schéma conceptuel du site d'étude

et 40, d'une taille de 10 m^2, ayant une conductivité hydraulique verticale de 4 x 10^{-8} $m.s^{-1}$, pourrait fournir ∼67% des flux à l'aquifère tertiaire. Ce flux serait rendu possible notamment grâce à la forte différence de charges hydrauliques (2 m) entre les deux aquifères.

Ce flux d'infiltration serait alors cohérent avec le flux calculé dans l'aquifère tertiaire en raison des concentrations élevées mesurées, de la largeur importante du panache (∼100 m) et de la vitesse des eaux souterraines, ce qui conduit à un flux estimé à 62 mmol/j. Ce flux élevé semble compatible avec les concentrations importantes dans l'aquifère tertiaire supérieures à celles de l'aquifère quaternaire (excepté le piézomètre 117 et 38) en aval hydraulique de la zone source.

Tableau 3.4 : Hypothèses et calculs de flux de solvants chlorés pour l'aquifère quaternaire. Les concentrations molaires correspondent aux valeurs mesurées en octobre 2015

	Aquifère Quaternaire						
Piézometre	38	117	118	116	40	53	112
Largeur panache (m)	5	20	10	10	20	15	10
Epaisseur aquifère (m)	2	2	2	2	2	2	2
Section d'écoulement (m^2)	10	40	20	20	40	30	20
Conductivité hydraulique K_h ($m.s^{-1}$)	5×10^{-5}	5×10^{-5}	5×10^{-5}	5×10^{-5}	5×10^{-5}	5×10^{-5}	5×10^{-5}
Gradient hydraulique (%)	0,2	0,2	0,2	0,2	0,2	0,2	0,2
Debit ($m^3.s^{-1}$)	$8{,}6\times10^{-7}$	$3{,}4\times10^{-6}$	$1{,}7\times10^{-6}$	$1{,}7\times10^{-6}$	$3{,}4\times10^{-6}$	$2{,}6\times10^{-6}$	$1{,}7\times10^{-6}$
Concentration molaire (μM/L)	1383	240	16,2	1,6	12	72,5	23,2
Flux (mM/j)	102,4	71,1	2,4	0,2	3,6	16,1	3,4

Tableau 3.5 : Hypothèses et calculs de flux de solvants chlorés pour l'aquifère tertiaire

	Aquifère Tertiaire
Piézometre représentatif	121
Largeur panache (m)	100
Epaisseur aquifère (m)	1,5
Section d'écoulement (m^2)	150
Conductivité hydraulique K_h ($m.s^{-1}$)	5×10^{-6}
Gradient hydraulique (%)	1,3
Debit ($m^3.s^{-1}$)	$9{,}7\times10^{-6}$
Concentration molaire (μM/L)	74
Flux (mM/j)	62,1

Tableau 3.6 : Calcul du flux de transfert de solvant chlorés à travers l'éponte argileuse

	Infiltration
Largeur de la zone (m)	1
Section d'écoulement (m^2)	10
Conductivité hydraulique K_h ($m.s^{-1}$)	5×10^{-7}
Conductivité hydraulique K_v ($m.s^{-1}$)	5×10^{-8}
Gradient hydraulique (%)	80
Debit ($m^3.s^{-1}$)	$3{,}2\times10^{-6}$
Concentration molaire en aval hydraulique (μM/L)	240
Flux (mM/j)	66

Synthèse

L'ensemble des données acquises pendant cette thèse permettent d'établir un premier modèle conceptuel du site d'étude. Ce modèle conceptuel présente les caractéristiques suivantes :

- Un site construit sur un aquifère multi-couches complexe et hétérogène, et mettant en jeu deux aquifères distincts (séparés par une éponte argileuse) ;
- Des sens d'écoulements clairement définis pour l'aquifère quaternaire, à l'inverse de l'aquifère tertiaire ;
- La présence d'une zone source en TCE, sous forme de NAPL mais de faible extension (quelques mètres) proche du piézomètre 38 (aquifère quaternaire) ;
- Une forte suspicion d'un transfert localisé en aval de la zone source, et redirigeant une partie des SC dans l'aquifère tertiaire ;
- Des concentrations molaires supérieures et homogènes dans l'aquifère tertiaire ;

Chapitre 4

Développement d'un modèle numérique en 3 dimensions

4.1 Introduction

Un modèle hydrodynamique et hydrodispersif est développé dans le but d'améliorer la compréhension du fonctionnement de l'aquifère. Il a pour objectif majeur de tester différentes hypothèses d'écoulement dans le système multicouche complexe. En effet, ces hypothèses auront des conséquences pratiques sur la gestion du risque et la remédiation de la pollution. En raison de l'interaction entre l'écoulement et le transport de substances, la démarche présentée implique à la fois un modèle d'écoulement et de transport. L'originalité de celle-ci réside dans le fait que la distribution spatiale des solvants chlorés originaux (principalement TCE) et des métabolites (cis DCE et CV) sont utilisés pour contraindre le modèle d'écoulement et de transport, ceci sans réaliser un modèle géochimique de biodégradation. Ce chapitre décrit la transcription du modèle conceptuel hypothétique en un modèle numérique. L'utilisation d'un modèle numérique sous-entend un niveau de complexité à adapter en fonction des enjeux. La plupart des auteurs valorisent la simplicité des représentations (Doherty et Christensen, 2011; Hill, 2006; Hill *et al.*, 1998). Il faut toutefois garder à l'esprit que peu importe la complexité du modèle, celui-ci demeure une approximation de la réalité (Voss, 2011).

4.2 Conception du modèle numérique

4.2.1 Géometrie

La géométrie d'un modèle numérique est définie à l'aide de deux critères : l'extension spatiale du modèle et le choix de la dimension du modèle (2D ou 3D). Dans le cadre de cette thèse la représentation du système aquifère multicouches, avec de potentiels transferts inter-aquifères, est intégrée dans un modèle en trois dimensions. De même ce choix s'explique par la suspicion de transferts verticaux entre les deux aquifères.

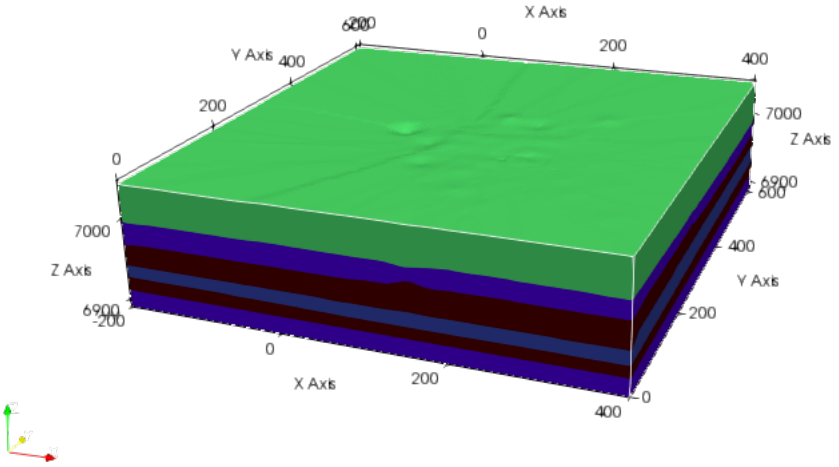

Figure 4.1 : Structure 3D du modèle numérique : vert : zone non saturée, Bleu : aquifère quaternaire, tertiaire alpha et tertiaire beta respectivement suivant la profondeur, Marron : les épontes. L'axe z a été exagéré (épaisseur x10) pour la visualisation.

Dans le cadre d'un modèle numérique en trois dimensions représentant le transport de substances dissoutes, l'étendue du domaine modélisé doit couvrir une zone permettant de suivre l'évolution du panache sur plusieurs décennies. De même, la taille du domaine modélisé doit prendre en considération une distance importante entre les conditions aux limites et la zone source (notamment amont) afin de réduire l'impact de celle-ci sur les résultats du modèle (De Marsily, 1986).

La géométrie du modèle 3D a été construite à partir de données géologiques provenant de 72 forages (y compris l'étude des logs des piézomètres et des forages de reconnaissance des sols), pour séparer les strates principales (aquifère quaternaire, aquitard, aquifère tertiaire : zones alpha et bêta). Les toits de chaque strate ont été repérés par l'étude des logs stratigraphiques et étendus le long de 2 coupes géologiques réalisées selon l'axe Nord-Sud (de 190 m et 230 m de long) et 6 selon l'axe Est-Ouest (de 120 m à 265 m de long). En effet, une modélisation hydrogéologique de qualité nécessite une interprétation géologique précise (Fogg, 1986; Martin et Frind, 1998; Refsgaard *et al.*, 2012; Troldborg *et al.*, 2007). L'épaisseur de chaque strate est obtenue sur l'ensemble du domaine en utilisant une interpolation par inverse-distance pour chaque couche. Le domaine du modèle 3D conduit ainsi à une taille de 612 m (le long du sens d'écoulement principal correspondant à l'axe des x) sur 600 m de large (correspondant à l'axe des y) et sélectionné de manière à inclure l'étendue majeure du panache de contaminant

dans la direction de l'écoulement des eaux souterraines. Cette entendue permet ainsi de réduire les effets des conditions aux limites sur la zone d'intérêt.

4.2.2 Discrétisation spatiale

Dans tout processus de modélisation, le choix de la grille de résolution conditionne la précision du modèle (Anderson *et al.*, 2015). Néanmoins celle-ci doit être adaptée de manière à garantir des temps de calcul raisonnables. Lorsque les mailles sont de grande taille, la représentation de l'hétérogénéité de la conductivité hydraulique est rendue difficile. De même les charges hydrauliques calculées représentent une moyenne sur la surface de la maille, engendrant des erreurs localement (Bower *et al.*, 2005). Dans le cadre d'un modèle numérique de transport, ou de faibles dispersivité caractérisent le transport des matières dissoutes, la grille doit être suffisamment fine afin de satisfaire un nombre de Péclet (rapport de la taille de la cellule à la dispersivité) à une valeur située entre 1 et 10 selon la méthode de résolution de l'advection utilisée pour éviter toute erreur de calcul (Zheng et Wang, 1999). Ici nous utilisons la méthode TVD qui permet d'obtenir des gradients de concentrations fiables avec des nombres de Péclet de l'ordre de 10 (Zheng et Wang, 1999). En général la résolution est raffinée proches des zones où les contrastes de perméabilité ou de concentrations sont élevés, soit en général proche de la zone source de contaminant. Dans notre cas, il s'agit aussi de la zone autour de laquelle l'information sur l'hétérogénéité du milieu est la plus élevée, justifiant des mailles plus fines.

Selon l'axe des x et y, la résolution de la grille a été affinée localement à proximité de la zone source suspectée (1 x 1 m). Un maillage de 10 x 10 m a été adopté pour le reste du domaine (Figure 4.2).

Selon l'axe z, une discrétisation verticale spécifique a été nécessaire pour l'aquifère quaternaire. En effet, en tant que DNAPL, la source est très souvent localisée au mur de l'aquifère. L'utilisation d'une couche de 10 cm incluant la source permet de rendre compte de ce phénomène. Par ailleurs, le modèle conceptuel suggère également que la plupart des flux délivrés par la source atteignent l'aquifère tertiaire à travers une zone de communication qui peut être située à quelques dizaines de mètres en aval hydraulique. Cette observation peut indiquer la présence d'un panache plutôt situé dans la partie basse de l'aquifère quaternaire. Cette hypothèse nécessite donc une faible dispersivité verticale et l'utilisation de sous-couches relativement minces dans la partie basse de l'aquifère quaternaire. Pour représenter ces phénomènes l'aquifère quaternaire a été subdivisées en 8 sous-couches avec des épaisseurs fines (10 cm) au fond de l'aquifère et plus épaisses au sommet (20 cm). L'aquitard séparant les aquifères quaternaire et tertiaire a été également subdivisé pour éliminer toute diffusion/dispersion numérique potentielle à travers celui-ci.

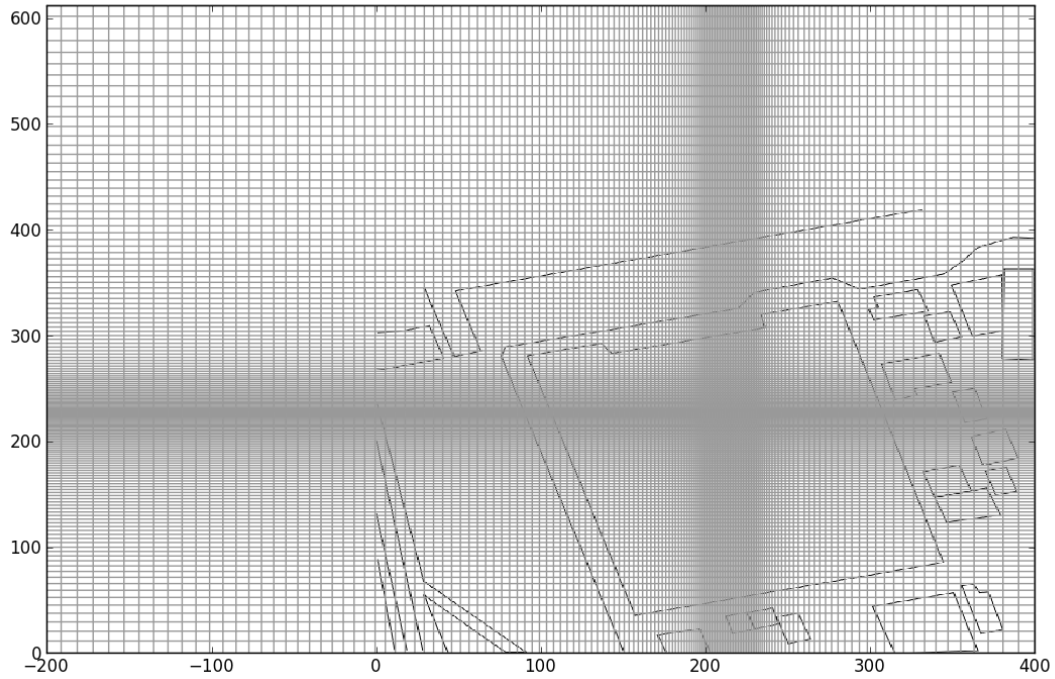

Figure 4.2 : Maillage horizontal défini pour la modélisation de l'écoulement et du transport

4.2.3 Discrétisation temporelle

Il existe deux types de discrétisation temporelle dans les modèles hydrogéologiques. La première correspond au régime d'écoulement sélectionné entre un état permanent ou un état transitoire. Si par nature les systèmes hydrogéologiques ne sont jamais à l'état permanent, Anderson *et al.* (2015) suggèrent que certains problèmes peuvent être résolus par la modélisation en régime permanent hydraulique. Ce choix doit s'effectuer au regard de la fréquence des données disponibles mais aussi par rapport à la réactivité du milieu considéré (Haitjema, 2006). Dans notre cas la concomitance des évènements de montée et descente des niveaux piézométriques dans la plupart des puits suggère que les écoulements conservent la même direction et donc qu'un modèle permanent peut être utilisé en première approximation. Pour le modèle de transport, comme nous souhaitons obtenir des informations sur le temps de développement du panache, un modèle transitoire a été utilisé. Sur la base des études historiques, le panache de contaminant au droit du site d'étude est estimé à au moins 45 ans et ce temps a été défini comme durée totale pour la simulation du transport. Un pas de temps de 182 jours, soit une demi-année a été sélectionné.

4.2.4 Conditions aux limites

Idéalement les conditions aux limites d'un modèle sont définies en fonction des limites naturelles, que ce soit une limite d'alimentation (par exemple un cours d'eau) ou une limite imperméable. La zone modélisée ne contient aucune limite naturelle à proximité permettant d'établir une condition naturelle. Des conditions à potentiel imposé fixe (de type Dirichlet) contraignant la direction des écoulements sont définies à partir des différentes cartes piézométriques établies pour l'aquifère quaternaire (Octobre 2016).

La direction de l'écoulement pour l'aquifère tertiaire n'est pas clairement définie à partir des cartes piézométriques. Néanmoins au regard de l'écoulement régional, des conditions aux limites traduisant un écoulement orienté du Sud-Est vers le Nord-Ouest ont été implémentées. Pour l'aquifère tertiaire, le comportement hydrogéologique semble être différent au regard de l'importante étendue latérale du panache. La dispersion semble être le processus majeur pour expliquer la distribution des solvants chlorés (SC), plutôt qu'un transfert via des chemins préférentiels. Cette dispersion peut être le fruit de deux processus distincts.

1. L'étalement du panache est essentiellement régi par l'augmentation de la dispersivité latérale. Ce modèle sera appelé le "Dis mod". Pour le Dis mod, des conditions aux limites de type Dirichlet définissent un écoulement global du Sud-Est vers le Nord-Ouest (comme le suggèrent les données de concentrations).

2. Une variation des directions d'écoulement peut conduire à un étalement d'un panache (Cirpka et Attinger, 2003; Dentz et Carrera, 2005; Prommer *et al.*, 2002). Bien que cette variation soit difficile à détecter en raison du faible nombre de données piézométriques, des conditions aux limites variables produisant un angle d'écart transitoire par rapport à la direction d'écoulement moyen celle définie dans le Dis mod a été investiguée. Au cours de cette approche le gradient hydraulique a été conservé. Cette approche est ensuite désignée comme le "Vbc mod".

4.2.5 Codes de calculs

Les codes de calculs retenus pour la simulation numérique sont MODFLOW-2000 (Harbaugh *et al.*, 2000) pour la résolution des équations d'écoulements (équation 4.1) (méthode des différences finies) et MT3DMS (Zheng et Wang, 1999) pour le transport advectif-dispersif (équation 4.2) à l'aide de la méthode TVD (basé sur l'écoulement obtenu avec MODLFOW). L'écoulement est décrit par l'équation suivante :

$$\frac{\partial}{\partial x}\left[K_{xx}\frac{\partial h}{\partial x}\right]+\frac{\partial}{\partial y}\left[K_{yy}\frac{\partial h}{\partial y}\right]+\frac{\partial}{\partial z}\left[K_{zz}\frac{\partial h}{\partial z}\right]+W=s_s\frac{\partial h}{\partial t} \tag{4.1}$$

Avec K_{xx}, K_{yy} et K_{zz} comme valeurs de la conductivité hydraulique suivant les axes x, y, et z, h la charge hydraulique, W le flux volumétrique correspondant

aux apports et aux extractions d'eau du système, et s_s le coefficient d'emmagasinement spécifique.

Le transport d'une concentration C est, quant à lui, décrit à l'aide de :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \left(D_x \frac{\partial^2 C}{\partial x^2}\right) + \left(D_y \frac{\partial^2 C}{\partial x^2}\right) + \left(D_z \frac{\partial^2 C}{\partial x^2}\right) - \left(v_x \frac{\partial C}{\partial x}\right) \tag{4.2}$$

Avec D_x, D_y et D_z les dispersions longitudinales, transversales et verticales, et v_x la vitesse de pore selon l'axe x. Ici une porosité homogène sur l'ensemble du domaine est considérée. Ces deux codes de calculs, approuvés par la communauté scientifique, ont le mérite d'être libre d'accès et très bien documentés. Pour faciliter l'utilisation des codes de calculs, nous avons utilisé l'interface graphique ORTi3D développée par O. Atteia. Cette interface permet notamment, la modification de la grille de résolution pendant le processus de modélisation (oatteia.usr.ensegid.fr/iPht3d/).

4.2.6 Objectifs et démarche

L'objectif principal du modèle est de tester le schéma conceptuel précédemment établi et d'acquérir une compréhension plus fine du système. Dans un deuxième temps, la quantification des processus de transport et la localisation du panache, peuvent conduire à une meilleure gestion de la pollution notamment par la réduction des couts associés aux futurs travaux de dépollution. Dans le cadre de ce travail, l'approche par la modélisation visait aussi à positionner le plus précisément possible la zone source afin de déterminer le lieu de l'injection de la mousse.

Comme les modèles sont construits à partir des données de terrain, il existe une grande dépendance du modèle vis-à-vis de la qualité et du nombre de ces données (Bredehoeft, 2005). Le degré de contrainte fourni par une donnée de transport est supérieur à une donnée de charges hydrauliques. On peut notamment citer l'exemple du modèle de Martin et Frind (1998) où la vulnérabilité d'un aquifère multi-couche a été établie à partir de données de charge hydraulique ce qui conduit à des incertitudes sur les transferts verticaux entre entités aquifères. Bredehoeft (2005) suggère d'utiliser plusieurs types de données afin de réduire les erreurs conceptuelles. Il existe des exemples dans la littérature qui traitent de l'avantage d'ajouter différents types de données (Böhlke et Denver, 1995; Reilly *et al.*, 1994), et permettant d'affiner des modèles conceptuels précédemment établies (par exemple celui de Atteia *et al.* (2008)).

Nous avons souhaité illustrer les approches citées ci-dessus sur notre site d'étude. L'originalité de l'approche repose sur deux points :

1. L'utilisation de la répartition spatiale des composés parents et des métabolites afin de contraindre notre modèle de transport 3D

2. La modélisation détaillée du transfert vertical entre les aquifères qui semble être très localisées.

4.2.7 Paramétrisation du modèle

4.2.7.1 Schéma retenu

La transcription d'un modèle réel en un modèle numérique implique d'affecter à chaque cellule de la grille une valeur pour les différents paramètres régissant les processus simulés (Anderson *et al.*, 2015). En raison d'une incertitude assez forte sur certains paramètres, une phase de calibration du modèle numérique est généralement nécessaire. La sélection d'un schéma de paramétrisation est soumise au jugement du modélisateur. Parce que les systèmes géologiques ne sont jamais continus et uniformes (Webb et Anderson, 1996), il convient d'adapter les schémas de paramétrisation en fonction de la géologie. Plusieurs auteurs précisent que le transport des composés dissous dans les aquifères est contrôlé par les variations spatiales de la conductivité hydraulique (Dagan, 2012; Eaton, 2006; Sudicky, 1986). Dagan (1982, 1984); Fogg (1986); Fogg *et al.* (1998) suggèrent que les variations de vitesses à grande échelle (quelques dizaines de mètres) régissent les voies d'écoulement principales, tandis que les variations à petite échelle (> 1 m) tendent à disperser les contaminants et à augmenter la propagation latérale de celle-ci. Les processus de modélisation souffrent de la capacité limitée à décrire en détail le champ de conductivité hydraulique par des méthodes classiques telles que les essais de pompage ou les mesures de vitesses des eaux souterraines, qui ne donnent qu'une estimation très locale des propriétés hydrauliques. Ainsi, par définition, les modèles numériques sont simplifiés et ne peuvent être aussi détaillés que la réalité (Sudicky et Huyakorn, 1991). Au cours des années, de nombreuses recherches ont été menées afin de cartographier le champ de conductivité hydraulique et trois orientations principales ont été développées : modèles déterministes, modèles statistiques ou modèles stochastiques (Carrera *et al.*, 2005; De Marsily *et al.*, 2005; Koltermann et Gorelick, 1996; Renard *et al.*, 2009; Sanchez-Vila *et al.*, 2006) utilisés dans des problèmes directs ou inverses. Chaque approche présente des avantages et des inconvénients (Dagan, 1982; De Marsily *et al.*, 2005; Freeze, 1975). Selon Renard *et al.* (2009), aucune approche ne prévaut sur les autres et la sélection doit être pragmatique au regard des connaissances du site, des données acquises et du temps autorisé pour le projet. Plus généralement, les modèles statistiques sont souvent utilisés pour capturer un phénomène physique répétitif et observé par le passé à partir d'un jeu de données conséquent. Ces modèles se basent sur le concept qu'un évènement se produisant dans le passé à de fortes chances de se reproduire dans le futur. Si des événements extrêmes ne sont pas présents dans l'échantillon de données, la prédiction précise de ceux-ci dans le futurs est rendu impossible (De Marsily *et al.*, 2005). Les modèles déterministes sont souvent critiqués à cause de la proposition d'une "unique" solution pouvant conduire à l'impossibilité de quantifier les incertitudes. Les modèles stochastiques correspondent à un compromis entre les modèles statistiques et déterministes mais souffrent de très longs temps de calculs notamment dans le cas de modèle complexe ou une solution robuste nécessite un grand nombre de simulations.

Dans le contexte du site étudié, présentant de très fortes variations de conductivités hydrauliques, nous avons décidé d'adopter une approche déterministe im-

Tableau 4.1 : Paramétrisation du modèle de transport du site

Groupe	Paramètre	Schéma	Nombre
1	Conductivité hydraulique	Zones	25
2	Dispersivités longitudinale, transversale et verticale	Uniforme / Variable entre aquifères	3 - 5
3	Concentration de la zone source	Zone	1
4	Position et dimension de la zone source	Zone	1

pliquant l'estimation des paramètres suivants :

1. La conductivité hydraulique
2. Les dispersivités longitudinale, transversale et verticale
3. La concentration, la dimension et la position de la zone source

Le désavantage principal d'une telle approche réside dans l'incertitude de la solution.

Pour représenter spatialement les paramètres nous avons sélectionné le schéma de zonation. Compte tenu de la connaissance géologique du terrain, de la forte hétérogénéité et des potentiels passages préférentiels, nous avons estimé que les changements abrupts occasionnés par la zonation étaient plus adaptés à la géologie du site afin de paramétrer la conductivité hydraulique. Cette sélection a aussi été conforté par les observations de terrain où des variations de faciès lithologiques ont été mesurées sur de distances faibles (quelques dizaines de mètres) (tableau 4.1).

Le choix d'un modèle déterministe a été effecué pour deux raisons principales : (i) le temps de calcul élevé du modèle (>6h) rendant difficile les nombreuses simulations nécessaires pour un modèle stochastique (Hill *et al.*, 2016), (ii) la difficulté de l'outil PEST ((Doherty *et al.*, 1994)) à estimer des conductivités hydrauliques dans un domaine avec une très forte variabilité représentée par des zones et des changements brutaux.

4.2.7.2 Conductivité hydraulique

Au total, 25 zones sont distribuées sur le domaine modélisé pour représenter le champ de conductivité hydraulique. 15 zones sont définies pour l'aquifère quaternaire et 8 zones sont définies pour l'aquifère tertiaire alpha. Pour l'aquitard, 2 zones ont été définies pour représenter les potentielles infiltrations. Les zones ont été initialement placées suivant différentes observations :

1. La connaissance géologique et lithologique
2. Les données de pompages et de slug tests permettant de borner les valeurs de conductivité hydraulique

3. Les cartes piézométriques, notamment pour l'aquifère quaternaire où la disposition des isopièzes (fort et faible gradient hydraulique) suggère la présence de zones de faibles et fortes conductivités hydrauliques.

4. Les variations de charges hydrauliques, notamment dans l'aquifère tertiaire alpha où de fortes différences de charges sur de faibles distances peuvent traduire des zones d'infiltrations provenant de l'aquifère sus-jacent ou bien des transferts verticaux vers l'aquifère sous-jacent (partie bêta).

5. Le ratio entre les conductivités hydrauliques verticale et horizontale est fixé à 0,1.

Caractéristique de l'éponte séparant les deux aquifères : Compte tenu des différences de charges entre les deux aquifères, nous avons sélectionné une valeur de conductivité hydraulique pour l'aquitard proche d'une couche imperméable à 10^{-12} m.s^{-1}. Cependant, comme le montre le modèle conceptuel, des transferts peuvent exister entre les aquifères quaternaire et tertiaire. Ces transferts pourraient être justifiés par la présence de sable fin dans l'aquitard à certains endroits, observés très localement sur certains forages. Compte tenu des données géologiques, des zones de conductivités hydrauliques plus élevées très localisée au sein de l'aquitard ont été implémentées.

Incertitude liée au choix d'une modélisation en régime permanent : L'utilisation des conditions aux limites fixes entraine des incertitudes sur les valeurs absolues des conductivités hydrauliques. Pour pallier à cela, nous avons borné les zones de conductivités hydrauliques autour des valeurs mesurées lors des essais de pompages et de slug-tests (voir chapitre 3). De plus, les valeurs de vitesses mesurées à l'aide des PFMs ont permis de contraindre le modèle.

4.2.7.3 Paramètres relatifs au transport

Terme source

La source modélisée est constituée d'un élément : le TCE qui est exprimé en concentration molaire. Au regard du peu de connaissances sur le comportement de la zone source au cours du temps, nous avons fait l'hypothèse d'un relargage constant traduit par une concentration molaire dissoute constante dans le temps. Aucune cinétique de dissolution n'a été définie pour le terme source. La quantité, ni même l'extension en trois dimensions de la zone source n'a pu être déterminée par les sondages géologiques. Ainsi la surface de celle-ci apparaît très localisée (quelques mètres). Par ailleurs, s'agissant d'un composé plus dense que l'eau il est fort probable que la majorité du TCE se trouve au mur de l'aquifère quaternaire. Ainsi l'épaisseur de la zone source ne correspond pas à l'épaisseur de l'aquifère (figure 4.3).

La valeur de la concentration, la position, et l'extension de la zone source ont été considérées comme paramètres du modèle.

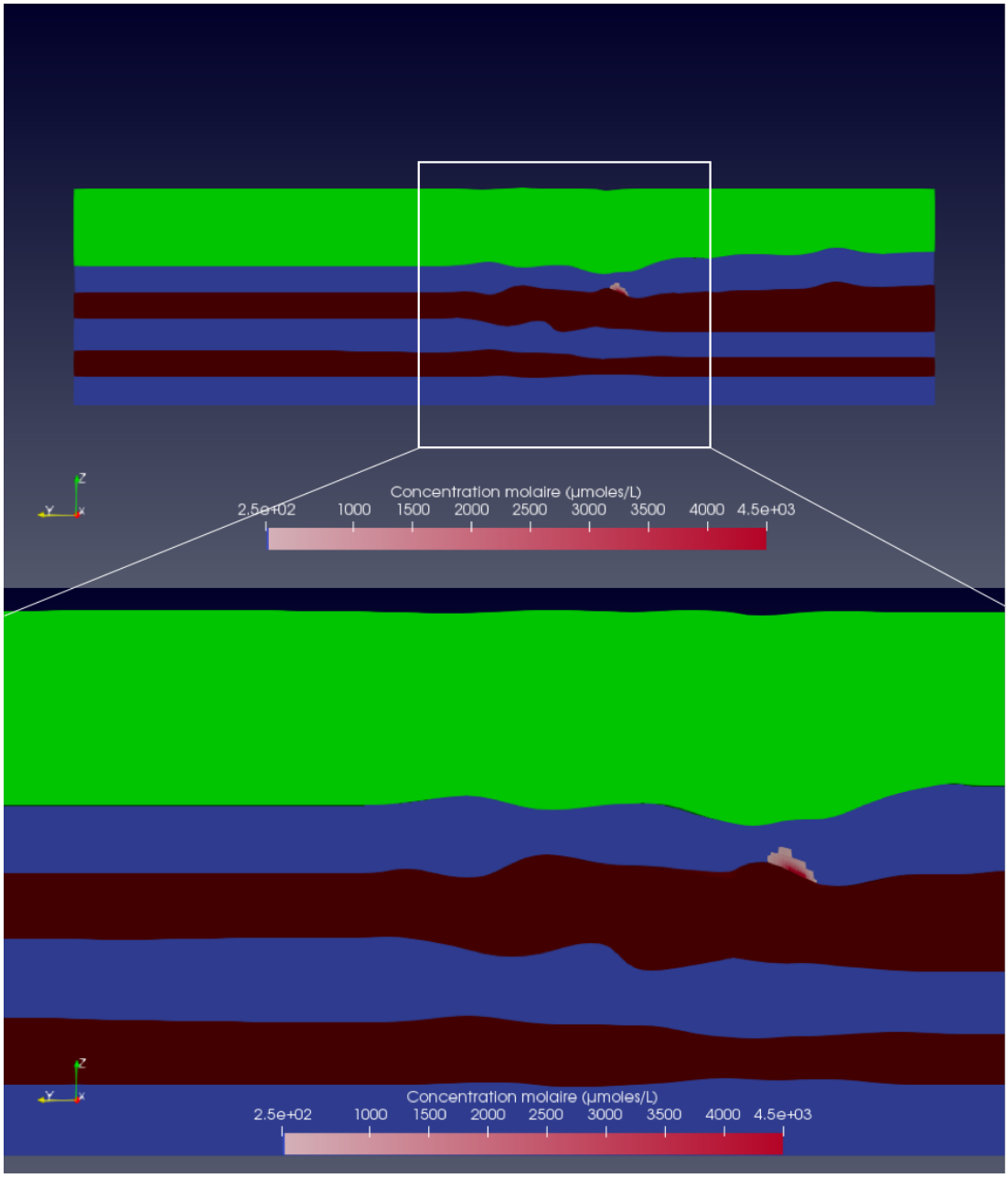

Figure 4.3 : Positionnement de la zone source sur la verticale. Une coupe suivant l'axe des x et passant par la zone source a été définie pour réaliser cette figure.

Transport : Comportement hydrodispersif

Les paramètres du transport ont été fixées en fonction des estimations présentées au chapitre 3. La porosité a été fixée initialement à 25%, bien que ce paramètre n'ayant pas été mesuré. Il s'agit d'une valeur courante pour des sables moyennement triés (Fetter, 2000).

Aquifère quaternaire. Compte tenu des premiers calculs (tableau 3.3), la dispersivité longitudinale a été initialement fixée à 2,5 m. La dispersivité transversale a été fixée à 0,25 m. La dispersivité verticale a été fixée à 0,125 m.

Aquifère tertiaire. Compte tenu des premiers calculs, la dispersivité longitudinale a été initialement fixée à 3 m pour l'aquifère tertiaire. Pour le Dis mod et le Vbc mod, le ratio α_L/α_T a été borné entre 0,1 et 0,33.

4.2.8 Choix des données pour la calibration du modèle numérique

L'analyse de l'évolution temporelle des concentrations suggère que les résultats de la campagne d'octobre 2015 pourraient être utilisés comme référence pour la procédure de modélisation. Cette campagne correspond à la période durant laquelle la densité spatiale des données d'observations (charge hydraulique et concentration en solvants chlorés) était maximale. De plus la campagne sélectionnée semble s'inscrire dans la tendance globale sans véritable déviation (Figure 4.4).

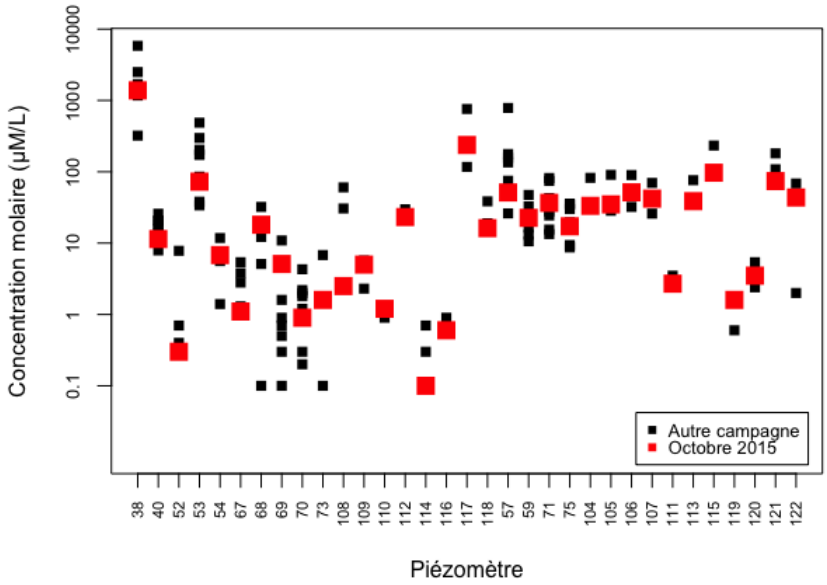

Figure 4.4 : Données de concentrations molaires (µM/L) pour l'ensemble des piézomètres du site

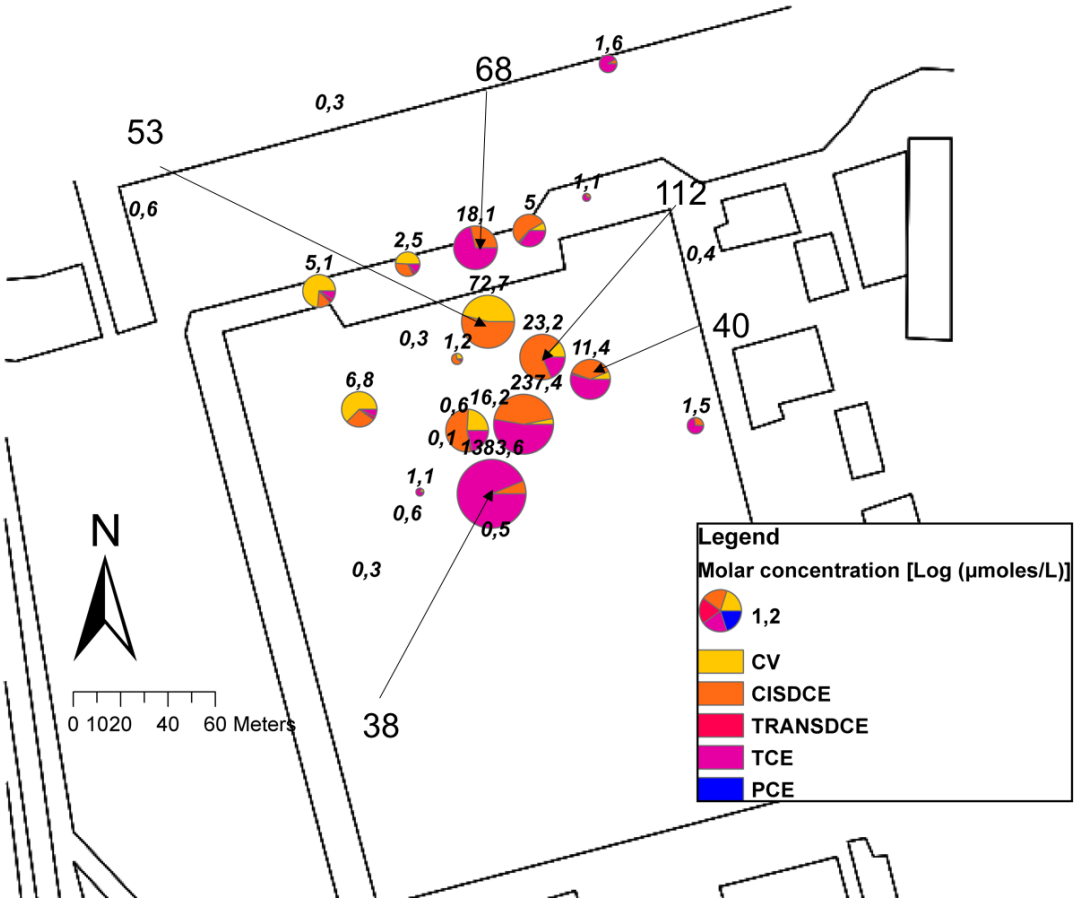

Figure 4.5 : Distribution spatiale des SC dans l'aquifère quaternaire pour la campagne d'octobre 2015. Le diamètre des disques est proportionnel au logarithme de la concentration molaire, tandis que le découpage de ce même diagramme définit le pourcentage de chaque métabolite par rapport à la concentration molaire totale

La figure 4.4 montre tout de même que les concentrations peuvent varier significativement au cours du temps comme dans de nombreux sites contaminés (Graber *et al.*, 2008; Rivett et Allen-King, 2003; Rivett *et al.*, 1990). Cependant, en raison de la lente vitesse de l'eau souterraine, ces variations ne semblent pas indiquer une tendance à long terme, mais plutôt des différences liées à l'échantillonnage, des erreurs analytiques ou de légères différences dans la position latérale du panache (Cirpka et Kitanidis, 2000; Verardo *et al.*, 2017).

Sur la base de l'analyse de l'échantillonnage de l'eau d'octobre 2015, une forte concentration molaire en SC (1386 μM/L) a été enregistrée dans le piézomètre 38 (zone source située dans l'aquifère quaternaire). Dans ce puits, le composé principal est le TCE tandis que les composés dégradés représentent seulement 6,7% de la quantité molaire totale (figure 4.5).

Le panache de SC semble suivre la direction générale des eaux souterraines établie à l'aide des cartes piézométriques, avec cependant une redirection vers le piézomètre 117 (237 μM/L). Comme précisé dans le modèle conceptuel, en aval hydraulique, deux zones différentes peuvent être identifiées : vers le nord de la source, une zone à forte dégradation (piézomètres 53 et 112) liée à une phase huileuse flottante identifiée qui conduit à la majorité de cis-DCE et CV et, vers l'est, une zone sans dégradation (piézomètre 40) avec une part majeure de TCE. En tenant compte des données historiques et de la position de l'ancien réservoir de TCE, nous supposons que la zone source, proche du piézomètre 38, a généré un unique panache qui s'élargit ou se digite rapidement à l'aval alors que la dégradation semble se produire uniquement à certains endroits. Dans le modèle numérique les concentrations cibles seront les sommes molaires de SC, afin de déterminer les paramètres du transport sans interférences avec les phénomènes de dégradation. Cependant ces différences de composition conduisent à des contraintes en termes d'écoulement, c'est-à-dire que les points d'observations contenant majoritairement du TCE ne peuvent être situés à l'aval de points majoritairement chargés en produits de dégradation. Cette contrainte a dû être suivie par ajustement manuel, étant difficile à rentrer dans un programme d'optimisation tel que PEST.

Dans l'aquifère tertiaire alpha, les concentrations molaires enregistrées sont plus homogènes (figure 4.6). Une majorité de TCE est analysée pour les eaux échantillonnées dans l'aquifère tertiaire alpha. Comme signalé dans le modèle conceptuel, la source de TCE ne semble pas être située dans cet aquifère, ni provenir directement de la zone source du quaternaire, mais plutôt d'une zone située proche du piézomètre 40. De même que pour l'aquifère quaternaire, cette contrainte en terme d'écoulement sera prise en compte dans le modèle numérique lors de l'analyse manuelle des résultats.

Cette distribution semble stabilisée car elle a été confirmée par d'autres campagnes de prélèvements (en aout 2015 et février 2016).

4.2.9 Etapes de modélisation

Initialement, les charges hydrauliques modélisées ont été ajustées aux valeurs observées en utilisant MODFLOW-2000 par méthode essai-erreur. Les conductivités hydrauliques ont été assignées à différentes zones dans l'aquifère quaternaire au regard des tests de pompage, des slug tests, et de la disposition des isopièzes. Comme indiqué précédemment, des zones de conductivité hydraulique élevées représentant des zones d'infiltration verticale ont été assignées à l'aquitard à partir de coupes géologiques et des données piézométriques dans l'aquifère tertiaire alpha. Le modèle d'écoulement a d'abord été calibré en utilisant uniquement des données de piézométrie. Malheureusement, le modèle de transport était impossible à calibrer à partir du modèle d'écoulement calibré.

Ainsi la procédure de calage a été poursuivie par l'ajout des données de transport. Dans un premier temps un calage de l'aquifère quaternaire a été réalisé, avec des zones permettant la digitation du panache. Cependant l'ajout d'une

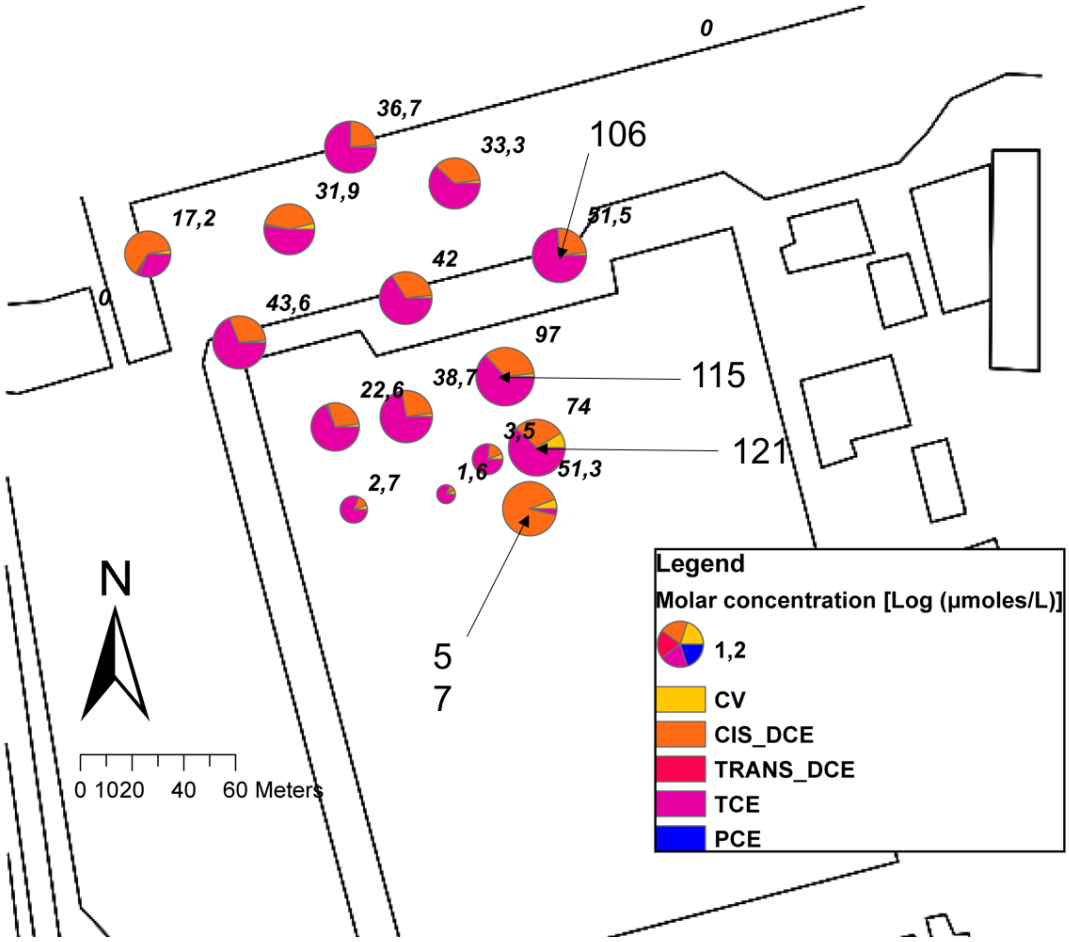

Figure 4.6 : Distribution spatiale des SC dans l'aquifère tertiaire pour la campagne d'octobre 2015. Le diamètre du disque est proportionnel au logarithme de la concentration molaire, tandis que le découpage de ce même diagramme définit le pourcentage de chaque métabolite par rapport à la concentration molaire totale

zone d'infiltration importante permettant de générer le panache dans le tertiaire modifiait très significativement les résultats dans le quaternaire. Au final, le calage a donc dû être effectué à l'échelle globale, c'est à dire en tenant compte des deux aquifères et à la fois de l'écoulement et du transport. En raison du long temps de calcul (> 6 h) et de la difficulté à réaliser une estimation automatique des paramètres, comme signalé précédemment, le calage obtenu n'est pas parfait mais reproduit cependant les tendances majeures de l'hydrodynamique et du transport sur ce site complexe.

4.3 Résultats

4.3.1 Calibration du modèle d'écoulement et de transport

Le modèle d'écoulement reproduit raisonnablement la plupart des charges hydrauliques observées en octobre 2015 pour l'aquifère quaternaire (figure 4.7). Des différences importantes sont présentes entre les charges hydrauliques simulées et observées dans l'aquifère tertiaire malgré une bonne reproduction de la distribution SC. Cette différence peut être associée à la conception des piézomètres. En effet, le niveau supérieur des crépines des piézomètres est souvent placé au-dessus du niveau supérieur de l'aquifère tertiaire alpha, parfois sur plus de 50 cm. Ceci conduit à des mesures qui ne correspondent pas aux charges de l'aquifère alpha en raison de très forts gradients verticaux au sein de l'éponte.

Les conductivités hydrauliques calibrées pour l'aquifère quaternaire se situent entre 5 x 10^{-7} et 8 x 10^{-5} m.s^{-1}, ce qui représente bien la variabilité des sédiments observée sur le terrain. Pour l'aquifère Alpha tertiaire, les conductivités hydrauliques se situent entre 1 x 10^{-6} et 5 x 10^{-5} m.s^{-1}.

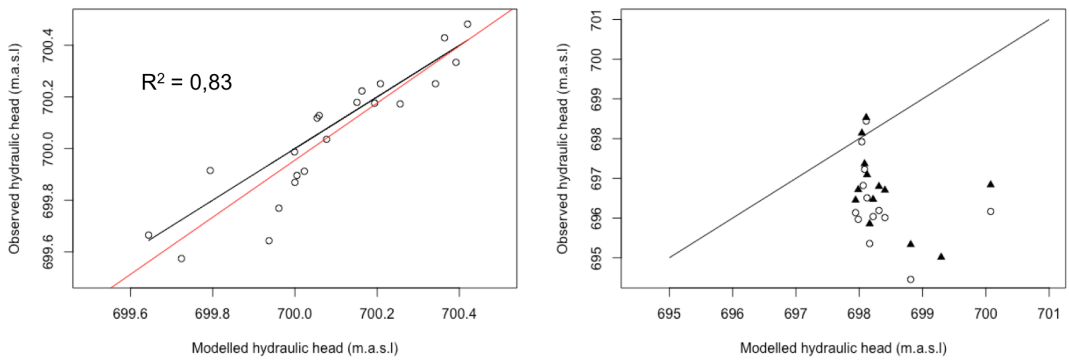

Figure 4.7 : Calibration du modèle d'écoulement pour l'aquifère quaternaire (à gauche) et pour l'aquifère tertiaire alpha (à droite). Les triangles noirs correspondent aux résultats du Dis mod, tandis que les cercles correspondent au Vbc mod.

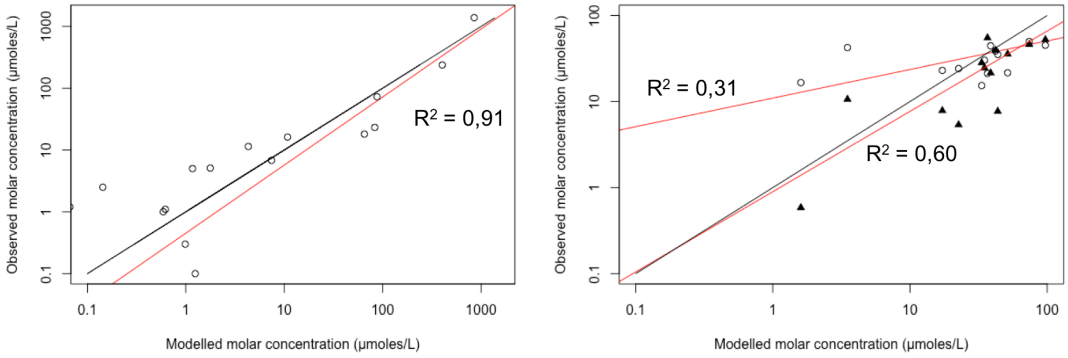

Figure 4.8 : Calibration du modèle de transport pour l'aquifère quaternaire (à gauche) et pour l'aquifère tertiaire alpha (à droite). Les triangles noirs correspondent aux résultats du Dis mod, tandis que les cercles correspondent au Vbc mod.

Le modèle de transport calibré reproduit également la plupart des caractéristiques de la distribution de concentrations molaires en SC observées en octobre 2015 pour les deux approches (figures 4.8, 4.9 et 4.10).

4.3.2 Processus hydrogéologiques régissant le développement des panaches

4.3.2.1 Aquifère quaternaire

La distribution de SC modélisée dans l'aquifère quaternaire est obtenue en utilisant un changement abrupt des zones de conductivité hydraulique. Ce changement est en accord avec les observations et le système de dépôts alluvionnaires du site (figure 4.11). Comme discuté précédemment, dans l'aquifère quaternaire, la partie Est du panache est principalement composée de TCE tandis que la zone nord contient principalement du cis-DCE et VC. Ceci est la conséquence de zones de faible conductivité hydraulique qui séparent le panache en deux parties. La partie orientale (puits 117, 40, 67, 73) est marquée par une diminution rapide de la concentration molaire en SC. Cette diminution est liée à une infiltration majoritaire du TCE vers l'aquifère tertiaire décrite ci-après. Les processus de biodégradation présents dans la partie du panache plus à l'Ouest, correspondent à un écoulement vers le nord de cette partie de panache. En effet cette partie du panache traverse une zone contaminée par des hydrocarbures pétroliers (support organique permettant la dégradation du TCE et ce jusqu'au CV).

La largeur du panache de SC dans l'aquifère quaternaire est frappante, étant donné qu'elle provient d'une zone de source très locale, de seulement quelques m^2. Cette caractéristique est le résultat du champ de conductivité hydraulique hautement hétérogène qui tend à créer une digitation du panache.

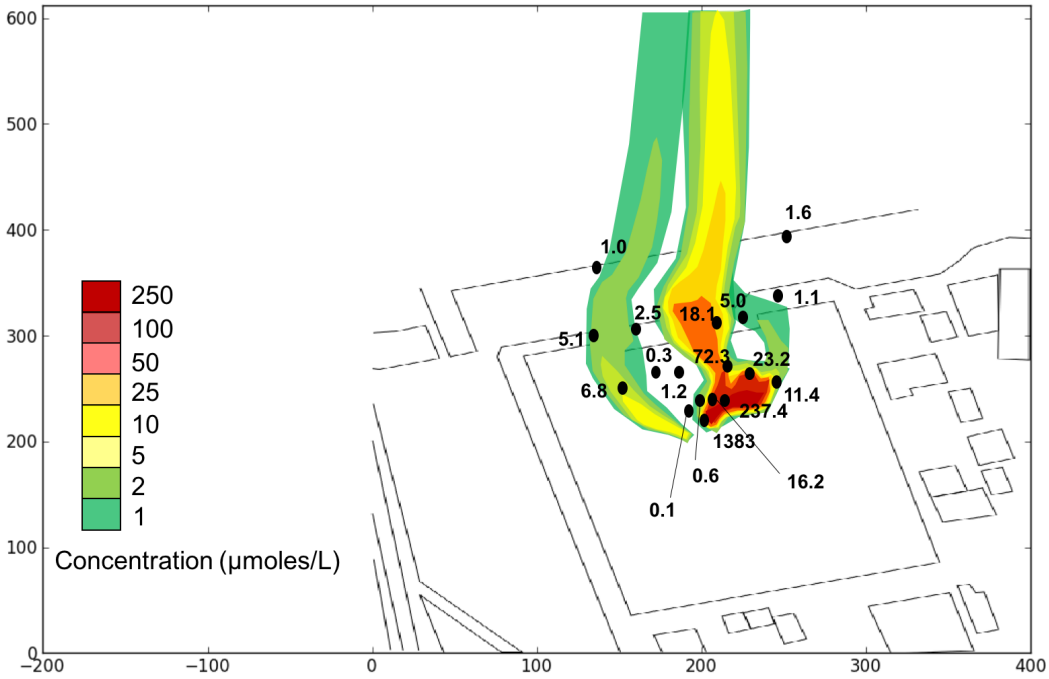

Figure 4.9 : Panache modélisé pour l'aquifère quaternaire. Le temps de simulation a été fixé à 45 ans

Par ailleurs, cette propagation est attribuée au fait que la zone source est située au droit d'une zone relativement perméable, et entouré par des bancs plus limoneux/argileux. Il s'agit là d'un "tunnel" et les eaux souterraines s'écoulent le long de celui-ci, entrainant un flux de polluant important. Au sortir de la zone source, de par la répartition spatiale de la conductivité hydraulique des bancs argileux, les écoulements divergent de plus de 90° sur une distance inférieure à 25 m. Ce schéma est tout à fait cohérent avec le resserrement des isopièzes ainsi que leur orientation, observée sur les cartes piézométriques aux abords de la zone source.

4.3.2.2 Infiltration proche de la zone source

Le calage du modèle conduit à une disparition rapide des SC dans la partie Est du panache quaternaire, liée à une zone très localisée d'infiltration dans l'aquitard qui entraîne une voie de transport préférentielle pour les SC vers l'aquifère tertiaire. Cette voie de transfert avait été supposée dans le modèle conceptuel. L'emplacement (proche de la zone source, et située entre les piézomètres 117 et 40) et l'étendue (10 m) de la zone d'infiltration a été un point très important du calage du modèle afin de produire un important flux de TCE vers l'aquifère Alpha tertiaire en raison de la différence de charge verticale (> 1,5 m).

Les données de charges hydrauliques et de concentrations ont tendance à confirmer la présence des zones d'infiltration via l'aquitard, et ce conformément

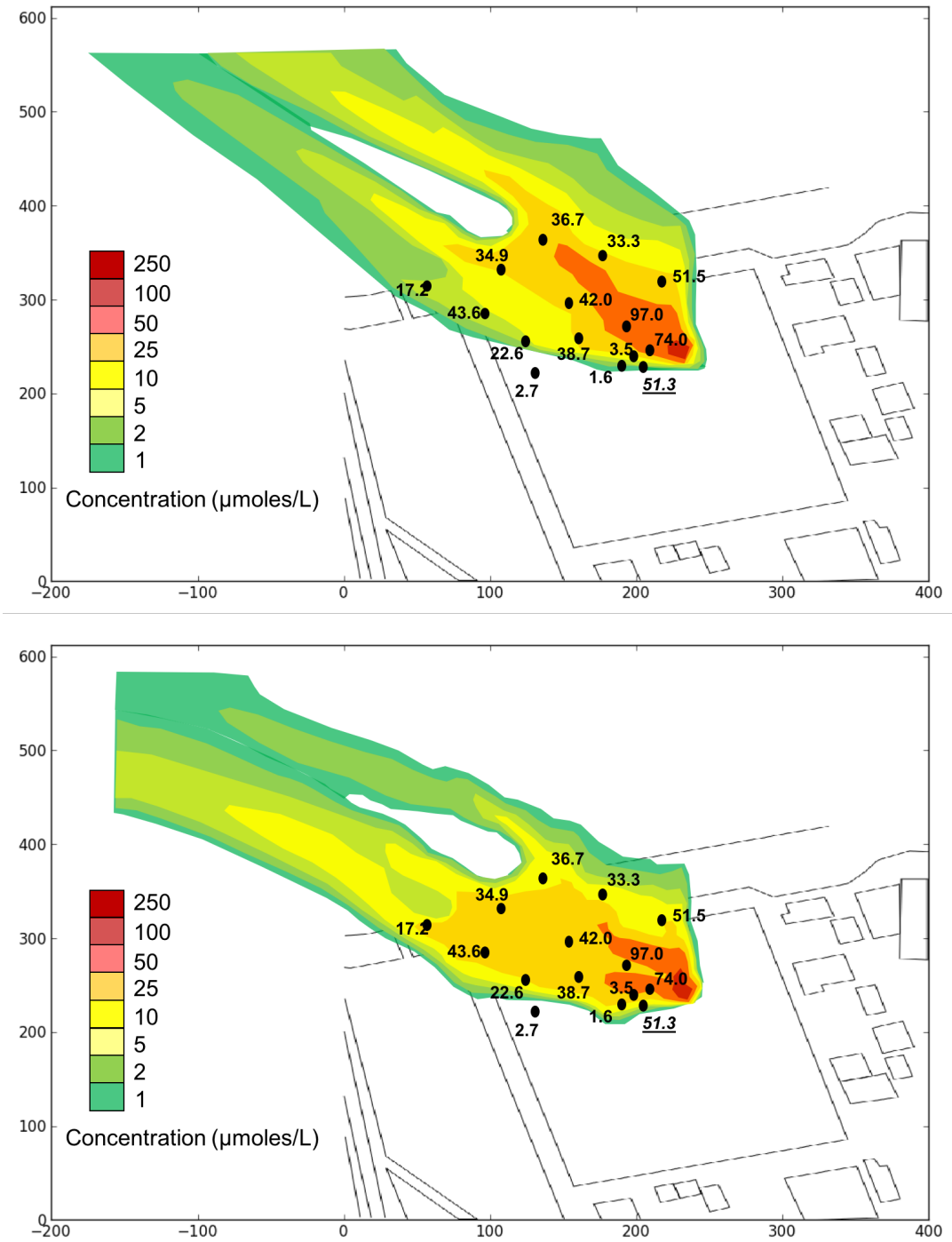

Figure 4.10 : Panache modélisé pour l'aquifère tertiaire alpha. (En haut) Résultats obtenus pour le Dis mod, (en bas) résultats du Vbc mod. Le temps de simulation a été fixé à 45 ans

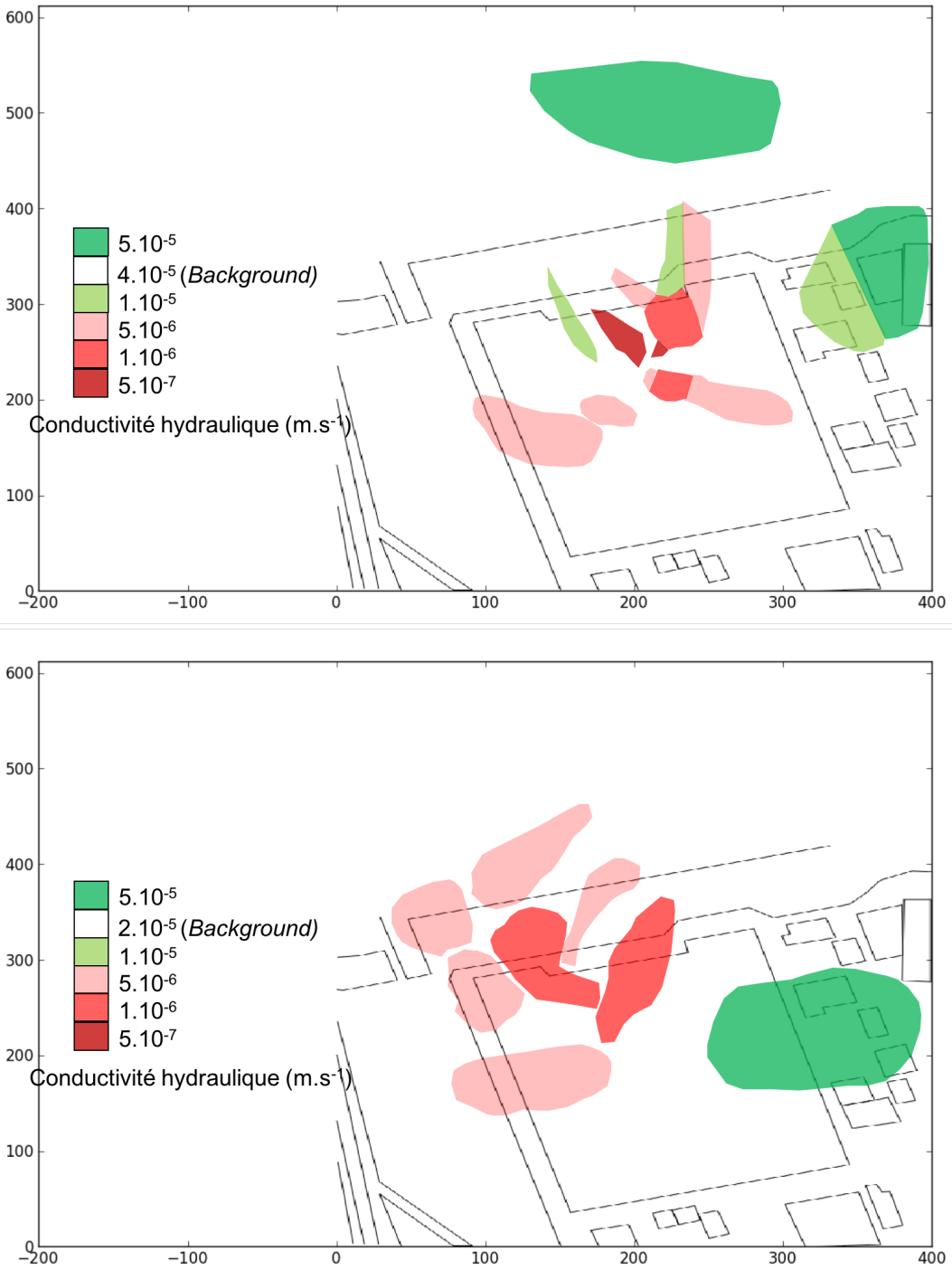

Figure 4.11 : Champ de conductivité hydraulique pour l'aquifère quaternaire (en haut) et pour l'aquifère tertiaire alpha (en bas).

à la structure géologique. La présence de ces zones complexifie notablement le modèle d'écoulement. Les zones d'infiltrations modélisées ont été déduites des différentes coupes géologiques et des charges hydrauliques, cependant leur position précise reste sujette à caution si peu de forages sont situés à proximité. Par ailleurs d'autres zones peuvent exister à des endroits où l'information est manquante.

Il était très difficile de construire un modèle pouvant reproduire un flux de SC équivalent à ∼67% dans l'aquifère tertiaire avec seulement ∼3% des SC s'écoulant en aval hydraulique de la zone d'infiltration dans l'aquifère quaternaire). Ce schéma comportait des contraintes importantes sur la localisation de la source et sur la dispersion verticale. En considérant que la source de TCE était présente sur toute l'épaisseur de l'aquifère, le flux aval à la zone d'infiltration dans l'aquifère quaternaire (piézomètre 40) était fortement surestimé. Seule la combinaison d'une zone source de 10 cm d'épaisseur à la base de l'aquifère quaternaire et une faible dispersivité verticale (0,075 m), cohérente avec la littérature (Gelhar *et al.*, 1992) ont permis de reproduire les flux observés.

4.3.2.3 Aquifère tertiaire alpha

Dans l'aquifère tertiaire alpha, le transfert TCE se fait globalement du sud-est au nord-ouest malgré des distributions de charges hydrauliques hétérogènes.

Le panache de TCE relativement large avec des concentrations quasi homogènes n'a pas pu être reproduit avec l'utilisation d'une conductivité hydraulique homogène, même en augmentant la dispersivité latérale. L'incorporation de zones de faible conductivité hydraulique orientées perpendiculairement à l'axe du panache observé (figure 4.11) permet l'étalement du panache modélisé et d'atteindre une meilleure reproduction des concentrations observées. Dans Dis mod, α_T a été réglé à 0,4 m, soit une valeur 3 fois plus élevée que la dispersivité latérale de l'aquifère quaternaire.

L'étalement du panache de SC peut aussi être simulée lorsque des variations dans les directions d'écoulements ont été ajoutées (Dentz et Carrera, 2005; Prommer *et al.*, 2002). Une variation annuelle de la charge hydraulique (correspondant à la configuration haute et basse eaux) combinée à un changement de direction de +/- 36 ° (à partir de la direction du flux en régime permanent) permet de reproduire les caractéristiques majeures du panache dans l'aquifère tertiaire. Cette approche offre une autre possibilité de fonctionnement malgré une corrélation plus faible entre les valeurs de concentrations modélisées et observées. Dans le Vbc mod, α_T était égal à la valeur de dispersivité de l'aquifère quaternaire. Compte tenu de la fréquence des données acquises, ces processus sont difficiles à établir et sont approximativement approchés dans le modèle 3D.

Les résultats des deux approches suggèrent un comportement macro-dispersif plus marqué que l'aquifère quaternaire, s'expliquant soit par une variation de la direction de l'écoulement (jusqu'ici non identifiée clairement par les mesures piézométriques) soit par la répartition hétérogène des propriétés hydrogéologiques conduisant à des écoulements très hétérogènes.

4.3.3 Critiques du modèle

Dans ce travail, un modèle 3D de transport a été développé, de manière à reproduire les processus régissant le développement de panaches au sein d'un aquifère multi-couches. La calibration essentiellement effectuée par essai erreur a permis de définir les processus régissant le transport des SC. Il a permis de mettre en évidence la présence d'une seule source de pollution responsable du développement des panaches dans l'aquifère quaternaire et l'aquifère tertiaire alpha. Bien que la compréhension du système est été grandement améliorée, beaucoup d'incertitudes sont associées à ce modèle.

Tout d'abord le choix de la zonation pour la paramétrisation de la conductivité hydraulique peut présenter un nombre important de contraintes. Bien que suggéré par les informations de terrain, ce schéma pourrait être revu et modifié pour permettre plus de flexibilité. En effet, l'utilisation de programme d'estimation automatique des paramètres (PEST par exemple) semble plus difficile avec des zones de fortes variations de conductivité hydraulique. D'autres schémas de paramétrisation peuvent être utilisés comme les points pilotes (de Marsily *et al.*, 1984; Doherty, 2003). Cependant sur le site considéré, l'hétérogénéité entrainerait l'utilisation de nombreux points pilotes et donc de nombreuses simulations. Sachant que le temps de calcul pour 45 ans de simulations est de l'ordre de 6 heures, ceci implique un temps de calibration très long.

Par ailleurs, l'utilisation d'un modèle d'écoulement en régime permanent entraîne une incertitude dans les valeurs absolues de la conductivité hydraulique, ce qui entraîne une incertitude sur la longueur du panache. Ces incertitudes ont été réduites grâce aux mesures directes des vitesses des eaux souterraines par PFM, mais il reste une incertitude d'au moins un facteur deux, qui se traduit par la même incertitude sur la longueur du panache simulé.

En ce qui concerne les concentrations observées, l'hypothèse d'une zone source relarguant en continu une concentration fixe est certainement trop simplifiée, entrainant des erreurs sur les concentrations estimées en aval car celles-ci sont directement dépendantes de la concentration de la zone source fixée.

Enfin, le choix de la méthode de calibration par essai erreur conduit à une seule solution de modélisation. Il s'agit d'une étape primordiale car elle apporte au modélisateur une perspicacité accrue et permet de démontrer rapidement si un modèle conceptuel ne correspond pas aux observations. Dans cet exemple de terrain, le modèle présentant des flux complexes dans et entre les couches aquifères ne pouvait être résolu sans l'utilisation de données chimiques. Pour ce type de site hétérogène, l'utilisation de la modélisation inverse s'est révélée assez inefficace dans un premier temps. Les hypothèses initiales incluant la zonation et les variations importantes de conductivité hydraulique rendaient l'approche inverse particulièrement instable. Les passages préférentiels identifiés, soit vers l'est, soit entre les aquifères étaient difficiles à inclure dans la démarche d'estimation. Cependant une approche de type PEST pourrait être envisagée à partir du modèle actuel afin d'éventuellement obtenir un meilleur calage, et surtout d'avoir une estimation des incertitudes sur les paramètres. Il reste cependant des points im-

portants à identifier pour obtenir un calage complet. Par exemple, nous avons souligné que les charges de l'aquifère tertiaire étaient mal calées, en raison certainement du positionnement des crépines dans ces forages. Si ce point n'est pas mieux caractérisé le calage peut être conduit en minimisant les poids de ces données d'observations, ce qui conduirait à un modèle similaire à celui proposé. A l'inverse, en conservant les poids attribués à ces données on obtiendra, comme actuellement une incohérence entre l'objectif de calage des charges et celui du calage des concentrations. Ce point illustre bien la difficulté des approches d'estimation de paramètres en milieu hétérogène complexe. Elles nécessitent un modèle conceptuel clair et ne sont pas aptes à en générer un autre. L'utilisateur doit donc proposer un nouveau modèle conceptuel si le calage reste faible avec PEST. La porte de sortie consiste à ajouter des données, comme ici celles de géochimie, et/ou à proposer plusieurs modèles conceptuels, qui sont en général liés à la méthode de traitement des hétérogénéités de perméabilité, et à les comparer. Nous n'avons pas pu mettre en place cette approche faute de temps, mais ceci pourrait être réalisé à l'avenir sur ces données.

Synthèse 1/2

La construction du modèle d'écoulement et de transport présente les caractéristiques suivantes :

- La sélection d'un modèle numérique en 3 dimensions ;
- Ce modèle est construit à partir des données géologiques acquises sur le terrain (sondages géologiques et forage de piézomètres), où les toits de chaque couches ont été renseignés et interpolés pour définir une structure réaliste ;
- Paramétrisation des propriétés hydrodynamiques et de transports suivant un schéma de zonation, et définies au regard de la connaissance du site ;
- Un calage essentiellement réalisé par une approche essai-erreur ;

L'étape de calibration fournit les résultats suivants :

- Une compréhension améliorée du système multi-couches ;
- Pour l'aquifère quaternaire, le développement du panache est régit par l'existence de voies de transfert préférentielles, conduisant à une digitation du panache ;
- Un transfert important et localisé au sein de l'aquitard, comme support d'alimentation de l'aquifère tertiaire alpha en SC ;
- Pour l'aquifère tertiaire, un étalement du panache régit par un comportement macro-dispersif dû soit à des variations de directions d'écoulements, soit par une dispersivité latérale élevée (en comparaison avec l'aquifère quaternaire) ;
- La présence d'une zone source localisée dans l'aquifère quaternaire, alimentant l'aquifère quaternaire et l'aquifère tertiaire via une zone d'infiltration ;
- La source semble de faible envergure et localisée au droit d'une zone ou la configuration entraine un flux important de polluant en aval ;

Synthèse 2/2

Des incertitudes et des voies d'améliorations apparaissent de ce calage :

- Définition des comportements transitoires des aquifères plus approfondies, ceci permettant de définir un champ de conductivité hydraulique plus exhaustif ;
- Amélioration du calage possible par l'estimation des paramètres via des algorithmes implémentés dans la suite PEST ;
- Une quantification possible de l'incertitude pour valider la cohérence du modèle ;

Chapitre 5

Approche multi-échelles pour la définition des conditions d'injection de la mousse dans un contexte de remédiation environnementale

5.1 Contexte

Comme exposé dans le chapitre 2, la présence de DNAPLs dans les sols et les eaux souterraines est causée par des déversements accidentels et représente une source de contamination persistante à long terme. Les propriétés chimiques inhérentes telles que la faible solubilité, la densité élevée et l'adsorption à la matrice du sol de ces composés les rendent particulièrement problématiques (Wiedemeier, 1999). De même, l'hétérogénéité entre différentes zones aquifères conduit à des DNAPLs piégés et résiduels, qui sont difficiles à éliminer par les techniques classiques. L'utilisation de mousse apparait comme une alternative pour éliminer avec succès ces sources DNAPLs des aquifères (Atteia *et al.*, 2013; Wang et Mulligan, 2004).

La présente étude vise à utiliser la mousse comme agent bloquant, pour confiner une source de contaminants. Dans un système diphasique (gaz/eau+tensioactif), la propriété de blocage de la mousse est liée à sa capacité à limiter l'écoulement de l'eau dans une zone remplie de mousse. Par conséquent, la propriété principale à étudier est alors la perméabilité relative à l'eau, c'est-à-dire k_{rw}, qui définit la capacité de l'eau à s'écouler dans un milieu poreux en présence d'écoulements multiphasiques. Cette propriété est couramment liée à la saturation en eau S_w comme exposée dans le chapitre 2. L'objectif principal de cette étude est donc de définir les meilleures conditions pour atteindre des valeurs faibles de k_{rw} après une injection de mousse. Pendant un processus d'injection au laboratoire ou sur le terrain, la résistance de la mousse peut être déterminée par les mesures de pression. Un gradient de pression important implique la génération d'une mousse forte ou

strong foam, entrainant une plus grande résistance des fluides à l'écoulement. La réduction de la mobilité par la formation de mousse est classiquement mesurée par le *resistance factor* (RF) qui est le rapport entre la pression nécessaire pour injecter de la mousse à l'état stationnaire, et la pression nécessaire pour injecter de l'eau. Ce ratio est valable pour un débit total équivalent (Chou *et al.*, 1991) (équation 5.1).

$$RF = \frac{\Delta P_{mousse}}{\Delta P_{eau}} \tag{5.1}$$

Le RF est fonction de plusieurs paramètres tels que le tensioactif, sa concentration, le débit total d'injection (Gauglitz *et al.*, 2002) mais aussi fonction de la qualité de la mousse f_q correspondant au rapport entre le gaz injecté et la fraction d'eau (Chowdiah *et al.*, 1998; Mulligan et Eftekhari, 2003).

L'une des principales limites de l'injection de mousse pour la remédiation environnementale est la contrainte de pression. Contrairement à l'industrie pétrolière, les applications environnementales se déroulent près de la surface et la plupart des injections sont effectuées dans des puits de petit diamètre et ne peuvent supporter une pression supérieure à quelques bars, généralement de 4 à 5 bar (pression relative). Or, la faible perméabilité des milieux poreux et un RF élevé tendent à augmenter la pression d'injection (Chou *et al.*, 1991; Del Campo Estrada *et al.*, 2015; Gauglitz *et al.*, 2002; Pang, 2010).

Plusieurs auteurs ont étudié l'impact du type de gaz sur la génération de mousse (Farajzadeh *et al.*, 2011; Gauglitz *et al.*, 2002; Maire *et al.*, 2015) et concluent qu'une mousse de CO_2 implique une pression d'injection plus faible que les mousses de N_2.

Chowdiah *et al.* (1998) ont constaté que l'utilisation d'une mousse de qualité de 99 % implique des gradients de pression plus faibles, alors qu'elle est capable de réduire la saturation de la phase liquide à 7 % (du volume de pore totale), tandis que la qualité de la mousse de 87 % conduit à une saturation de 34 %. Cela suggère que pour une qualité de mousse plus élevée, la teneur en liquide est plus faible après le passage de ce type de mousse. Estrada (2014) a montré une réduction similaire de la saturation en eau en utilisant une qualité de mousse de 95 % à 99 % pour différentes formulations de tensioactifs (en utilisant Triton X-100 et Sucrose Laurate C-1216). Cette tendance a aussi été montrée par Tang et Kovscek (2006).

L'objectif de l'étude expérimentale est d'atteindre une réduction significative du k_{rw} pour une valeur de RF qui permette l'injection de mousse en contexte environnemental. Par ailleurs, dans l'optique de l'application sur le terrain, nous avons fixés une contrainte supplémentaire au niveau du choix du tensioactif. Le choix du tensioactif doit répondre aux critères de biodégradabilité et avoir un prix relativement faible pour assurer la validité économique du process.

La première partie de l'étude a été réalisée dans des colonnes où une mousse, principalement défini par une haute valeur de RF, a été générée dans un milieu poreux bien caractérisé. Ensuite, des expériences de drainage successives ont été

menées pour définir la courbe k_{rw} en fonction de la saturation en eau S_w.

La deuxième partie de l'étude a été effectuée dans un pilote 2D, afin de définir la réduction de la saturation en eau S_w le long d'un profil d'injection.

Enfin des tests ont été effectué dans des puits où plusieurs types d'injection ont été employés (co-injection, *surfactant alternating gas* (SAG), mousse pré-générée). Les contraintes de pression ont été prises en compte en injectant une mousse impliquant une pression d'injection plus faible. Ensuite, des mesures in-situ ont été réalisées pour calculer la valeur de k_{rw}. Cette propriété a également été suivie dans le temps pour estimer l'efficacité à long terme de l'injection de mousse. Afin de tester le rayon de l'influence de la mousse, une modélisation du retour de l'eau à l'équilibre dans le puits d'injection a été effectuée.

5.2 Matériels et méthodes

5.2.1 Milieu poreux

5.2.1.1 Colonne et pilote

Les expériences en colonne et en pilote ont été menées en utilisant un sable fin homogène non consolidé.

La courbe granulométrique a été obtenue en laboratoire (figure 5.1).

Les propriétés hydrodynamiques ont été déterminées par une injection d'eau dans une colonne pour déterminer la conductivité hydraulique (K) à partir de la loi de Darcy, et suivie d'une expérience de drainage de la même colonne pour déterminer la saturation irreductible en eau (S_{wi}) et la pression d'entrée capillaire (P_{ce}) (tableau 5.1) (cf. Annexe). Les deux dernières propriétés ont été utilisées pour déterminer les paramètres α et m_{vg} dans l'expression de la courbe de pression capillaire Van Genuchten. Le paramètre α est directement associé à la pression capillaire d'entrée, tandis que le paramètre m_{vg} est associé à la distribution des tailles des pores (équation 2.17). Traduit dans le modèle de perméabilité relative de Mualem (équation 5.2), le paramètre m_{vg} définit la relation entre k_{rw} et S_w.

$$k_{rw} = S_{we}^{1/2}\left(1-(1-S_{we}^{1/m_{vg}})^{m_{vg}}\right)^2 \tag{5.2}$$

avec S_{we} correspondant à la saturation en eau effective et égale à S_w - S_{wi}.

5.2.1.2 Terrain

Les expériences en trois dimensions ont été menées sur deux sites expérimentaux différents. Le site 1 correspondant au champ expérimental de l'ENSEGID, et le site correspondant au site présenté dans le chapitre 3. Ainsi deux aquifères ont pu être testés avec des configurations différentes.

Site 1. Le site 1 correspond à une aquifère libre et homogène. Les propriétés du milieu poreux sont semblables (en termes de granulométrie) au sable utilisé pour les expériences en laboratoire. La conductivité hydraulique mesurée au puits d'injection est de l'ordre de 10^{-4} m.s^{-1}.

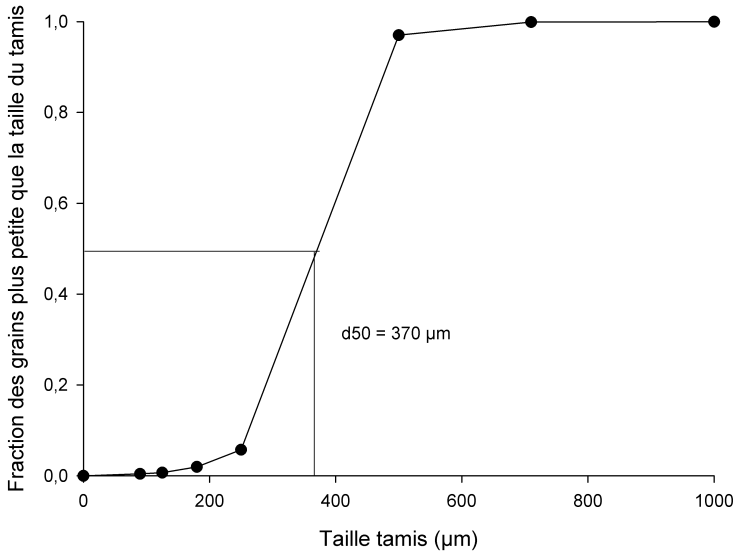

Figure 5.1 : Courbe granulométrique du sable utilisée pour les expériences en colonne et en pilote, avec détermination du diamètre nominal

Tableau 5.1 : Propriétés du sable utilisé pour les expériences en laboratoire

Propriété	**Valeur**
Diamètre des grains [mm]	0.25-0.50
ϕ	0.31
K $[m.s^{-1}]$	9.5×10^{-5}
S_{wi}	0.107
P_{ce} [Pa]	3920
α [Pa^{-1}]	1.06×10^{-4}
m_{vg}	0.80

Site 2. Comme décrit dans le chapitre 3, le site 2 correspond à un aquifère hétérogène et confiné au droit du puits d'injection testé (aquifère quaternaire du site d'étude présenté au chapitre 3). La taille des grains varie de 0,08 mm jusqu'à 6,3 mm avec un d50 = 0,5 mm. La conductivité hydraulique mesurée au puits d'injection est de l'ordre de 10^{-5} m.s^{-1}.

5.2.2 Fluides

5.2.2.1 Tensioactifs

Le tensioactif utilisé est un mélange disponible dans le commerce. En raison des contraintes environnementales, nous avons sélectionné un mélange à faible coût, biodégradable, et disponible en grandes quantités. Le mélange est composé de 5-15 % de Sulfate de Lauryl de Sodium (SLES, anionique, CMC = 0,146 %), de 5 % de bétaïne de cocamidopropyle (CAPB, zwiterronique, CMC = 0,063 %) et $\geq$ 5 % de Lauryl Glucoside. Ces composés ont été solubilisés dans l'eau. Un total de 15 % de composants actifs a été mesuré en laboratoire. La solution commerciale a été préalablement séchée pendant 24h à haute température (100°C), puis pesée afin de déterminer la quantité non volatilisé (tensioactifs). Ce mélange a été sélectionné au regard de la littérature où ces composés sont couramment utilisés séparément dans diverses études et donnant de bons résultats pour la génération de mousse (Gauglitz *et al.*, 2002; Ma *et al.*, 2012; Maire *et al.*, 2015). De plus, lors de phases préliminaires, ce mélange a montré avoir une capacité à réaliser de la mousse forte comparable à celle de tensioactifs purs.

5.2.2.2 Gaz

La phase gazeuse utilisée pour la génération de la mousse est l'air (en bouteille pour les expériences en 1D et 2D, et l'air atmosphérique pour les expériences sur site). Bien que Maire *et al.* (2015) recommandent de générer les mousses à partir de CO_2 pour réduire la pression d'injection par rapport aux mousses générées à partir de N_2, son utilisation reste compliquée pour une application sur le terrain. En effet, de grandes quantités de gaz sont nécessaire, et de ce fait nous avons préféré utiliser de l'air facilement fourni par un compresseur standard.

5.2.3 Montage expérimental

5.2.3.1 Test en colonne

La figure 5.2 présente le montage expérimental utilisé pour réaliser les expériences sur colonne.

Un pousse seringue et un régulateur de débit massique de type Bronkhorst EL-FLOW F-201CV 0/20 mL/min sont utilisés pour l'injection de la solution de tensioactifs et d'air dans le générateur de mousse. Le générateur de mousse est composé d'un fritté poreux permettant la génération de la mousse.

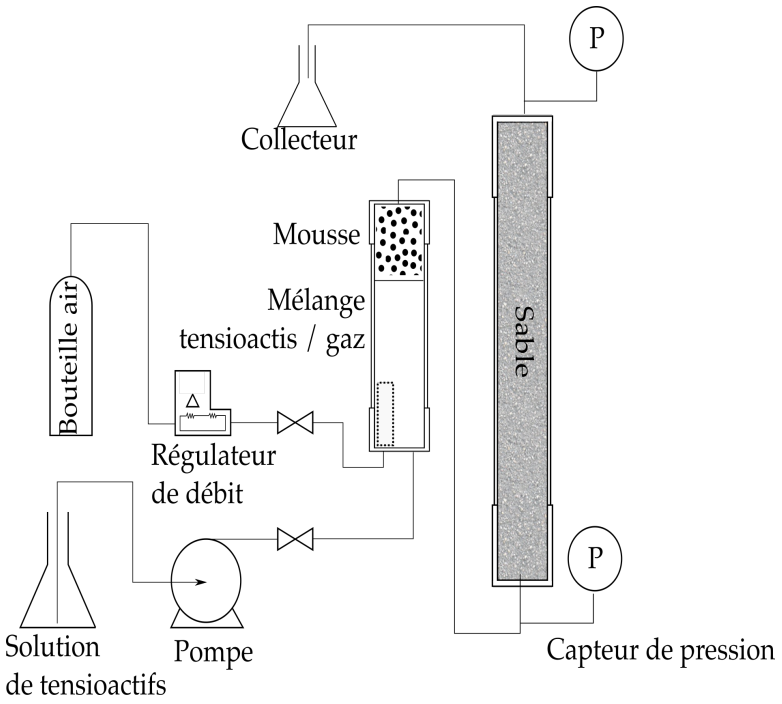

Figure 5.2 : Schéma du montage expérimental pour les expériences en colonne

La colonne est constitué d'un corps de cellule et de deux brides en inox comme le montre la figure 5.3. L'étanchéité est assurée par l'ajout d'un joint en cuivre et des vis assurant le maintien entre le corps et la bride. Cette cellule à une longueur de 12 cm pour un diamètre interne de 3,5 cm.

Le sable est ajouté progressivement dans la cellule en maintenant une saturation en eau du sable. Continuellement la colonne est frappée à l'aide d'un marteau afin d'assurer l'homogénéité de la colonne en terme de caractéristiques physiques. Ensuite la colonne est placée verticalement pour les tests de mousse. La mousse est injectée par le bas de la colonne. Nous avons sélectionné ce dispositif d'injection vertical afin de rendre compte des effets gravitaires plus représentatifs des phénomènes observés sur le terrain, plutôt que de sélectionner des conditions plus favorables à la génération de mousse en plaçant horizontalement la colonne ou en injectant par le haut de la colonne. Par ailleurs, pour se rapprocher des conditions de terrain, aucune pré saturation en tensioactifs n'a été réalisé pour les expériences en colonnes. Un capteur de pression est adapté en entrée de colonne afin de mesurer la pression d'injection de la mousse. Ce capteur, fourni par AEP transducers, affiche une précision à 0,001 bar.

5.2.3.2 Test en pilote

La figure 5.4 présente le montage expérimental utilisé pour réaliser les expériences sur le pilote 2D. Une coupe verticale du pilote est présentée en figure 5.5.

Le pilote 2D représente un carré de 42 cm de côté pour une épaisseur de 4 cm.

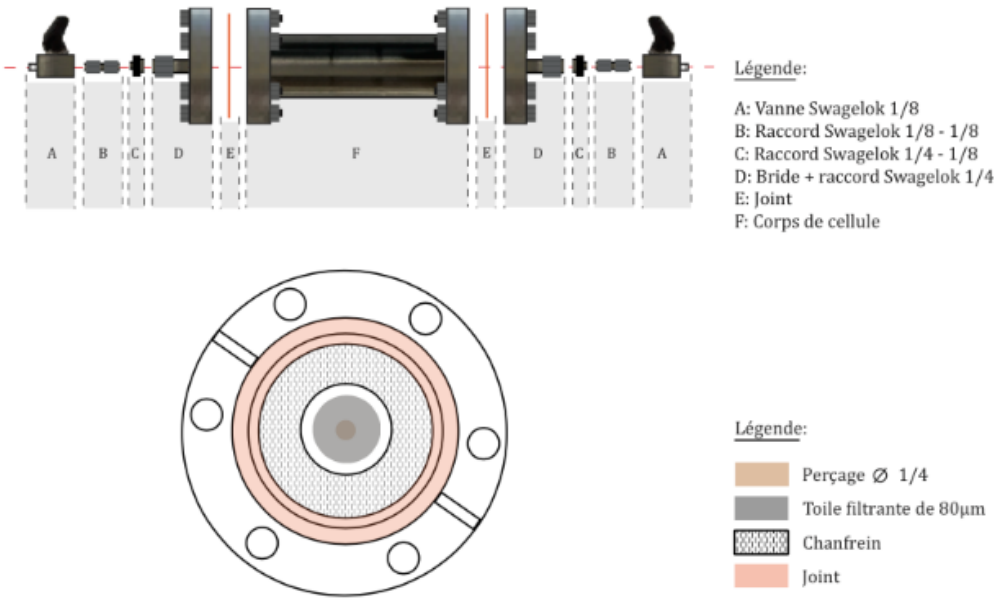

Figure 5.3 : Schéma de la cellule contenant le milieu poreux (Bordenave, 2015)

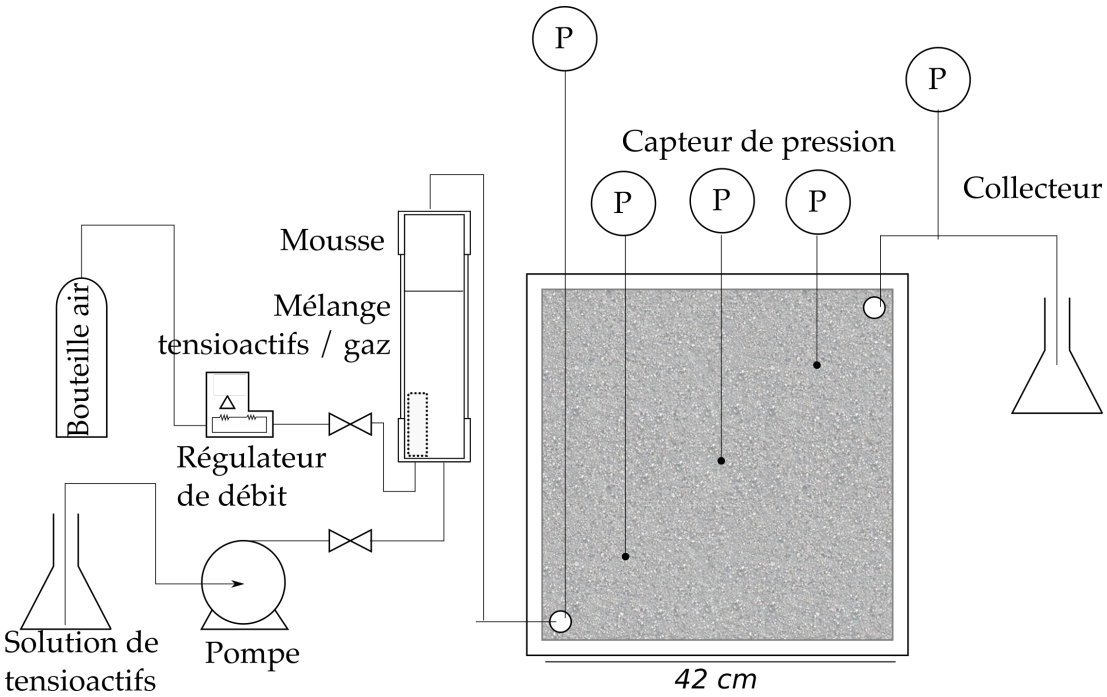

Figure 5.4 : Schéma du montage expérimental pour les expériences en pilote 2D

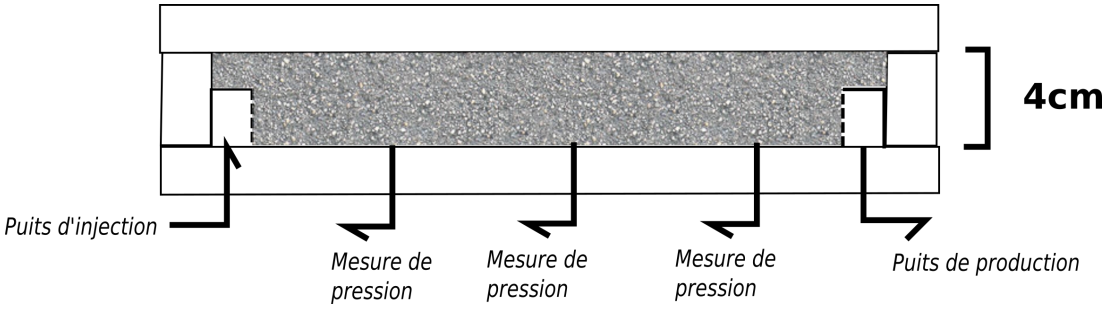

Figure 5.5 : Coupe verticale du pilote 2D traversant le puits d'injection et de production

Il s'agit d'un pilote horizontal. Le pilote 2D a été construit à partir de plaque de plexiglass de 2 cm d'épaisseur. L'étanchéité est assurée par un joint en silicone et un ensemble de 28 vis serti sur le pourtour du pilote. Dans ce pilote, nous avons adapté des tubes en plexiglass afin de représenter un puits d'injection et un puits de production. Ces puits ont une hauteur de 3 cm utile dans le pilote et sont placés au niveau des coins du pilote. Entre ces deux puits, trois prises de pression ont été positionnées, pour définir le comportement de la mousse le long d'un profil d'injection. Ces mesures s'effectuent à 15, 30 et 45 cm du point d'injection. Pour éviter que de l'air ne soit piégé, le pilote a été rempli de sable sous l'eau. De même l'étanchéité a été testée avant toute manipulation afin d'éviter l'entrée de gaz dans le pilote. Cette méthode ne permet pas de définir précisément le volume de pore du système. Aussi celui-ci sera approximé pour les expériences à partir des données de colonne pour le même sable.

5.2.3.3 Injection de mousse dans un puits

La figure 5.6 présente la configuration des tests réalisés dans un puits d'injection.

Pour les expériences sur le terrain l'air a été fourni par un compresseur. La pression de l'air et les débits de gaz sont réglés par l'opérateur. Les débits massiques d'air ont été mesurés à l'aide d'un débitmètre à air de type SMC Flow Switch. Le tensioactif a été stocké pur dans un contenant à part du réservoir d'eau et n'a pas été dilué préalablement avant le début de l'injection de mousse. A l'aide d'une pompe piston, il est injecté pur dans la ligne d'injection d'eau. Ce choix permet de régler la concentration en tensioactif au cours du test. En effet, sur la base du débit d'eau et de la masse de tensioactifs injecté dans la ligne de distribution de l'eau, la concentration en tensioactifs peut être calculée. Le débit d'air et d'eau ont été enregistrés en temps réel, et le flux de gaz est exprimé à pression atmosphérique. Cela permet aussi de régler la qualité de mousse en temps réel. Au cours de l'injection de mousse, les pressions d'injections ont été mesurées par l'ajout d'un capteur de pression de type AEP transducers placé directement sur le bouchon scellant le piézomètre.

Comme mentionné dans la section 5.2.1.2, des expériences ont été effectuées sur deux sites présentant des caractéristiques différentes.

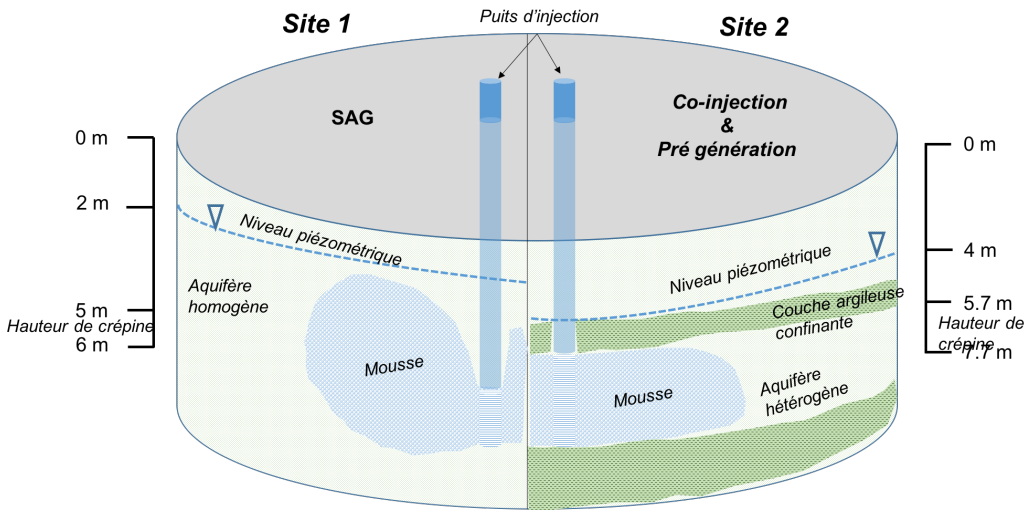

Figure 5.6 : Configuration des tests menées pour le site 1 et le site 2. Sur le schéma la position de la mousse est hypothétique

Site 1 : Surfactant alternating gas. L'aquifère ciblé pour l'injection de mousse est composé de sables fin homogène ayant une conductivité hydraulique de l'ordre de 10^{-4} m.s^{-1}. Le puits d'injection, profond de 6 m (crépiné de 5 à 6 m de profondeur), présentait un diamètre interne de 80 mm. Le niveau piézométrique de l'aquifère se situe à 2 m de profondeur. A noter que le mur de l'aquifère n'est pas atteint par le puits d'injection.

Site 2 : Co-injection et pré génération de mousse. L'aquifère investigué est captif sur la zone du test et composé de matériaux hétérogènes. La conductivité hydraulique de l'aquifère sableux est de l'ordre de 10^{-5} m.s^{-1}. Sur ce site, deux modes d'injection ont été testés : la co-injection (réalisée hors zone polluée) et la pré génération de mousse (réalisée proche de la zone source). Les deux puits d'injection ont les mêmes caractéristiques : ce sont des puits totalement pénétrants l'aquifère, d'une profondeur de 7,7 m, et crépinés de 5,7 m à 7,7m. Le diamètre interne des puits est de 80 mm. L'aquifère, situé entre 5,7 et 7,7 m et est surmonté par une couche argileuse étanche d'environ 1,5 m. Le niveau piézométrique est situé à 4 m de profondeur.

5.2.4 Protocole expérimental

5.2.4.1 Test en colonne

La démarche expérimentale vise à évaluer l'effet bloquant de la mousse dans un milieu poreux saturé en eau. Pour cela, nous avons décliné notre démarche en trois étapes :

1. **Etape 1 :** A partir d'un ensemble d'expériences visant à quantifier l'impact de différents paramètres (concentration en tensioactifs, débit d'injection total, et qualité de mousse) sur la génération de mousse en milieu poreux,

nous avons défini une formulation permettant la génération d'une mousse caractérisée par un RF élevé.

2. **Etape 2 :** Une fois le balayage effectué avec la mousse la plus adéquate, nous avons quantifié l'impact de la réduction de la saturation en eau sur la perméabilité relative à l'eau. Pour cela directement après l'injection de mousse, la saturation en eau est mesurée par pesée : ($S_{w(après\,mousse)}$). Ensuite des tests de drainage ont été réalisés afin de définir expérimentalement la relation entre la saturation en eau et la perméabilité relative à l'eau dans un système diphasique eau + mousse, en injectant de l'eau sous pression (ΔP imposé) dans la colonne. Le débit en sortie Q est mesuré jusqu'à l'obtention d'un débit constant. A partir de la loi de Darcy (équation 5.3), nous pouvons calculer une valeur de conductivité hydraulique $K_{w1(après\,mousse)}$ valable pour une saturation $S_{w1(après\,mousse)}$, avec $S_{w1(après\,mousse)} \leq S_w = 1$. Le ratio entre $K_{w1(après\,mousse)}$ et K_w (pour $S_w = 1$) donne la valeur de la perméabilité relative k_{rw1} pour la saturation $S_{w1(après\,mousse)}$ (équation 5.4).

$$K_{w1(après\,mousse)} = \left(\frac{Q_{stabilisé} \times \Delta L}{A \times \Delta H_{imposé}}\right) \tag{5.3}$$

$$k_{rw1} = \frac{K_{w1(après\,mousse)}(S_{w1(après\,mousse)})}{K_w(S_w = 1)} \tag{5.4}$$

avec Q : le débit d'eau sortant de la colonne, ΔL : la longueur de la colonne, A : la section d'écoulement, ΔH : la différence de charges hydraulique imposée, $S_{w1(après\,mousse)}$: la saturation en eau mesurée juste après la fin du test d'injection d'eau, et $K_w(S_w = 1)$: la conductivité hydraulique initiale.

Cette expérience est ensuite répétée en augmentant la pression d'injection de l'eau afin d'obtenir d'autres valeurs de la perméabilité relative en fonction de la saturation : $k_{rw2}(S_{w2(après\,mousse)})$; $k_{rw3}(S_{w3(après\,mousse)})$; $k_{rw4}(S_{w4(après\,mousse)})$ avec $S_{w1(après\,mousse)} < S_{w2(après\,mousse)} < S_{w3(après\,mousse)} < S_{w4(après\,mousse)}$.

3. **Etape 3 :** La courbe de la perméabilité relative à l'eau en fonction de la saturation est ensuite comparée avec le modèle de Van Genuchten (1980).

5.2.4.2 Test en pilote 2D

La démarche expérimentale vise à évaluer l'impact de la mousse le long d'un profil d'injection. L'objectif principal est de définir l'évolution de la saturation en 2 dimensions. Pour ce faire nous avons scindé notre démarche en 2 étapes :

1. **Etape 1 :** A partir des expériences de laboratoire nous avons injecté de la mousse dans le pilote. Au cours de cette injection, la pression a été mesurée en différents points pour rendre compte de la propagation de la mousse dans le pilote.

2. **Etape 2 :** Une fois l'expérience de mousse terminée, le pilote a été ouvert afin de pouvoir collecter des échantillons de sols pour mesurer la saturation en eau en différents points. Pour chaque point, un échantillon d'un volume connu V_{ech} (comprenant à la fois la matrice solide et le volume de vide) a été prélevé. Ce volume a été pesé afin de connaitre la masse m_{humide} de l'échantillon. Ensuite ces échantillons ont été séchés pendant 48h à 100°C. Puis ils ont été pesés après l'étape de séchage afin d'avoir une masse sèche m_{sec}. La saturation en eau S_w est ensuite calculée à partir des équations suivantes :

$$m_{eau} = m_{humide} - m_{sec} \tag{5.5}$$

$$V_{sol} = \frac{m_{sec}}{\rho_{quartz}} \tag{5.6}$$

$$V_{vides} = V_{ech} - V_{sol} \tag{5.7}$$

$$\phi_{sol} = V_{ech} - V_{vides} \tag{5.8}$$

$$S_w = \frac{m_{eau}}{V_{vides}} \tag{5.9}$$

Cette manipulation nous permet d'estimer la saturation en eau dans l'espace après le balayage de la mousse. Cette manipulation présente néanmoins des incertitudes dans la façon d'échantillonner ou le point crucial réside dans l'estimation du volume prélevé.

5.2.4.3 Injection de mousse dans un puits

La démarche expérimentale vise à évaluer la faisabilité de l'injection de mousse en tenant compte des contraintes environnementales. La principale contrainte sur le terrain correspond à la pression d'injection. Afin de tenir compte de cette contrainte nous avons testé l'injection d'une mousse impliquant une pression d'injection plus faible (en augmentant la qualité de mousse f_q).

1. **Etape 1 :** La première étape consiste à définir la valeur de la conductivité hydraulique $K_w(S_w = 1)$ au voisinage du puits d'injection et ceux pour chaque site testé. Ce paramètre a été mesuré à partir de *slug test* et interprété suivant les équations de Bouwer et Rice (1976). Tous les *slug tests* ont été réalisés de manière mécanique par l'ajout le plus rapide possible d'un volume d'eau connu dans le puits d'injection. La variation du niveau d'eau dans le puits a été suivie à partir d'une sonde de pression de type Minitroll.

2. **Etape 2 :** Une fois la conductivité hydraulique initiale définie, l'injection de mousse a été réalisée dans le puits d'injection. Au total trois injections de mousse ont été menées sur deux sites différents : l'injection type SAG sur le site 1, l'injection de type co-injection et pré génération sur le site 2.

   SAG (site 1) : L'adsorption des tensioactifs sur la matrice solide est un phénomène reconnu (Rodriguez-Cruz *et al.*, 2005; Sánchez-Martín *et al.*, 2008), et à prendre en considération pour l'injection de mousse (Rossen, 1996). Pour satisfaire l'adsorption l'aquifère à préalablement été saturé sur les 45 premiers centimètres autour du puits d'injection. Ceci correspondant à une injection de 500 L d'une solution de tensioactifs concentrée à environ 3 fois la CMC. Ensuite le gaz et la solution de tensioactifs ont été injectés alternativement. Les plages d'injections correspondent à 30 L de solution de tensioactifs pour 550 L de gaz. Les débits ont été réglés à 10 L/min pour la solution de tensioactifs et 55 L/min pour le gaz. Ces débits ont été ajustés pour atteindre une pression d'injection suffisante pour la formation de mousse et en tenant compte des contraintes de terrain. La pression relative atteinte à la fin du test était de 1 bar.

   Co-injection (site 2) : Pour satisfaire l'adsorption, l'aquifère a été pré saturé sur environ 120 cm aux alentours du puits d'injection. Au total 1,75 m^3 de solution de tensioactifs (concentrée à 0,15 CMC) ont été injectés. Après cette phase, la mousse a été généré in -situ par une injection simultanée d'air (débit = 50 L/min) et de solution de tensioactifs (débit = 50 L/h). La qualité de mousse à été fixée à 98%. Ceci permet de garantir une pression d'injection acceptable pour l'application environnementale. La pression relative maximale enregistrée pendant le test était de 2 bar.

   Pré génération (site 2) : Dans le cas de ce test, l'aquifère n'a pas été pré saturé avec une solution de tensioactifs. En effet, ce test étant localisé au droit de la zone source de solvants chlorés identifiée, nous avons voulu éviter de mobiliser les contaminants. Le débit d'air a été réglé entre 5 L/min et 20 L/min, et le débit d'eau a été fixé à 0,25 L/min. Les deux fluides ont été injectés directement dans le générateur de mousse. La qualité de la mousse produite en sortie de générateur à varié entre 95% et 99%.

3. **Etape 3 :** Directement après la fin de l'essai d'injection de mousse, nous avons observé sur le terrain que tous les puits d'injection étaient sec. Afin de capturer la remontée du niveau piézométrique dans le puits d'injection, nous avons positionné une sonde de pression au fond du puits. Ces données ont ensuite été traitées à l'aide d'un modèle numérique. La remontée du niveau d'eau dans le puits est caractérisée par des temps extrêmement long (supérieure à 13 heures pour le cas modélisé). Pour reproduire ce phénomène, nous avons construit un modèle 2D (radial) simplifié. Basé sur le code de calcul MODFLOW-2000, il s'agit d'un modèle monophasique. La présence de la mousse est traduite par l'ajout de zones avec une faible conductivité hydraulique. L'objectif du modèle vise à définir l'impact de

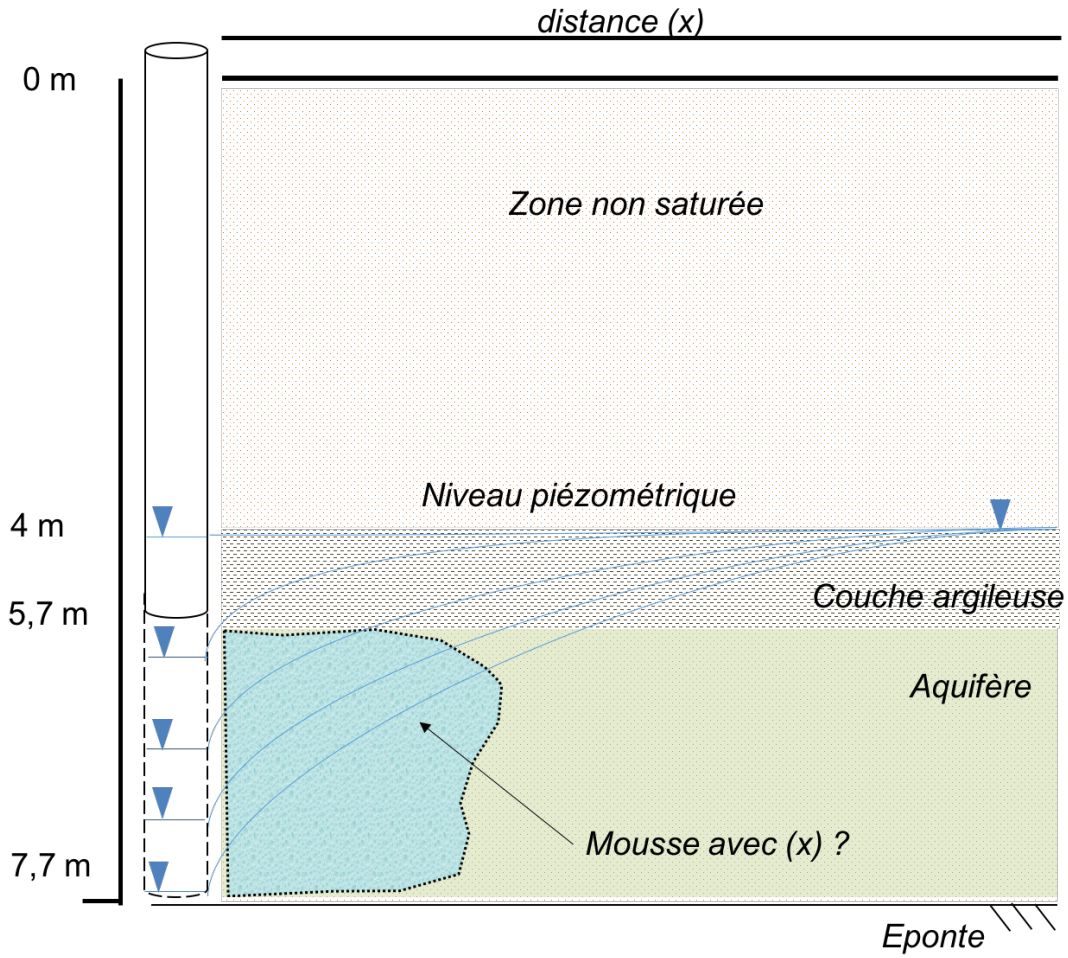

Figure 5.7 : Représentation schématique de l'influence de la mousse sur la remontée de niveau piézométrique observé au puits. (x) définie la position du front de mousse ainsi que sa conductivité hydraulique. Cette zone de mousse est caractérisée par une faible conductivité hydraulique.

la mousse à quelques mètres du puits d'injection. Les données d'observations correspondent aux données obtenues dans le cadre de l'injection de mousse pré générée (site 2). La figure 5.7 représente de façon schématique les phénomènes observés.

Les caractéristiques du modèle sont présentées dans le tableau 5.2.

5.3 Résultats

5.3.1 Colonne

Le *resistance Factor* RF a été calculé afin de comparer les différentes expériences réalisées (cf. section 5.1 pour définition).

Tableau 5.2 : Caractéristique du modèle 2D (radial)

Entité modélisée	Aquifère
Extension (x x z) [m]	10 × 2
Taille cellule (x x z) [m]	0,08 × 0,05
Temps de simulation [s]	60000
Pas de temps [s]	100
Donnée d'observation	Profondeur de l'eau dans le puits d'injection
Paramètre du modèle	K [m.s^{-1}]

5.3.1.1 Effets de la concentration en tensioactifs et du débit total d'injection de mousse sur le RF

Pour ces expériences, la qualité de mousse a été fixée à 99%. Nous avons testé l'impact de la variation de la concentration en tensioactifs (0,075 ; 0,15 ; 0,3 ; 0,6 et 0,75 wt.%) et du débit d'injection total (5, 10, 15 et 20 mL/min, correspondant à des vitesses de pore respectives de 2,9 × 10^{-4}, 5,8 × 10^{-4} , 8,7 × 10^{-4}, 1,2 × 10^{-3} m.s^{-1}). La figure 5.8 présente les résultats de ces expériences.

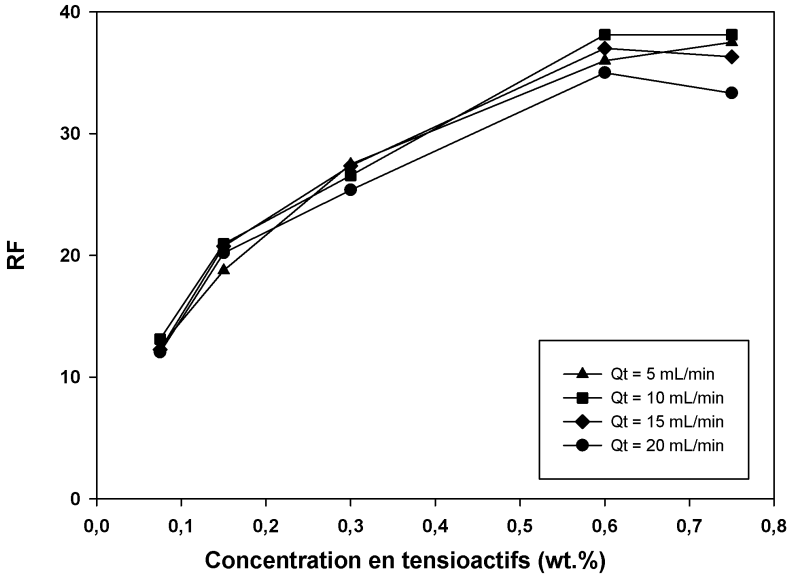

Figure 5.8 : Effet de la concentration en tensioactifs et du débit d'injection total sur le RF

On remarque une augmentation de la valeur du RF avec l'augmentation de la concentration en tensioactifs. A l'inverse le débit injecté ne joue pas de rôle sur la valeur du RF dans ces conditions et sur cette gamme de débit. Un plateau semble être atteint pour des concentrations supérieurs à 0.6 wt.%. En présence de mousse, la vitesse du gaz et du liquide est fonction de la stabilité des lamelles. Ainsi des lamelles stables entrainent une meilleure réduction de la mobilité, autrement dit une augmentation du RF mais aussi, a priori une meilleure homogénéisation du profil de vitesse (Apaydin et Kovscek, 2001). Apaydin et Kovscek (2001) montre que cette stabilité dépend essentiellement de la concentration en tensioactifs. Classiquement, la stabilité maximale de la mousse est obtenue pour une concentration en tensioactifs 10 fois supérieure à la CMC (Lee *et al.*, 1991, 1990; Mannhardt *et al.*, 2000). Dans notre cas, la stabilité maximale de la mousse est obtenue à partir de $\sim$ 4-8 CMC, en tenant compte du fait que nous utilisons un mélange et donc une CMC difficile à définir. Ainsi dans notre cas, pour les expériences suivantes nous avons souhaité nous placer au-dessus de $\sim$ 8 CMC (0,75 wt. %).

Contrairement à la concentration en tensioactifs, le débit total d'injection ne semble pas avoir d'impact significatif sur le RF pour une mousse ayant une qualité de 99% (pour la gamme de débits utilisée dans cette étude). Aucune tendance claire ne semble se dégager pour ce paramètre au regard de ces résultats. La pression d'injection est intimement liée au débit d'injection de la mousse (Chowdiah *et al.*, 1998; Mulligan et Wang, 2006), mais comme son impact est faible sur le RF dans le régime *strong foam* (Gauglitz *et al.*, 2002), il n'existe pas de lien significatif entre le RF et le débit d'injection.

5.3.1.2 Effet de la qualité de mousse

L'effet de la qualité de mousse a été testé pour une concentration en tensioactifs fixe (0,75 wt.%) et un débit total d'injection fixe lui aussi (Q_t = 10 mL/min). La figure 5.9 présente les résultats de ces expériences pour les trois qualités de mousse testées (90%, 95%, 99%).

Pour une qualité de mousse supérieur à 95%, le RF décroit rapidement avec l'augmentation de la qualité de mousse. Cette diminution peut traduire un possible changement dans la structure de la mousse générée, comparable à la transition du *low quality regime* vers le *high quality regime* (Osterloh *et al.*, 1992). Ici le *high quality regime* comprend les mousses dont la qualité f_q est supérieur à 95%. Cette transition est une caractéristique des propriétés capillaires du milieu et de la pression capillaire limite P_c^* (Maire *et al.*, 2015) à partir de laquelle les lamelles deviennent instables.

Au-delà de 95%, les lamelles semblent devenir instables car la pression capillaire P_c devient supérieure à P_c^*. Certaines lamelles collapsent et les bulles de gaz deviennent plus grosses pour maintenir un équilibre entre P_c et P_c^* (Maire *et al.*, 2015). Néanmoins, selon la relation entre P_c et S_w définie par Khatib *et al.* (1988) et exposée dans le chapitre 2, la réduction maximale de la saturation S_w^* est atteinte proche de P_c^*. Ainsi pour notre application, la saturation la plus faible est

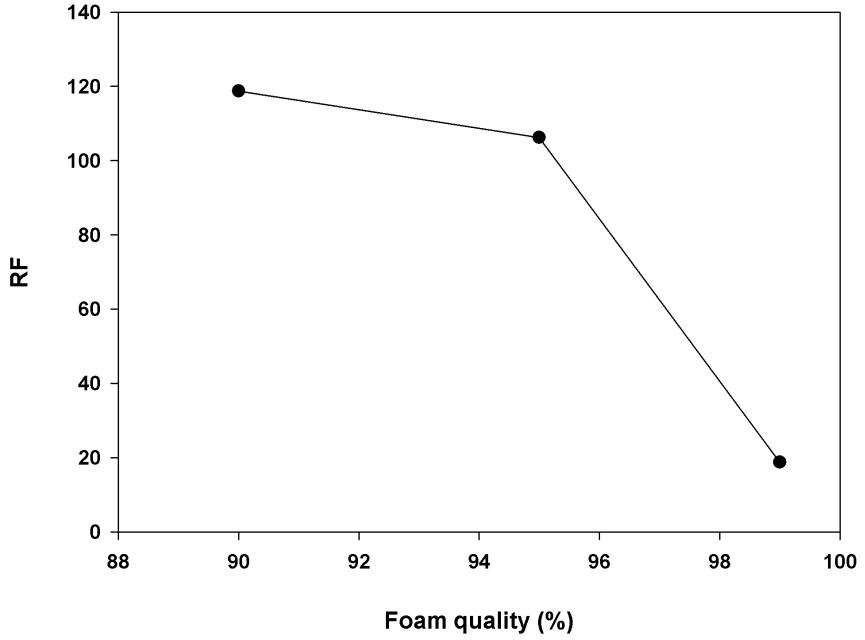

Figure 5.9 : Effet de la qualité de mousse sur le RF

théoriquement atteignable par l'injection d'une mousse ayant une qualité comprise entre 95% et 99%.

5.3.1.3 Effet d'une injection de mousse sur S_w

Deux expériences identiques ont été effectuées (f_q = 95%, Q_t = 10 mL/min, concentration en tensioactifs = 0,75 wt.%) pour définir l'impact de la réduction de la saturation S_w sur la perméabilité relative k_{rw}. La figure 5.10 présente l'évolution de la saturation S_w et du RF au cours de ces deux expériences.

Pour ces deux expériences, le régime stabilisé en termes de saturation est obtenu après un balayage de 5 volumes de pore. La saturation en eau limite S_w^* calculée (correspondant à la saturation en eau dans le milieu poreux saturé en mousse) est pratiquement identique pour les deux expériences (S_{w1}^* = 0,17 et S_{w2}^* = 0,16). La pression d'injection (traduite en RF sur la figure 5.10) se stabilise autour de 8 VP pour les deux expériences. Ce temps d'équilibre relativement long peut être attribué aux forces de gravité et imputable au choix du mode d'injection (injection par le bas de la colonne). Friedmann *et al.* (1986) rapporte un comportement similaire dans le cas de la pré génération de mousse, où 20 VP sont nécessaires pour atteindre l'équilibre (pression) dans une colonne de sable d'une perméabilité équivalente (10 Darcy). Friedmann *et al.* (1986) attribuent cette faible propagation à l'hétérogénéité des tailles de bulles de mousses en sortie du générateur de mousse. Les petites bulles ayant tendance à se propager plus rapidement que les grosses. De même, Rossen (1996) considère qu'une injection de mousse dans un milieu non pré saturé entraine une propagation plus faible de la

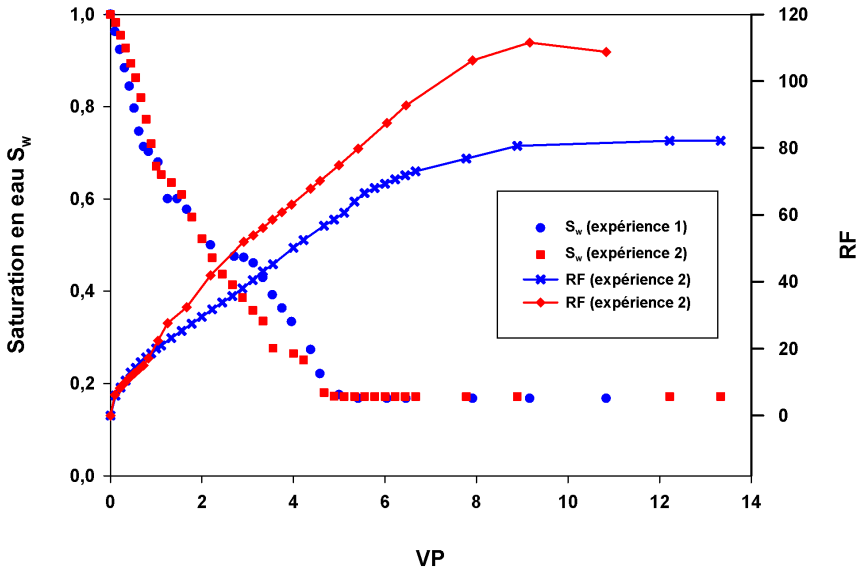

Figure 5.10 : Evolution de la saturation (points) et du RF (ligne) en fonction du nombre de volumes de pores de mousse (VP) injectés dans deux colonnes de sables distinctes (qualité de mousse 95%). (Rouge) : Expérience 1, (Bleu) : Expérience 2

mousse. Il existe un temps nécessaire pour satisfaire l'adsorption des tensioactifs sur les matrices solides qui entraine une propagation plus lente de la mousse. Pour rappel, nous avions décidé de nous rapprocher au maximum des conditions de terrain ou aucune pré saturation en tensioactifs n'est effectuée proche des zones polluées.

Par ailleurs, pour les deux expériences, malgré des conditions d'injections identiques, le RF calculé varie entre 82 et 110. Il apparait que la saturation S_w^* n'est pas affecté par cette différence.

5.3.1.4 Effet d'une injection de mousse sur le k_{rw}

La figure 5.11 présente les résultats obtenus après injection d'eau sous pression dans la colonne après son balayage par la mousse. Cette figure exprime la relation entre k_{rw} et S_w (noter l'échelle logarithmique pour le k_{rw}).

Ainsi, pour le milieu poreux utilisé, k_{rw} peut être réduit de trois ordres de grandeur par rapport à un écoulement d'eau dans un milieu saturé (monophasique). Ces mesures effectuées post injection de mousse montrent l'efficacité et la pertinence de l'utilisation de la mousse comme agent bloquant. Les valeurs de k_{rw} mesurées pour différentes saturations en eau ont ensuite été comparées au modèle de Van Genuchten (VG). En premier lieu, il apparaît que les points suivent bien une courbe de type VG. Le meilleur calage obtenu entre les données mesurées et les données calculées est obtenu en utilisant une valeur du paramètre m_{vg} égale

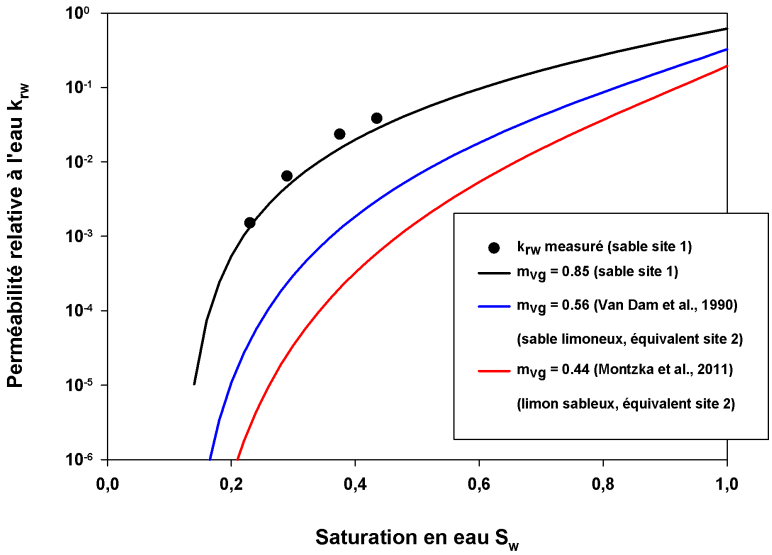

Figure 5.11 : Evolution du k_{rw} en fonction de la saturation en eau (points), et des courbes théoriques obtenues en faisant varier le paramètre m_{vg} (Van Genuchten). Ces résultats sont obtenus après injection de la mousse dans la colonne ($f_q = 95\%$, $Q_t = 10$ mL/min, concentration en tensioactifs = 0,75 wt.%)

à 0,85. Cette valeur est relativement proche de celle mesurée expérimentalement (0,80, cf. tableau 5.1). Ce calage tient compte aussi de la valeur de la saturation irréductible S_{wi} fixée à 0,107. Les résultats de cette calibration montrent bien que les valeurs de k_{rw} sont fonction de la saturation en eau S_w et correctement décrits par l'équation de VG. Ainsi le principal effet de la mousse réside dans l'abaissement de la saturation en eau, qui conduit aussi à une réduction drastique du k_{rw}. Cela suggère aussi que malgré un k_{rw} faible, l'écoulement de l'eau est plus facile à travers l'eau résiduelle (le long des lamelles) que sous forme d'effet piston déplaçant la mousse présente dans le milieu poreux. Suivant ce raisonnement, les modèles numériques considèrent que la mousse ne change pas la courbe de perméabilité relative à l'eau (Bernard *et al.*, 1965; Eftekhari et Farajzadeh, 2017). Nos tests en colonne, où les valeurs de k_{rw} ont été obtenus expérimentalement, montrent que l'équation de VG est adaptée pour décrire l'évolution de la perméabilité relative à l'eau en présence de mousse mais ces résultats sont valables pour le type de sable investigué.

En considérant que sur le terrain le milieu poreux peut présenter des caractéristiques différentes (matériaux plus fins), nous avons extrapolé ces résultats pour des valeurs de m_{vg} représentatifs des sables limoneux (0.56 (Van Dam *et al.*, 1990), et 0,44 (Montzka *et al.*, 2011)). Ces valeurs présentent un bon compromis susceptible de tenir compte de l'hétérogénéité du site d'étude. La figure 5.11 montre que pour des valeurs de m_{vg} plus faible, la réduction de S_w entraine une diminution plus rapide du k_{rw}.

5.3.2 Pilote 2D

5.3.2.1 Evolution des pressions le long d'un profil d'injection

Pour l'injection de mousse dans le pilote, les conditions d'injections utilisées en colonne pour établir la courbe S_w - k_{rw} ont été conservées excepté le débit d'injection Q_t (f_q = 95%, Q_t = 20 mL/min, concentration en tensioactifs = 0,75 wt.%). Pour ce test, le volume de pore ne peut être déterminé précisément. Aussi compte tenu des dimensions du pilote, de la porosité du milieu (estimée entre 0,3 et 0,35, à partir des données de colonne), ce volume peut être estimé à une valeur entre 2200 mL et 2600 mL. Les temps d'injection seront exprimés en volumes de pore de mousse injectée en prenant un volume de pore moyen de 2500 mL. La figure 5.12 présente les réponses en terme de pression relative pour les points de mesures : P_{inj}, P_1, P_2 et P_3. Le point de sortie P_{sortie} correspond à la pression atmosphérique considérée comme constante au cours du test (pression relative = 0 bar).

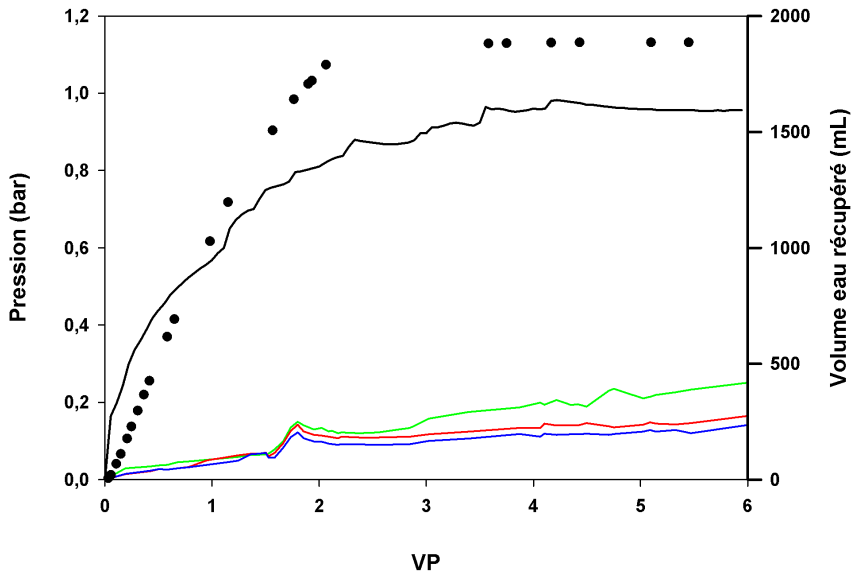

Figure 5.12 : Evolution de la pression d'injection (en noir) et des pressions P1 (en vert), P2 (en rouge) et P3 (en bleu) en fonction du temps (VP) dans le pilote 2D. Le volume d'eau récupéré (point noir) est représenté en fonction du temps (VP)

Premièrement, comme pour les tests en colonne, la pression d'injection se stabilise après un certain nombre de volume de pores de mousse injectés, en l'occurrence 5 VP. La pression relative au point d'injection se stabilise autour de 0,958 bar. En se basant sur la caractérisation hydraulique initiale, le RF calculé est égal à 95,6. Cette donnée semble en accord avec les mesures en colonne (RF compris entre 82 et 112) pour des conditions d'injections similaires. De même, le

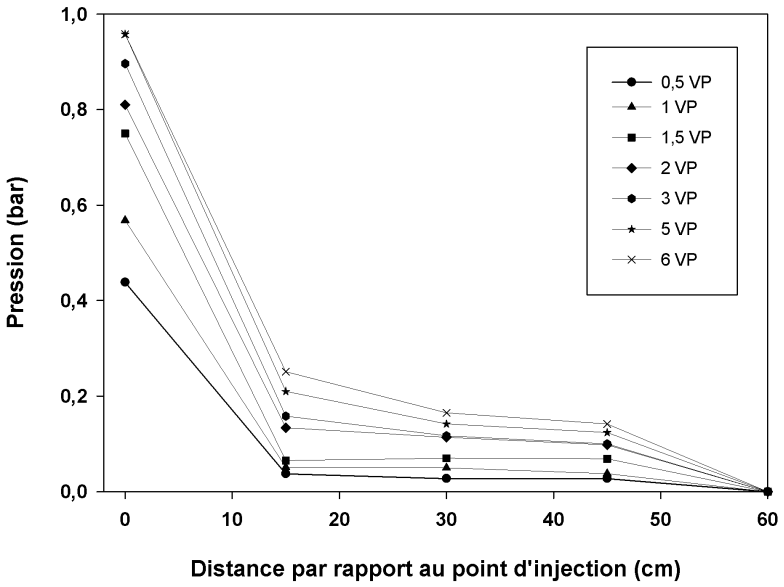

Figure 5.13 : Evolution des pressions suivant l'axe Pinj (0 cm), P1 (15 cm), P2 (30 cm), P3 (45 cm) et Psortie (60 cm) en fonction du volume de pore VP de mousse injectée

volume d'eau récupéré semble se stabiliser aux alentours de 2-3 VP. Les temps de stabilisation sont plus courts que pour les tests en colonne. En tenant compte du volume d'eau récupéré en sortie de pilote (= 1885 mL) et des estimations faites concernant le volume de pore (2200 à 2600 mL), la saturation en eau S_w après la mise en place de la mousse peut être estimée à une valeur comprise entre 0,15 et 0,27. Au cours du test, les pressions aux points P_1, P_2 et P_3 (situés respectivement à 15, 30, 45 cm) n'augmentent pas de façon significative comme le montre la figure 5.13. On note tout de même une légère augmentation de la pression à partir de 3 VP pour P_1. Cette augmentation légère et très retardée par rapport au point d'injection traduit une avancée très lente de la pression à travers la mousse plus en aval. Les profils de pression au cours du temps (figure 5.13) montrent bien un gradient de pression important sur les 15 premiers cm traduisant un envahissement par une mousse permettant la réduction de la mobilité. Néanmoins le gradient est bien plus faible sur la deuxième partie du profil d'injection (de P_1 à P_3). De même, il n'a pas été possible de relier ces évolutions avec l'examen visuel de la propagation de la mousse dans le pilote. Le front de mousse n'est pas clairement défini. Par ailleurs, du fait de la conception du pilote, les mesures de pression P_1, P_2 et P_3 se font "sous le pilote", la faible augmentation des pressions le long du profil peut traduire un comportement de type *gravity override*, c'est à dire avec une mousse plus concentrée en haut du pilote. Dans la littérature, il existe peu d'informations concernant la propagation de la mousse en configuration

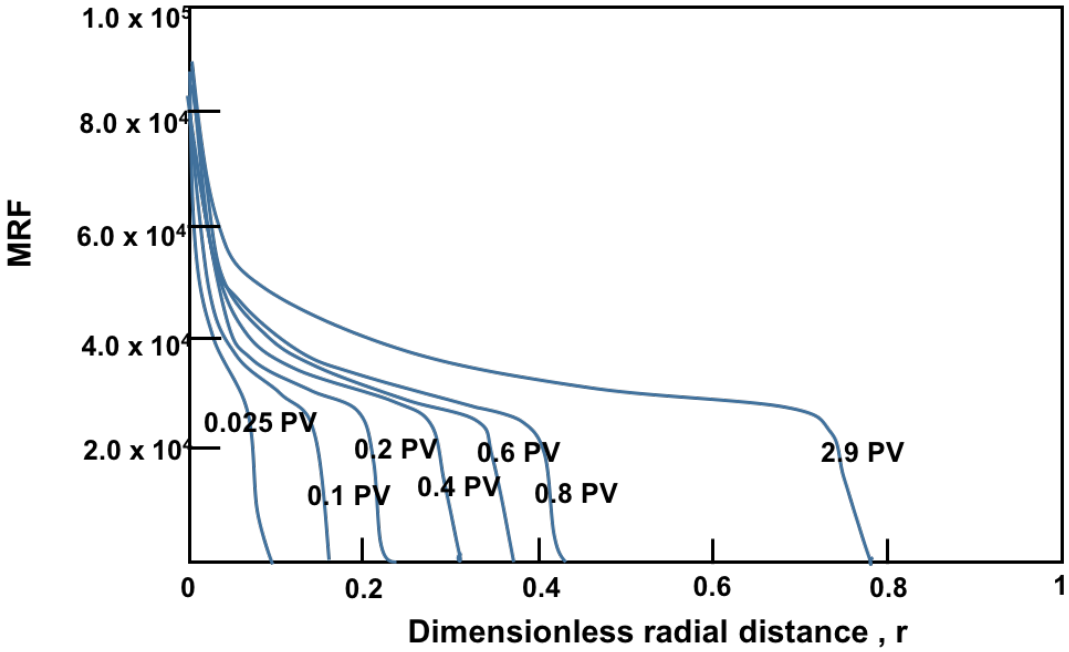

Figure 5.14 : Evolution du MRF en fonction de la distance au point d'injection, adapté de Kovscek *et al.* (1997)

radiale et avec une influence gravitaire (Turta *et al.*, 2002). Kovscek *et al.* (1997), dans un modèle numérique de type *population balance model*, ont modélisé une co-injection de mousse (qualité de mousse à 95%) dans un système radial homogène de 1 m d'épaisseur et d'un rayon de 71,5 m. La figure 5.14 présente les profils de pression (MRF, *Mobility Reduction Factor*, d'après Kovscek *et al.* (1997), équation 5.10) en fonction de la distance au point d'injection.

$$MRF = \frac{\Delta P_{mousse}}{\Delta P_{sans\,mousse}} \tag{5.10}$$

Un fort gradient de pression est prédit proche du point d'injection avec une décroissance rapide du MRF plus la distance radiale augmente, ce qui coïncide d'une part avec nos résultats mais aussi avec les essais de récupération améliorée du pétrole (Patzek *et al.*, 1990). Patzek *et al.* (1990) qui prédisent que le MRF est proche de l'unité au niveau du front de mousse.

La définition d'un RF ou MRF considère que la mousse constitue une phase homogène dont il est possible de définir la viscosité. Ce raisonnement s'applique donc au cas de la *strong foam* et a été validé en colonne pour des conditions d'injections permettant de maintenir une *strong foam*. Or il a été montré, par différents auteurs (Chou *et al.*, 1991; Del Campo Estrada *et al.*, 2015; Gauglitz *et al.*, 2002; Rossen et Gauglitz, 1990) que lorsque le gradient de pression est trop faible il est possible que la mousse se transforme en *weak foam*. Ceci traduit un déséquilibre de la mousse avec une coalescence plus forte que la production de lamelles comme constaté par Kovscek *et al.* (1997). Lors d'une injection radiale

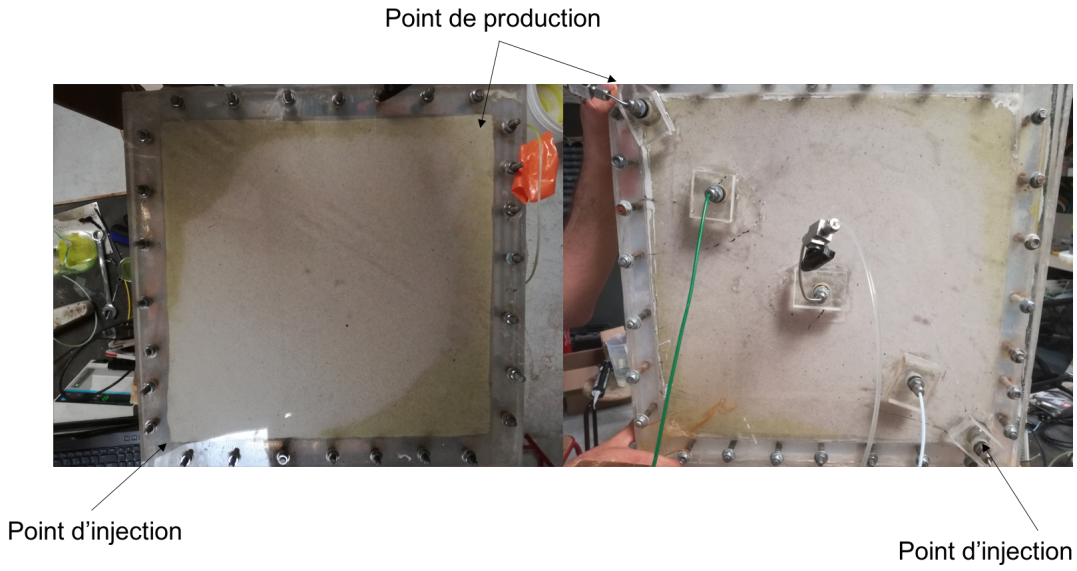

Figure 5.15 : Photos prises après l'injection de mousse dans le pilote. Vue du dessus (à gauche), vue du dessous (à droite). Les régions blanchâtres traduisent la présence de mousse, tandis que les régions jaunâtres (présence de fluorescéine) traduisent la présence d'eau

le gradient de pression théorique diminue très rapidement avec la distance au puits d'injection, ce qui est en partie observé dans nos expériences. Cet effet, se combinant à l'effet gravitaire semble conduire à une baisse rapide du RF avec la distance au puits. Cette mousse intermédiaire pourrait aussi correspondre à des zones avec une saturation en eau plus élevée.

5.3.2.2 Mesure de la saturation en eau après l'injection de mousse

Après l'injection de mousse, le pilote a été démonté afin de permettre la collecte d'échantillons de sable pour la mesure de la saturation en eau. La figure 5.15 montre l'envahissement de la mousse dans le pilote. Ces photos ont été prises juste après l'arrêt de l'injection de mousse. Pendant l'injection de mousse, le front de mousse n'était pas nettement définissable. Des échantillons ont été sélectionnés en fonction de l'examen visuel. De par la couleur, les zones blanchâtres définissent les zones ou la mousse est présente, tandis que les zones jaunâtres définissent une fraction en eau plus importante.

Pour estimer la saturation en eau dans le pilote, nous avons collecté deux types d'échantillons. Tout d'abord, les carottes sont prélevées à partir d'un cylindre transparent. Ensuite soit la carotte est conservée telle quelle et la mesure de la saturation correspond à une moyenne sur la hauteur de la carotte, soit la carotte est fractionnée en plusieurs sous échantillons permettant de définir un profil de saturation suivant la verticale. La figure 5.16 présente la localisation des différents échantillons collectés.

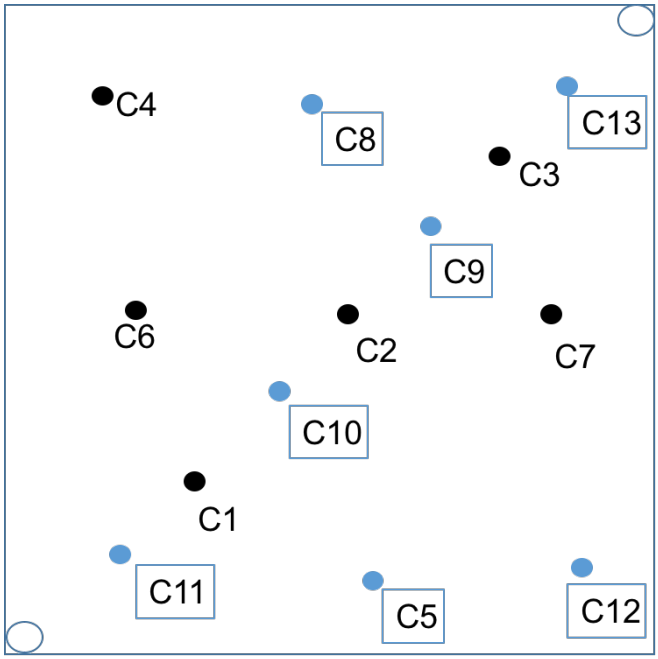

Figure 5.16 : Représentation schématique des différents points de prélèvement pour la mesure de la saturation dans les sables. En noir les échantillons ont été fractionnés afin de définir la saturation suivant la verticale. En bleu l'échantillon a été conservé dans sa totalité afin de mesurer la saturation

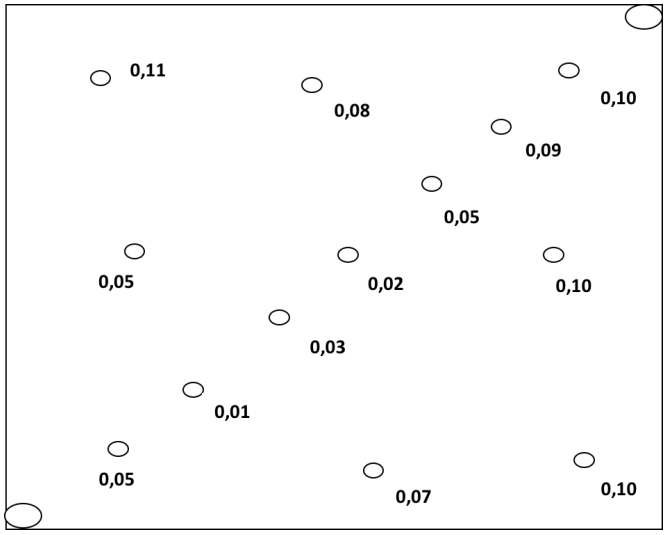

Figure 5.17 : Saturation en eau mesurée après l'injection de mousse. Pour les échantillons fractionnés la valeur indiquée correspond à la saturation moyenne en eau

Tableau 5.3 : Saturation en eau calculée pour les différents échantillons

Echantillon	S_w **calculé**	**Borne inférieure**	**Borne supérieure**
C1	0,01	0,01	0,02
C2	0,02	0,02	0,03
C3	0,11	0,08	0,18
C4	0,11	0,09	0,16
C5	0,07	0,06	0,08
C6	0,05	0,04	0,08
C7	0,10	0,07	0,15
C8	0,08	0,07	0,10
C9	0,05	0,04	0,06
C10	0,03	0,02	0,04
C11	0,05	0,04	0,06
C12	0,10	0,08	0,12
C13	0,10	0,08	0,12

La figure 5.17 présente les saturations en eau calculées pour les différents points de mesure. Les saturations calculées sont toutes inférieures ou égales à 0,11 et ce même au droit des zones ou la fraction en eau était suspectée plus grande (zone jaunâtre). En raison des incertitudes, il est difficile de déterminer précisément l'impact de la mousse sur la réduction de la saturation. Par ailleurs aucune variation de saturation n'a été mesurée suivant la verticale. Cela pourrait suggérer que la mousse n'a pas balayé le milieu poreux de manière préférentielle (*gravity override*).

Cependant ces mesures sont à prendre avec du recul compte tenu de la méthode employée pour le calcul de la saturation. En effet, comme le montre le tableau 5.3, il existe une incertitude notable sur la valeur de la saturation. Cette valeur étant grandement dépendante de la manière d'échantillonner et surtout sur la définition du volume de sols récupéré V_{ech}. De plus la saturation moyenne ne correspond pas à celle calculée avec le volume d'eau mesuré en sortie de pilote.

Néanmoins il apparait que malgré les difficultés de caractériser l'avancée de la mousse (visuellement ou par mesure des pressions le long d'un profil d'injection), la mousse semble capable de réduire la saturation en eau sur une distance significative. Les valeurs de saturation mesurées post injection de mousse, doivent être considérées avec précaution et démontrent une nécessité de définir une meilleur méthode d'évaluation de la saturation en eau. L'imagerie semble constituer une alternative satisfaisante (CT Scan) pour définir la saturation en eau le long d'un

profil d'injection ayant fait ses preuves dans différentes publications (Apaydin et Kovscek, 2001; Bertin *et al.*, 1999; Eftekhari et Farajzadeh, 2017).

5.3.3 Injection de mousse dans un puits

Au-delà des enjeux scientifiques liés à l'injection de mousse, les travaux à l'échelle d'un puits ont permis d'améliorer la définition du prototype d'injection via un processus d'essai de différents matériels et de différentes configurations. Par ailleurs, le déroulement des différents tests a permis de construire une stratégie d'évaluation de la performance de l'injection de mousse. Cette approche se veut facile à mettre en oeuvre et permettant d'attester rapidement de la réussite ou non de l'injection.

5.3.3.1 Mesure locale du k_{rw} par *slug test*

L'approche du slug test a permis de définir à la fois la conductivité hydraulique initiale et la conductivité hydraulique après injection de mousse.

Tableau 5.4 : Paramètres utilisées dans l'équation de Bouwer et Rice (1976)

Paramètre	**SAG**	**Co-injection**
		Pré génération
L_e [m]	0,5	2
r_w [m]	0,065	0,0715
r_c [m]	0,04	0,04
A [-]	1	2
B [-]	0,5	0,5
C [-]	1	1,75
b [m]	3,5	2

Le ratio des deux permettant de calculer la perméabilité relative à l'eau après une injection de mousse. Tous les *slug tests* ont été interprétés en utilisant l'équation de Bouwer et Rice (1976) (tableaux 5.4 et 5.5).

Les résultats de *slug test* montrent que chaque mode d'injection semble conduire à une réduction de la perméabilité relative à l'eau. Les valeurs mesurées sont sensiblement identiques à celle mesurées en colonne, avec une réduction de 2 à 3 ordres de grandeurs. Par ailleurs, la conductivité hydraulique mesurée post injection de mousse pour les trois types d'injection est du même ordre de grandeur (10^{-7} m.s^{-1}). Ces tests permettent de donner une première approximation du k_{rw}, mais il faut toutefois garder à l'esprit que le *slug test* est une mesure locale

Tableau 5.5 : Résultats des *slug tests* réalisés sur le site 1 et 2 : avec la conductivité hydraulique K (m.s^{-1}), **en gras** correspond à la perméabilité relative à l'eau k_{rw} (-)

Mode d'injection	Paramètre hydraulique	Condition Initiale	Post injection mousse
SAG (Site 1)	K (m.s^{-1})	$3{,}2 \times 10^{-4}$	$5{,}0 \times 10^{-7}$
	k_{rw} (-)	**1**	**0.0016**
Co-injection (Site 2)	K (m.s^{-1})	$4{,}1 \times 10^{-5}$	$2{,}3 \times 10^{-7}$
	k_{rw} (-)	**1**	**0.0056**
Pré génération mousse (Site 2)	K (m.s^{-1})	$4{,}9 \times 10^{-5}$	$3{,}6 \times 10^{-7}$
	k_{rw} (-)	**1**	**0.0073**

(échelle de l'ordre de la dizaine de centimètre) (Guyonnet *et al.*, 1993; Rovey et Cherkauer, 1995).

5.3.3.2 Estimation du k_{rw} par modélisation

Afin de définir la distance de propagation de la mousse, un modèle numérique a été développé à partir des données de remontée du niveau d'eau post mousse dans le puits d'injection. Le modèle numérique a été construit pour reproduire l'injection en suivant la configuration du site 2 (pré génération de mousse). Pendant le test d'injection de mousse, les débits d'air et de liquide injectés ont permis de calculer un volume maximal de mousse injecté. Au total environ 20 m^3 de mousse ont été injectés. Au regard de l'épaisseur de l'aquifère (2 m) et de la porosité (estimée à 0,25), le rayon théorique maximum de propagation de la mousse est de l'ordre de 3,5 m. Afin de déterminer les régions de l'aquifère contenant de la *strong foam*, nous avons défini la dimension des zones a priori. Ces zones ont été défini au regard du nombre de volume de pores de mousse balayant la zone. Comme le suggèrent les expériences en colonne et en pilote, la réduction de la saturation en eau S_w atteint son maximum après une injection de plusieurs volumes de pores de mousse. Ainsi, le rayon théorique maximal de propagation de la mousse (=3,5 m) correspond à un balayage du milieu poreux équivalent à 1 VP. En considérant des distances radiales au puits d'injection de 1, 2 et 3 m, les volumes de mousse ayant balayés ces zones sont respectivement de 1,6 m^3, 6,3 m^3 et 14,1 m^3. Ainsi pour les distances radiales, ces volumes correspondent à un balayage du milieu poreux équivalent à 12,5 VP, 3,1 VP et 1,4 VP (respectivement), censés traduire différents potentiels de réduction de la saturation en eau S_w. Ainsi trois zones

ont été définie dans le modèle : $K_{mousse1}$, $K_{mousse2}$ et $K_{mousse3}$. Nous avons aussi testé l'influence de la valeur de la conductivité hydraulique dans chacune d'elles sur les résultats du modèle (figure 5.18). Le tableau 5.6 présente les résultats du modèle. La valeur du k_{rw} modélisée pour la zone 1 est très basse et indique une réduction de la conductivité hydraulique d'un facteur 100 et proche de la valeur mesurée par le *slug test*. Cependant la comparaison de cette valeur avec les résultats des expériences en colonne montre des valeurs de k_{rw} significativement supérieures pour les expériences de terrain. Il apparait que la mousse générée sur le site 2 à un potentiel bloquant plus faible que celle générée en colonne. Il est possible que la présence d'argiles sur la majorité des sables échantillonnés sur le site réduise l'efficacité de la mousse. Par ailleurs, le milieu naturel est hétérogène, conduisant certainement à une distribution peu homogène de la mousse dans le milieu poreux, augmentant ainsi le k_{rw} moyen.

De même, plus la distance radiale augmente plus la baisse de la conductivité hydraulique par la mousse est faible. La zone 2 présente une valeur de k_{rw} modélisée supérieure à la zone 1. Cela tend à indiquer que la mousse perd de son efficacité avec l'augmentation de la distance au puits d'injection. En ne tenant compte uniquement du volume de pore de mousse injecté pour chaque zone, ces résultats semblent cohérents avec les expériences de laboratoire.

Aussi, le calage de la remontée du niveau piézométrique n'est pas optimal si on ne tient compte que de $K_{mousse1}$ comme le montre la figure 5.18. L'influence de $K_{mousse2}$ montre que la mousse a un effet sur les écoulements jusqu'à au moins 2m du puits d'injection. La zone $K_{mousse3}$ n'a aucune influence sur les résultats du calage. Ceci peut s'expliquer par le fait qu'un trop faible nombre de volume de pore a balayé cette zone, conduisant à la formation de *weak foam* et rendant insensible cette zone. Enfin la remontée du niveau piézométrique observée au puits est beaucoup plus sensible à la valeur de $K_{mousse1}$ que celle de $K_{mousse2}$.

S'agissant d'un fluide métastable, dont le comportement est fortement influencé par les conditions d'injections et le milieu poreux, des phénomènes comme la ségrégation du gaz à une certaine distance du puits d'injection (Shi et Rossen, 1998), des effets gravitaires, ou bien par l'hétérogénéité des bulles de gaz en sortie du générateur de mousse (Friedmann *et al.*, 1986) peuvent aussi expliquer la diminution du potentiel bloquant plus la distance radiale au puits d'injection augmente. Cependant cette différence reste plus faible que la différence entre *strong foam* et *weak foam*.

5.3.3.3 Rémanence de la mousse

La figure 5.19 illustre la stabilité de la mousse au cours du temps, définie à partir de *slug tests* réalisés jusqu'à 4 mois après l'injection de mousse. Ce graphique montre clairement que la mousse reste stable sur de longues périodes. La co-injection et la pré génération étant testées sur le même site (site 2), il apparait que le mode d'injection n'influe pas sensiblement sur la durée de vie de la mousse. La persistance de la mousse pour le site 1 est bien plus faible que pour le site 2, ce qui pourrait être attribué au plus faible volume de mousse injecté en comparaison

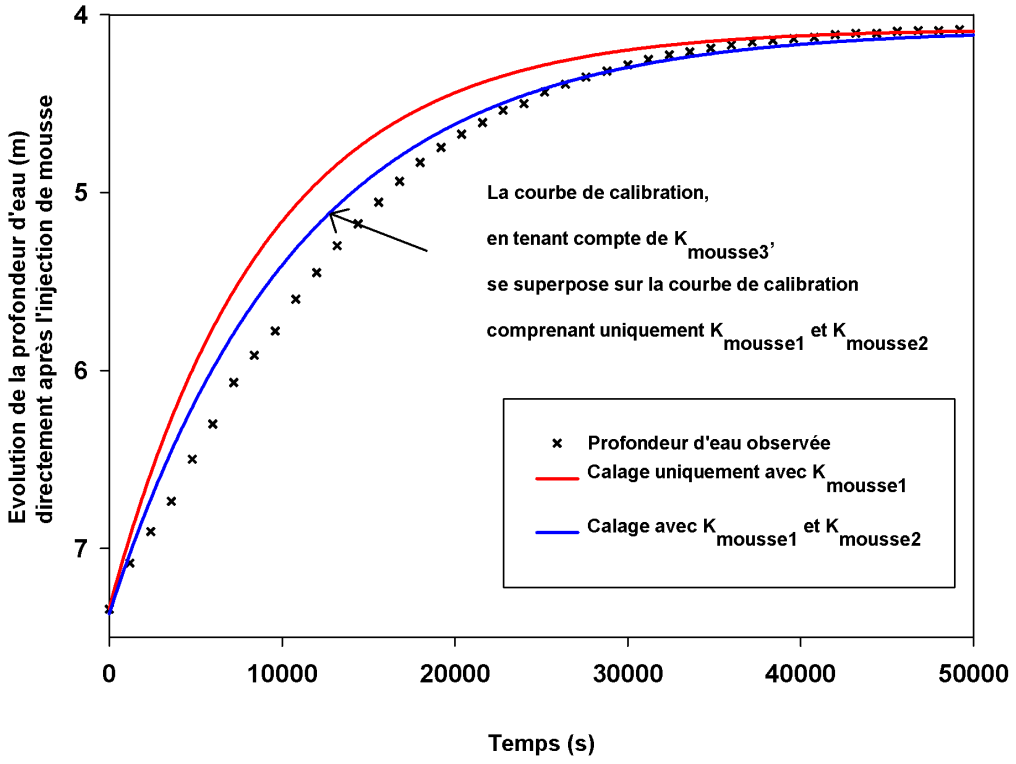

Figure 5.18 : Courbes de calibration du modèle hydrodynamique. Ces courbes montrent l'influence de $K_{mousse1}$ et $K_{mousse2}$ sur les résultats du modèle. La zone $K_{mousse3}$ présente une insensibilité pour le modèle

Tableau 5.6 : k_{rw} prédit, mesuré et calé à partir d'un modèle d'écoulement en 2D (radial)

Nom de la zone	k_{rw} prédit à partir des expériences en colonne	k_{rw} modélisé	k_{rw} mesuré à partir des *slugs tests*
1 / $K_{mousse1}$	0,0003	0,010	0,007
2 / $K_{mousse2}$	0,0035 - 0,06	0,013	-
3 / $K_{mousse3}$	0,06 - 0,15	0,76	-

au site 2. De même, il est fort probable que la couche argileuse sus jacente à l'aquifère (site 2) ait un impact positif sur la durée de vie de la mousse. Un effet gravitaire est suspecté pour le site 1, pouvant expliquer la faible durée de vie de la mousse, qui tendrait à monter vers la surface.

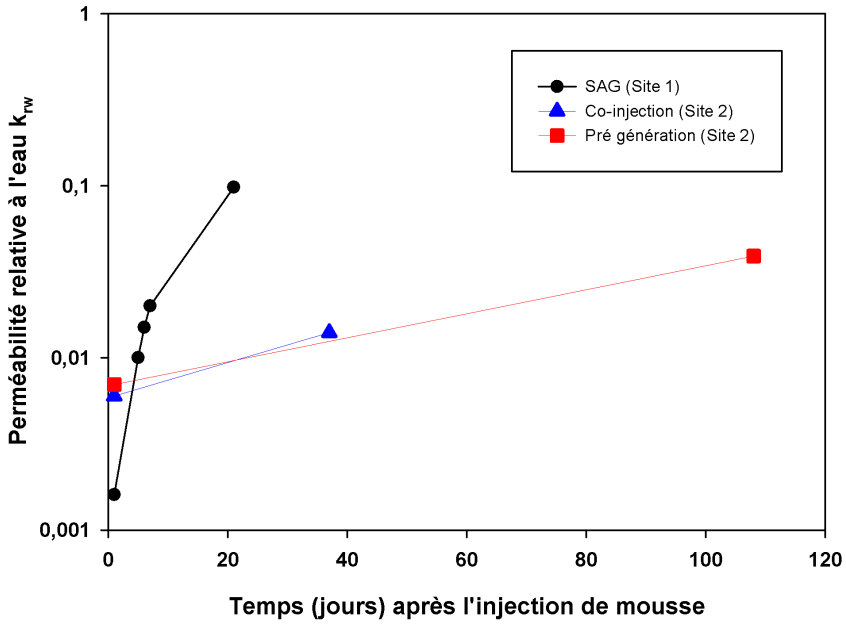

Figure 5.19 : k_{rw} en fonction du temps pour les différents modes d'injections

5.3.4 Comparaison des échelles

Les résultats obtenus en laboratoire et sur le terrain ont été comparés. La figure 5.20 présente le graphique des k_{rw} mesurées en fonction du RF pour les différentes échelles. Ce graphique met en évidence que les RF obtenus en laboratoire sont bien plus élevés que sur le terrain. Dans les faits, la plupart des expériences en laboratoire sont réalisés à partir de *strong foam*. Malheureusement les contraintes de terrain ne permettent pas d'injecter de telles mousses, car la pression d'in-

jection est trop élevée. La comparaison des échelles montre qu'il ne semble pas exister de relation entre le RF et le k_{rw} que ce soit en laboratoire ou sur le terrain. Bien que la valeur du k_{rw} soit inférieure en laboratoire, un RF adapté pour les applications de terrain permet d'obtenir aussi des valeurs faibles du k_{rw}.

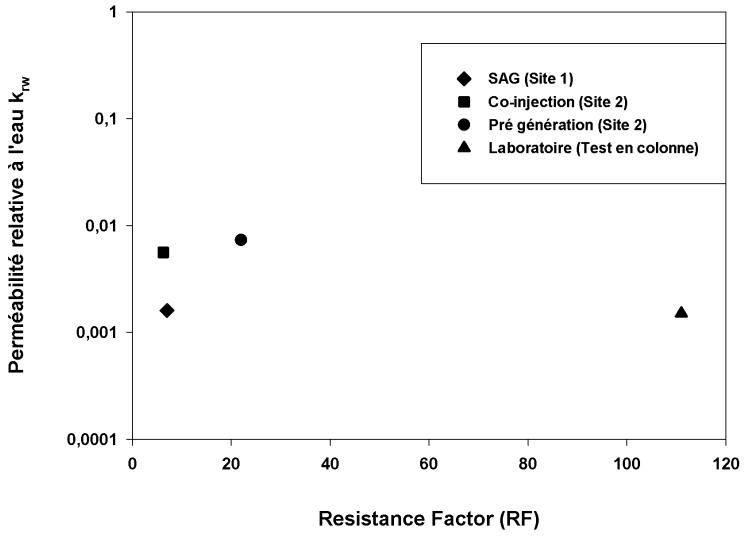

Figure 5.20 : Comparaison des k_{rw} en fonction du RF obtenu sur le terrain et en laboratoire

Ces résultats montrent qu'une mousse impliquant un RF de l'ordre de 10 à 20 peut être utilisée pour un objectif de confinement hydraulique. Dans ces conditions la réduction du k_{rw} est de l'ordre de d'un facteur 100 à 1000.

5.4 Discussion

5.4.1 Influence de la mousse sur la perméabilité relative à l'eau k_{rw}

Dans cette section, les points suivants seront abordés :

- Le concept de perméabilité relative fonction de la saturation inchangée par la présence de mousse
- La définition du k_{rw}
- L'influence du *resistance factor* sur le k_{rw}

5.4.1.1 La relation k_{rw}-S_w en présence de mousse

La plupart des modèles de mousse sont basés sur le concept de la pression capillaire limite P_c^* (Farajzadeh *et al.*, 2015; Khatib *et al.*, 1988). Un concept largement admis dans ces modèles (comme le modèle STARS présenté au chapitre 2) réside dans le fait que la mousse n'affecte pas la relation entre la mobilité de l'eau (k_{rw}) et la saturation (S_w) et démontré pour la première fois par Bernard *et al.* (1965) et confirmé par plusieurs auteurs (Eftekhari et Farajzadeh, 2017; Huh *et al.*, 1989; Kovscek et Radke, 1994; Sanchez *et al.*, 1986). Autrement dit, k_{rw}^0 (perméabilité relative à l'eau en absence de mousse) et k_{rw}^f (perméabilité relative à l'eau en présence de mousse) sont égales pour une saturation en eau donnée S_w. La mousse affecte en réalité la mobilité de l'eau indirectement via la diminution du S_w. Nos résultats vont aussi dans ce sens.

Le concept de perméabilité relative inchangée en présence ou absence de mousse reste toutefois remis en question par certains auteurs qui suggèrent un changement de la fonction reliant la perméabilité relative à l'eau et la saturation en eau au cours de l'écoulement de mousse dans des milieux poreux (de Vries *et al.*, 1990; Rossen *et al.*, 2015). Néanmoins la relation liant la perméabilité relative à la saturation n'est pas clairement définie comme le montre les expériences de de Vries *et al.* (1990) (figure 5.21).

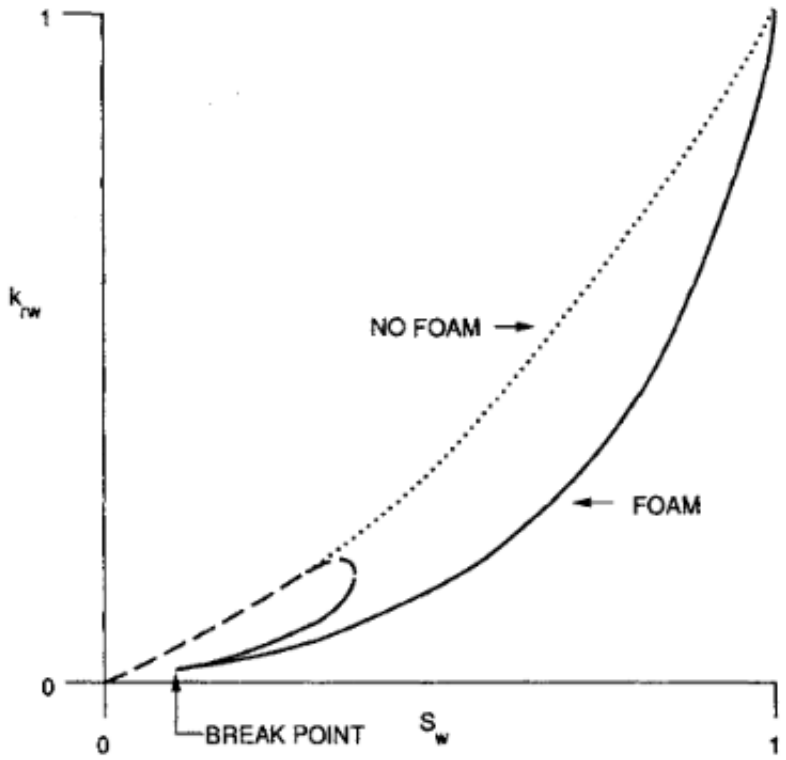

Figure 5.21 : Courbe de k_{rw} en fonction de S_w en absence et en présence de mousse d'après de Vries *et al.* (1990). Ces courbes ont été volontairement déformée par l'auteur pour montrer les caractéristiques importantes

A partir du modèle STARS, Rossen *et al.* (2015) concluent que la modélisa-

tion des données de Persoff *et al.* (1991) et Ma *et al.* (2013) ne semble pas être cohérente avec le postulat que la fonction $k_{rw}(S_w)$ reste inchangée. Rossen *et al.* (2015) insistent sur le fait que des mesures précises de la saturation en liquide et de la perméabilité relative sont essentielles pour améliorer la compréhension de ce phénomène.

5.4.1.2 La définition du k_{rw}

Une interrogation subsiste sur la valeur du k_{rw} obtenue après une injection de mousse, et surtout comment la définir. A partir des équations définies par Reynolds et Krevor (2015) (équation 5.11), Eftekhari et Farajzadeh (2017) ont défini la perméabilité relative à travers un ratio entre la viscosité de l'eau et la viscosité apparente de la mousse. Le ré arrangement de l'équation de Darcy proposé par Eftekhari et Farajzadeh (2017) est présenté dans les équations suivantes :

$$q_i = \frac{Akk_{r,i}(S_i)}{\mu_i} \times \frac{\Delta P}{L} \tag{5.11}$$

$$\begin{cases} \mu_w = \dfrac{kk_{rw}A}{q_w} \times \dfrac{\Delta P_w}{L} \\ \mu_{mousse} = \dfrac{kA}{q_g + q_w} \times \dfrac{\Delta P_{mousse}}{L} \end{cases} \tag{5.12}$$

Dans le cas d'un régime de mousse stabilisée, $\Delta P_w/L = \Delta P_{mousse}/L$, les équations précédentes peuvent être réarrangées comme suit :

$$\frac{\Delta P}{L} = \frac{\mu_{mousse}(q_w + q_g)}{kA} = \frac{\mu_w(q_w)}{kk_{rw}A} \tag{5.13}$$

Eftekhari et Farajzadeh (2017) définissent, la qualité de la mousse f_g par l'équation suivante :

$$f_g = \frac{q_g}{q_g + q_w} \tag{5.14}$$

Ainsi, le k_{rw} est calculé comme suit :

$$k_{rw} = \frac{(1 - f_g)\mu_w}{\mu_{mousse}} \tag{5.15}$$

Avec A [m^2] la section d'écoulement, q_g et q_w [m^3.s^{-1}] les débits d'air et d'eau, k [m^2] la perméabilité absolue, k_{rw} la perméabilité relative à l'eau, ΔP [Pa] le gradient de pression, et L [m] la longueur de la colonne.

Appliqué aux résultats des expériences de mousses présentées en section 5.3.1.3, et à partir des paramètres présentés dans le tableau 5.7, des valeurs de k_{rw} différentes aux valeurs mesurées ont été calculées. Pour les deux expériences de mousses, en suivant l'équation 5.15, un k_{rw} de 0,0063 et 0,0045, et différent de celui mesuré en colonne (0,0015 pour $S_w = 0{,}23$). Si, nous trouvons le même ordre de grandeur pour les deux méthodes, il existe une différence.

Tableau 5.7 : Paramètres utilisées et calcul théorique du k_{rw}

Paramètre	Expérience 1	Expérience 2
k [m^2]	1×10^{-11}	1×10^{-11}
A [m^2]	$9{,}6 \times 10^{-4}$	$9{,}6 \times 10^{-4}$
f_g [-]	0,95	0,95
q_w [m^3.s^{-1}]	$8{,}33 \times 10^{-9}$	$8{,}33 \times 10^{-9}$
q_g [m^3.s^{-1}]	$1{,}58 \times 10^{-7}$	$1{,}58 \times 10^{-7}$
L [m]	0,125	0,125
Δp [Pa]	170000	240000
μ_{mousse} [Pa.s]	0,0196	0,0277
k_{rw} [-]	0,0063	0,0045
S_w mesurée	0,17	0,16

Les équations développées par Eftekhari et Farajzadeh (2017) se base sur la définition de la viscosité de la mousse μ_{mousse}.

Cette définition présente certaines hypothèses simplificatrices.

$$\begin{cases} q_w = \dfrac{kk_{rw}(S_w^1)}{\mu_w} \times \dfrac{\Delta P}{L} \\ q_g = \dfrac{kk_{rg}(S_w^1)}{\mu_{mousse}} \times \dfrac{\Delta P}{L} \\ q_w + q_g = \dfrac{kA\Delta P}{L} \times \left(\dfrac{k_{rw}(S_w^1)}{\mu_w} + \dfrac{k_{rg}(S_w^1)}{\mu_{foam}} \right) \end{cases} \tag{5.16}$$

Si on suit la définition de la viscosité apparente de la mousse, l'équation 5.12 (2) est obtenue en considérant que $k_{rw} = 0$ et que $k_{rg} = 1$. Ainsi, ces équations considèrent un milieu "monophasique". Nous préférons rester en cohérence avec l'approche multiphasique et conserver le calcul effectué à l'aide de la relation de VG qui a prouvé être en accord avec nos mesures..

Si la définition par le calcul du k_{rw} comme le propose Eftekhari et Farajzadeh (2017) permet d'obtenir un première estimation, la définition multiphasique et le calage à partir des données expérimentales semble plus précise.

5.4.1.3 L'impact du RF sur le k_{rw}

Aarra *et al.* (2014) ont défini expérimentalement la valeur du k_{rw} après une injection de mousse de CO_2 et de N_2. La réduction de la mobilité ici est caractérisée

par le MRF et définie par l'équation 5.10.

Pour les différents types de mousses testées N_2 (MRF = 130) et CO_2 (MRF = 70), la saturation finale de la colonne semble stabilisée autour de 0,35. Ainsi comme nos résultats présentés en figure 5.10, la réduction de la saturation semble indépendante de la mousse dans le régime ou la mousse présente une forte stabilité (RF ou MRF élevé). Aarra *et al.* (2014), par une expérience similaire à celle présentées en section 5.2.4.1, ont défini le k_{rw} pour les mousses de CO_2 et de N_2. Bien que les résultats ne soient pas présents sous forme d'un graphique semi-log et donc les valeurs de k_{rw} sont difficiles à déterminer précisément, il apparait que les mousses de CO_2 et de N_2 soient capable de réduire le k_{rw} (largement inférieure à 0,1 d'après les figures 8 et 9 de la référence (Aarra *et al.*, 2014)) et ceux indépendamment du MRF donc des conditions de pressions d'injections. Nos résultats de laboratoire semblent corroborer les résultats de Aarra *et al.* (2014).

5.4.2 Les paramètres régissant la réduction du S_w

L'objectif majeur de cette thèse repose sur l'utilisation de mousse dans le milieu poreux pour réduire le k_{rw}. Autrement dit comme le k_{rw} est une fonction de la saturation S_w, notre objectif repose sur l'abaissement de S_w par de la mousse.

Présentées dans le chapitre 2, les modèles de capillarité de Brooks et Corey et Van Genuchten montrent que la pression capillaire P_c est fonction de la saturation en eau S_w. Or d'après Khatib *et al.* (1988), il existe une pression capillaire limite P_c^* à partir de laquelle la mousse collapse. Ainsi une saturation limite S_w^* est atteignable par la mousse. Il apparait important de spécifier que la saturation irréductible S_{wi} définie dans l'équation de Van Genuchten n'est pas forcément égale à S_w^*. La relation $P_c^*(S_w^*)$ traduit la limite entre un régime de mousse stable et un régime instable (Khatib *et al.*, 1988). La nature de cette transition est fonction de la formulation de la mousse, de la concentration en tensioactifs, du milieu poreux et d'autres variables (Jiménez et Radke, Jiménez et Radke; Khatib *et al.*, 1988). Apaydin et Kovscek (2001) ont montré que la réduction de la saturation en eau était fonction de la concentration en tensioactifs. Pour des concentrations en tensioactifs de 20 à 200 supérieures à la CMC, la saturation de la phase aqueuse à l'état final est uniforme le long de la colonne au contraire d'une injection de mousse pour une concentration de l'ordre de 1 à 4 fois la CMC.

D'après Rossen *et al.* (1999), pour plusieurs types de *strong foam*, il existe une fourchette étroite de P_c ou la mousse collapse. Cette fourchette est identifiée par une seule valeur limite : P_c^*. Ainsi pour une différente gamme de débits et de qualité de mousse, $S_w(P_c^*) = S_w^*$.

Ainsi la réduction de la saturation pour réduire le k_{rw} est régie par la pression capillaire limite P_c^*. Il convient donc de définir une mousse avec une pression capillaire limite P_c^* élevée pour maximiser la réduction de la saturation S_w.

5.4.3 Extrapolation de la relation de Van Genuchten obtenues à des milieux hétérogènes

Dans l'équation de Mualem-Van Genuchten, les deux paramètres qui définissent le k_{rw} sont d'une part les propriétés du milieu poreux (définies par les paramètres de VG : α, n et m) et la saturation effective S_{we} (reliée directement à la saturation irréductible S_{wi}).

Das *et al.* (2004) ont exploré l'impact des micro-hétérogénéités sur la relation P_c-k_r-S. Il apparait que la configuration des hétérogénéités joue un rôle variable sur la relation P_c-k_r-S. Deux cas de figures sont présentés dans la publication de Das *et al.* (2004) :

- Les hétérogénéités plus grossières intégrées dans une matrice à dominante peu perméable n'ont que peu d'influence sur la relation P_c-k_r-S.
- Pour les hétérogénéités plus fines intégrées dans une matrice à dominante grossière et perméable, la relation P_c-k_r-S est significativement différente car l'eau reste piégée dans ces zones de faibles perméabilités. Ainsi, le S_{wi} résultant est typiquement bien plus élevés que pour un milieu homogène.

De même, Das *et al.* (2004) et Aggelopoulos et Tsakiroglou (2008) démontrent que plus la fréquence des micro-hétérogénéités est importante plus la valeur du S_{wi} est élevée. Das *et al.* (2006) confirment que la distribution des hétérogénéités et leur orientation par rapport à l'écoulement ont une influence significative sur le S_{wi}.

L'ensemble de ces influences rend difficile la détermination de la relation P_c-k_r-S pour un terrain hétérogène. La collecte d'échantillons provenant d'un site expérimental entraine automatiquement un remaniement des sols et par conséquent les paramètres définis expérimentalement peuvent ne pas être représentatifs du milieu.

Notre approche de terrain par essai sur un puits peut permettre de définir relativement rapidement les potentialités de confinement. Néanmoins elle ne permet pas de définir la relation P_c-k_r-S. Le paramètre clé à déterminer est la saturation en eau S_w dont la détermination in-situ reste très complexe. Des approches alternatives à partir de la modélisation numérique pourraient permettre d'approcher ce paramètre.

Nous pouvons citer l'approche proposée par Bertin *et al.* (2017). La combinaison d'un essai de traçage pre et post injection de mousse, interprété à l'aide d'un modèle de transport (MT3DMS), permettrait de définir le k_{rw}. Le mouvement du traceur est essentiellement régi par les différences de saturations du milieu poreux. Combiné à notre approche proposée en 1D permettant de définir la relation k_{rw}-S_w pour le milieu poreux testé, cela permettrait de définir la saturation en eau.

Synthèse 1/2

Une approche multi-échelle pour définir les conditions d'injection d'une mousse "bloquante" a été adoptée et comporte les aspects suivants :

- La sélection d'un tensioactif biodégradable et à bas coût afin de satisfaire le cahier des charges d'une injection de mousse dans un contexte environnemental ;
- La définition des facteurs influençant la génération de "strong foam" (concentration, qualité de mousse, débit d'injection total) ;
- L'impact de la *strong foam* sur la réduction de la saturation en eau ;
- Des mesures expérimentales afin de quantifier la réduction du k_{rw} ;
- Le développement d'un pilote 2D pour définir d'une part le comportement de la mousse le long d'un profil d'injection par mesures de pressions en différents points, et d'autres part de définir la réduction de la saturation à une certaine distance du puits d'injection ;
- Des essais de terrains, où la mousse a été injecté dans un puits suivant 3 modes d'injection différents (SAG, co-injection, et pré génération de mousse) en tenant compte des contraintes de terrain (pression d'injection) ;
- Un modèle d'écoulement en 2D (radial) pour évaluer le rayon d'influence de la mousse ;

Synthèse 2/2

L'approche multi-échelles a permis de mettre en évidence :
En 1D :

- Une réduction drastique du k_{rw} lors de la formation d'une *strong foam* ;
- La réduction du k_{rw} est liée à la capacité de la mousse à réduire la saturation en eau ;
- La courbe k_{rw} vs S_w obtenue expérimentalement est en accord avec l'équation de Van Genuchten (1980) ;

En 2D :

- Une propagation lente de la mousse et difficilement observable par les mesures de pression ;
- Une réduction relativement homogène de la saturation en eau le long du profil d'injection, et ce, malgré la présence d'incertitude sur les valeurs de saturation mesurées ;

En 3D :

- Une réduction du k_{rw} d'un facteur supérieur ou égal à 100 pour tous les types d'injection testés ;
- Un rayon d'action estimé à plus d'un mètre de distance du puits d'injection, grâce à la modélisation du temps de retour de l'eau au niveau statique dans le puits d'injection ;
- Une persistance de la mousse supérieure à 4 mois.

Comparaison des échelles :

- k_{rw} n'est pas fonction du RF de la mousse ;
- Un RF de l'ordre de 10 à 20 compatible avec les contraintes environnementales permettrait de réduire le k_{rw} de 2 à 3 ordre de grandeurs ;

Chapitre 6

Confinement d'une zone source de solvants chlorés par injection de mousse

6.1 Introduction

La volonté de développer et plus tard d'optimiser la technique d'injection de mousse en contexte environnementale nécessite l'étude et la compréhension des phénomènes associés à cette injection. Aussi, si l'approche expérimentale en laboratoire (chapitre 5) permet de définir les processus fondamentaux régissant le comportement, la propagation de la mousse dans le milieu poreux, et son pouvoir confinant, cette approche permet de contrôler certains paramètres, en les négligeant de par le choix de la dimension des différentes expériences. L'approche sur site présente un certain nombre de contraintes difficilement contrôlable ou surpassable. Par ailleurs, certains paramètres négligés en 1D ou 2D ne le sont pas en 3D, notamment la propagation de la pression d'injection et le *gravity override*. Notre objectif s'inscrivant dans une démarche globale de développement du procédé injection de mousse, un essai pilote d'injection de mousse pour confiner une zone source a été réalisé. Notre utilisation de la mousse innovante et la volonté de l'appliquer sur site réel, s'est aussi basé sur les retours d'expériences des différentes injections sur site réel. Aussi, un court résumé bibliographique de l'application sur site sera réalisé comme préambule à la présentation des résultats obtenus sur le site d'étude.

6.2 Application de la mousse sur site

6.2.1 Première démonstration de terrain (Hirasaki *et al.*, 1997)

La première démonstration d'une injection de mousse sur le terrain a été menée par Hirasaki *et al.* (1997) sur le site de Hill Air Force Base (Utah). Au niveau de

l'*Operable Unit 2* (OU2), des opérations de dégraissage effectuées sur la base militaire ont conduit à une pollution persistante (majoritairement du TCE). A partir d'un *Partition Interwell Tracer Test* (PITT), le volume de phase pure est estimé à environ 0,079 m^3 ce qui correspond à une saturation de l'ordre de 0,26 % pour un volume total de 80 L. Différents échantillons de sol ont permis de mettre en évidence que la pollution était située dans des passes sableuses de faible perméabilité (de 20 à 60 Darcy), mais aussi des chemins préférentiels ($\geq$ 100 Darcy). Cette distribution relativement classique dans les milieux hétérogènes illustre bien les problématiques évoquées dans le chapitre 2. Dans ce cas, la technique envisagée, consistant en l'injection de tensioactifs aurait été limitée par les passages préférentiels sans entrer en contact avec les DNAPLs. Hirasaki *et al.* (1997) ont alors proposé une injection de mousse afin de bloquer les zones de fortes perméabilités permettant aux tensioactifs, injectés après la mousse, de nettoyer les zones les moins perméables et ainsi d'augmenter la récupération des DNAPLs. L'injection de mousse a permis la récupération de plus de 0,18 m^3 de DNAPLs (saturation à 0,03 %), valeur largement supérieure aux valeurs estimées par les tests PITT. Cette différence est associée aux incertitudes liées à l'interprétation des tests de traçage (notamment la définition du facteur de retard qui permet de calculer la saturation moyenne), mais aussi aux erreurs liées à l'extrapolation des données dans l'espace. Dans les faits Hirasaki *et al.* (1997) ont sélectionné ce site afin de maximiser l'impact d'une telle injection mais aussi de démontrer le potentiel de l'injection de mousse. En effet, le site sélectionné présente des caractéristiques relativement favorables pour la réussite de l'injection de mousse. Incisant l'aquitard sous-jacent en formant un "V", l'aquifère était bordé par des limites imperméables latéralement et situées à moins de 8 mètres de la zone investiguée. Ce système est propice à la propagation de la mousse.

6.2.2 Travaux sur site plus récents (Maire *et al.*, 2018)

Maire *et al.* (2018) ont comparé le potentiel de récupération des composés chlorés par deux techniques : la mobilisation des contaminants par l'injection de tensioactifs et le déplacement de phases pures par l'injection de mousse. Ces deux techniques ont été testées sur un site contrôlé dans des cellules individualisées d'une dimension de 10 m x 10 m x 10 m chacune et délimitées par des murs de ciment et de bentonite. Ces cellules sont contaminées par des DNAPLs et sont équipées, au centre, d'un puits de récupération ancré dans le substratum imperméable. Ces cellules présentent la même configuration géologique, où des sables fins reposent sur un substratum imperméable et sont surmontés par des sables et graviers. Les DNAPLs sont localisés dans les zones les moins perméables et reposent sur le substratum. Leur épaisseur varie en fonction de la topographie du substratum, en formant des *pools* de phase pure. Lors des différents balayages (tensioactifs et mousses), les DNAPLs sont mobilisés et redirigés vers le piège, et s'accumulent au fond du puits. L'objectif de ces tests est de comparer l'évolution du niveau de DNAPLs dans ce piège au cours des deux tests d'injections. Tout d'abord, Maire *et al.* (2018) ont montré que la technique de *flushing* des sols par

du tensioactif était fortement influencée par l'hétérogénéité des propriétés hydrogéologiques, où des passages préférentiels focalisent la majeure partie du transfert des tensioactifs. La réduction de la saturation en DNAPLs dans le milieu contaminé par une injection de tensioactifs est ainsi très limitée. Maire *et al.* (2018) démontrent que les résultats obtenus en laboratoire sont difficilement atteignables sur le site d'étude où les conditions d'injections, la configuration du terrain et une connaissance plus approximative du milieu tendent à réduire les potentialités de récupération des DNAPLs. Bien que le test ait été interrompu avant la stabilisation du niveau de DNAPLs dans le piège (conduisant à une sous-estimation du volume de DNAPLs récupéré par l'injection de tensioactifs), les volumes récupérés restent bien en deçà des prévisions (35 L récupérés au lieu des 0,6 m^3 attendue). Des échantillons de sols prélevés post injection ont montré la présence de "gouttes" de DNAPLs dans les sables fins (milieu moins perméable) au contraire des sables plus grossiers (milieu plus perméable), confirmant que le balayage des DNAPLs par les tensioactifs est fortement influencé par les hétérogénéités.

La récupération des DNAPLs pendant l'injection de mousse a été enregistrée à partir de deux sondes de pression placées dans le piège. La variation de pression permet de calculer le niveau piézométrique et le niveau de phase pure (en se basant sur la densité de la phase pure). Malgré des difficultés d'enregistrement du niveau de phase pure dans le piège (l'arrivée dans le piège de la mousse caractérisée par une faible densité perturbe les mesures de pressions entrainant une sous-estimation des niveaux de phase pure) et des conditions d'injections non optimales, l'injection de mousse a permis la récupération d'une hauteur de DNAPLs cumulées de 28 cm dans les divers puits de la cellule, soit 1,5 L de phase pure. Par ailleurs, les échantillons de sols collectés 3 semaines après l'injection ont mis en évidence la présence de mousse (prouvant la longue durée de vie de la mousse, en accord avec les résultats de laboratoire présentés au chapitre 5), et révélait l'absence de "gouttes" de DNAPLs et ce même dans les sables fins. Ces observations montrent que d'une part la mousse est moins sensible à l'hétérogénéité du milieu et est capable de balayer les DNAPL. D'autre part, cela montre la rémanence de la mousse dans le milieu poreux.

6.2.3 Originalité et challenges associées à l'injection de mousse sur le site d'étude

Les tests d'injection présentés précédemment ont montré la faisabilité de l'injection de mousse in situ. A notre connaissance, ce sont les seuls ayant eu lieu sur site. Le principal objectif des deux études était de surpasser les hétérogénéités des milieux afin de pouvoir chasser la pollution des zones les moins perméables : soit en bloquant les zones les plus perméables (Hirasaki *et al.*, 1997), soit en balayant le milieu de façon homogène afin de pousser directement les DNAPLs vers un point d'extraction (Maire *et al.*, 2018). Ces deux expériences ont toutes deux été menées sur des sites contrôlés et favorables à l'injection de mousse (site ayant des limites bien définies et relativement proches et une liberté du positionnement des points d'injections et de récupérations).

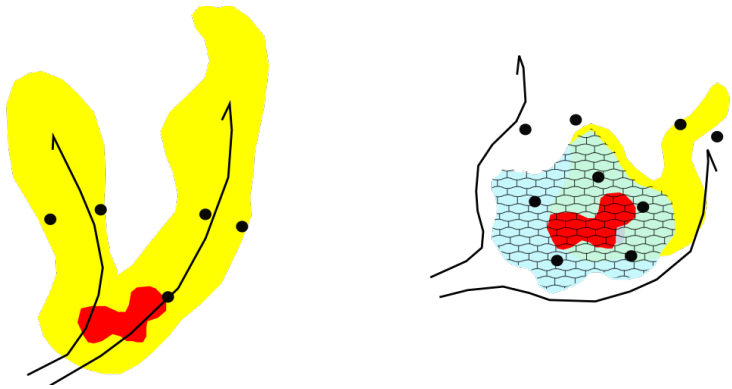

Figure 6.1 : Représentation schématique de l'objectif de confinement par l'injection de mousse

Notre approche diffère des expériences de Hirasaki *et al.* (1997) et Maire *et al.* (2018) en raison du mode d'utilisation de la mousse (figure 6.1). Dans la méthode que nous proposons, la mousse est utilisée pour confiner une zone source de pollution. Ce confinement transitoire doit permettre de réhabiliter la zone source avec une bien meilleure efficacité. Par l'injection de mousse autour de la zone source, le pouvoir bloquant de la mousse doit pouvoir éloigner le flux d'eau souterraine afin d'éviter la mobilisation des contaminants. Cette injection étant localisée au droit d'un site en activité, la réalisation de piézomètre est fortement contrainte par l'emplacement de machines de production et des réseaux souterrains (qu'il soit électrique ou de fluides divers). De ce fait le challenge principal consiste en l'injection d'une mousse suffisamment forte pour se propager sur une distance significative (quelques mètres). Un deuxième objectif naît de ce challenge : il s'agit de définir la distance de propagation de la mousse sur le terrain par des mesures in situ. En effet l'examen visuel de l'arrivée de la mousse dans un puits d'observation ne peut suffire pour conclure sur le potentiel bloquant de la mousse et le confinement de la zone source. Enfin, pour statuer sur la réussite ou l'échec de l'injection, des mesures doivent permettre de quantifier la réduction de la propagation des contaminants en aval hydraulique.

6.3 Matériels et méthodes

6.3.1 Définition de la zone d'injection

Au regard des résultats du modèle numérique et de la position de la zone source (située à proximité immédiate du piézomètre 38), une implantation de 11 nouveaux piézomètres captant l'aquifère quaternaire a été effectuée (piézomètres 125 à 135 sur la figure 6.2). Sur ces 11 piézomètres, 9 étaient initialement prévus pour l'injection de mousse (puits d'injection allant du 125 au 133) et 2 (134 et 135) étaient prévus pour le monitoring en aval hydraulique, pour compléter la ligne de suivi des piézomètres 114, 116, 118 et 117. La position des puits d'injection a été fortement contrainte par la présence de machines et de réseaux enterrés

conduisant à des distances entre puits parfois supérieures à 5 m au niveau de la zone d'injection. Les puits d'injection ont un diamètre intérieur de 80 mm, et sont réalisés en acier crépiné. Les crépines ont été installées de telle sorte que toute la hauteur saturée soit utilisable. Tous les puits d'injections ont été isolés de la surface par l'ajout d'une couche de bentonite de plus de 2 m d'épaisseur au-dessus du massif filtrant, afin d'éviter les pertes d'air en surface.

6.3.2 Caractérisation hydrogéologique de la zone d'injection

6.3.2.1 Informations fournies par le modèle

Le calage du modèle numérique (Chapitre 5) a permis d'estimer un champ de conductivité hydraulique relatif au droit de la zone d'injection. En raison des dates de réalisation, ces travaux de calage n'ont pas tenu compte des informations supplémentaires apportées par la réalisation des piézomètres implantés pour l'injection de mousse. Deux zones à dominante argileuse ont été mises en évidence au droit des piézomètres 128, 125 et 129, et au droit du piézomètre 114. Une variation de la conductivité hydraulique d'au moins un ordre de grandeur est suspectée au droit de la zone et ce sur de faibles distances (moins de 10 m).

6.3.2.2 Mesure de la conductivité hydraulique

A partir de mesures de slug tests et de tests de pompages, le champ de conductivité hydrauliques a pu être établi. La figure 6.2 présente les résultats obtenus et la répartition des conductivités hydraulique au droit de la zone d'injection. Il semble que les mesures de terrain corroborent les premières hypothèses issues du modèle numérique. On observe une variation d'un ordre de grandeur, par exemple entre le piézomètre 127 ($K = 3 \times 10^{-5}$ m.s^{-1}) et le piézomètre 128 ($K = 4 \times 10^{-6}$ m.s^{-1}) et ce sur une distance très faible (moins de 5m de distance). Une zone de faible perméabilité semble s'étendre du piézomètre 128 jusqu'au piézomètre 129, comme indiqué par le modèle. La zone de faible conductivité au droit du piézomètre 114, définie sur le modèle, semble être plus difficile à identifier par les mesures de terrain. Néanmoins la valeur mesurée ($K = 1 \times 10^{-5}$ m.s^{-1}) semble plus faible que la moyenne du champ de conductivité hydraulique de la zone d'injection ($K = 4 \times 10^{-5}$ m.s^{-1}).

6.3.3 Design de l'injection de mousse

L'établissement du champ de conductivité hydraulique a permis de sélectionner les puits servant à l'injection de mousse. Ainsi, les puits caractérisés par une faible perméabilité (128, 125, et 129) n'ont pas été sélectionné pour l'injection de mousse. L'injection de mousse dans des zones de faibles perméabilités requiert de plus fortes pressions d'injection (Gauglitz *et al.*, 2002; Khatib *et al.*, 1988), entrainant un fort risque de fracture dans les sols (Chowdiah *et al.*, 1998). De plus, le rôle de la mousse est de bloquer les zones de forte perméabilité. Afin

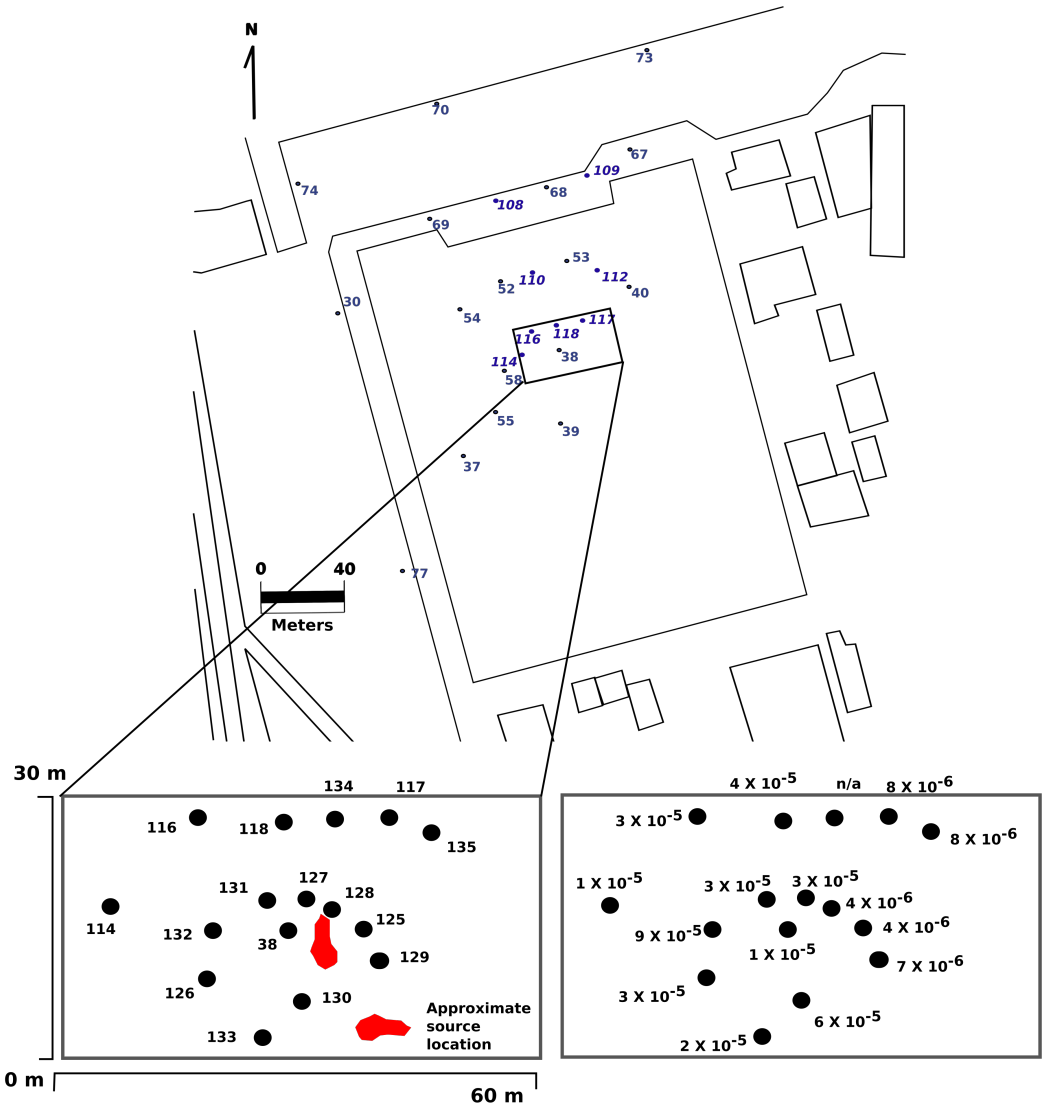

Figure 6.2 : Réseau de piézomètres disponibles pour l'injection de mousse et le suivi en aval hydraulique. La figure dans l'encadré (coin inférieur droit) présente les conductivités hydrauliques (exprimées en m.s^{-1}) calculées à partir de tests hydrauliques pour chaque piézomètre

Figure 6.3 : Appareillage permettant la mesure de pression en tête de puits

de garantir le confinement de la zone source, nous avons sélectionné les puits 126, 127, 130, 131, 132 et 133 comme puits d'injection. Les bouches à clés des piézomètres ont été modifiées pour permettre la mesure de la pression d'injection en tête de puits et l'injection de mousse comme le montre la figure 6.3

La figure 6.4 présente le système d'injection développé pour ce test. La mousse est préalablement formée à partir d'un générateur (figure 6.5). Afin de limiter les coûts d'instrumentation de la technique, un générateur de mousse est connecté à deux puits d'injection. La correspondance entre lignes d'injections et puits d'injections est définie comme suit :

1. Ligne d'injection IL1 connectée aux puits 127 et 131
2. Ligne d'injection IL2 connectée aux puits 130 et 133
3. Ligne d'injection IL3 connectée aux puits 126 et 132

Comme pour les expériences d'injection de mousses exposées au chapitre 5, l'air est fourni en continu par un compresseur, où la pression et le débit d'air sont régulés par l'opérateur. Le tensioactif n'est pas préalablement dissous pour permettre la flexibilité en temps réel du choix de la concentration pour générer la mousse. Ainsi, connaissant le débit d'eau et la masse de tensioactifs injectés dans la ligne, la concentration en tensioactifs est rapidement modifiable et adaptable. Cette configuration permet de contrôler la performance de la mousse au regard de la pression d'injection. Autrement dit, si la pression d'injection est trop faible,

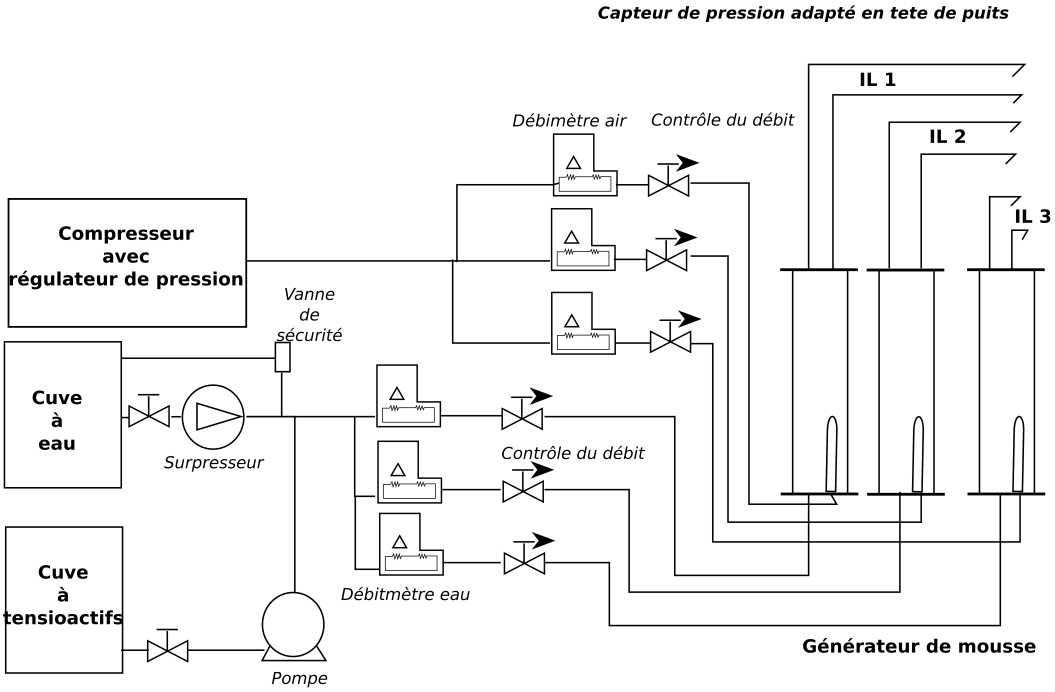

Figure 6.4 : Système d'injection développée pour l'injection de mousse

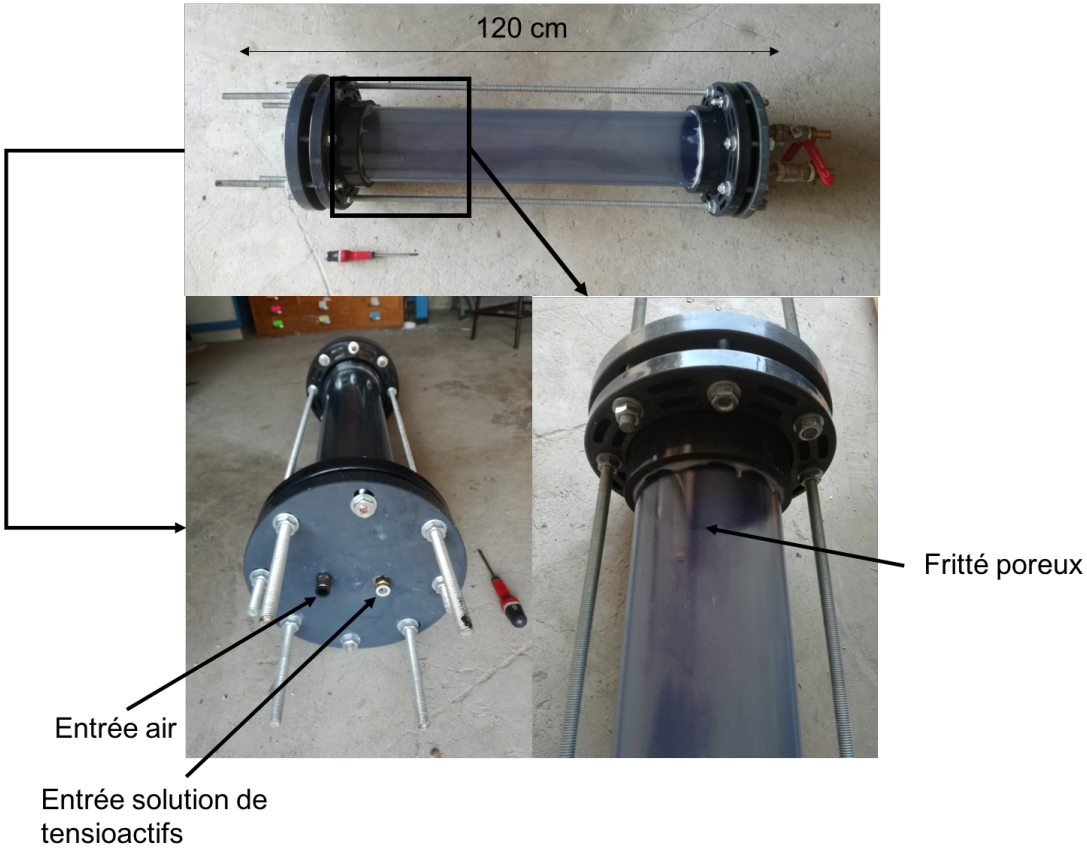

Figure 6.5 : Photos du générateur de mousse utilisé

l'augmentation de la concentration permet l'amélioration de la performance. Pour cette expérience, nous avons conservé le même mélange de tensioactifs que pour les expériences en laboratoire. Par ailleurs, comme l'injection se trouve au niveau d'une zone à risque (présence de contaminants), aucune pré saturation du milieu n'a été effectuée au préalable. Ceci permet d'une part d'éviter la solubilisation et la mobilisation des solvants chlorés. D'autre part, en raison de l'hétérogénéité du milieu, une injection préalable pourrait être considérée comme du gaspillage car les tensioactifs balayeraient les zones les plus perméables de manière préférentielle (Renkema et Rossen, 2007).

Durant l'injection de mousse, la gamme de concentration a été fixée entre 0,3 – 0,9 wt.%, et la qualité de mousse entre 95% et 99%. Ces deux paramètres sont réglés en temps réel par l'opérateur. La pression d'injection a été enregistrée en continu au niveau de tous les puits d'injection grâce à des capteurs de type AEP transducers. Le système a été automatisé afin de garantir une injection en continu et ce même en l'absence des opérateurs. Des systèmes de mises en sécurité ont été aussi mis en place au cas ou de trop fortes pressions seraient mesurées dans le système d'injection.

6.3.4 Evaluation de la performance

6.3.4.1 Slug tests

Comme pour les expériences d'injection de mousse dans un seul puits, le *slug test* a été utilisée pour mesurer la conductivité hydraulique au voisinage des puits d'injections. Ces tests ont été réalisés dans les mêmes conditions avant et après l'injection de mousse. Un faible volume d'eau (environ 5 L) permettant de générer un changement instantané du niveau d'eau a été injecté dans les puits. La variation du niveau d'eau a été enregistrée à l'aide d'une sonde de pression placée en fond de puits. Les courbes de rabattement ont été analysées en utilisant les équations de Bouwer et Rice (1976) pour calculer la conductivité hydraulique.

6.3.4.2 Test de pompage de longue durée

Afin de définir le rayon d'influence de la mousse injectée, un test de pompage a été réalisé 1 mois après le test d'injection de mousse. Le piézomètre 38, situé au centre de la zone confinée par la mousse a été sélectionné comme puits de pompage. Les rabattements ont été enregistrés tout le long du test de pompage à partir de sondes de pression placées au fond des piézomètres 38, 126, 127, 128, 130, 131, 132 et 133. Ces mesures ont été confirmées par des mesures manuelles. Une attention particulière a été portée au maintien et à la mesure précise des positions des sondes de pressions. Le débit d'extraction a été mesuré en continu. Pour interpréter ce test de pompage, nous avons développé un modèle local d'écoulement en 2 dimensions en utilisant MODFLOW-2000. L'extension du modèle est de 100 m x 100 m. L'épaisseur du modèle est constante et fixée à 2 m. La grille a été localement affinée au droit du puits de pompage afin d'obtenir une cellule dont la surface est égale à celle du puits de pompage (diamètre 53 mm). Pour représenter

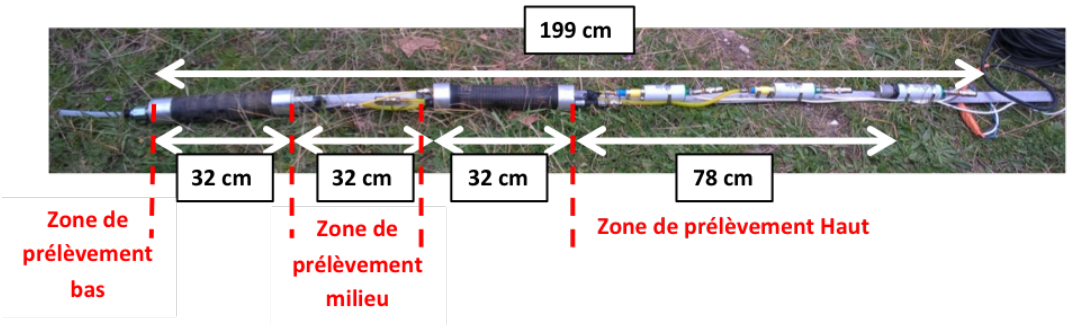

Figure 6.6 : Conception de l'outil préleveur ciblé et fenêtre d'échantillonnage des eaux souterraines

la mousse dans l'aquifère, nous avons positionné différentes zones autour des puits d'injection en attribuant une valeur de conductivité hydraulique K et une valeur de coefficient d'emmagasinement S. Pour caler le modèle, la dimension et la position ainsi que les valeurs de K et S ont été variées. Cette étape a été réalisée par l'approche essai-erreur.

6.3.4.3 Prélèvement ciblé des eaux souterraines

Les eaux des piézomètres 118, 134, 117 et 135 ont été prélevés à l'aide d'un préleveur ciblé développé par InnovaSol (figure 6.6) avant et après l'injection de mousse. La conception de cet outil permet de prélever les eaux souterraines sur deux fenêtres de 32 cm (prélèvement bas et milieu) et sur une fenêtre de 32 cm à 78 cm (prélèvement haut fonction de la côte supérieure de la crépine) grâce à trois pompes fonctionnant en simultané. Les débits d'exhaures des trois zones de prélèvements sont ajustés en fonction de la hauteur de la zone de prélèvement afin de garantir les écoulements horizontaux et éviter les écoulements verticaux via le massif filtrant.

6.3.4.4 Mesure de flux : *Passive Flux Meter*

Le *passive flux meter* (PFM) a été développé par Hatfield *et al.* (2004) afin de mesurer les flux d'eaux et de contaminants dans les aquifères. Son applicabilité sur site pour mesurer des flux de solvant chlorés a été démontrée par plusieurs études (Annable *et al.*, 2005; Basu *et al.*, 2006). Le PFM se compose d'un milieu perméable adsorbant constitué par du charbon actif maintenu par un tube PVC (figure 6.7). Ce charbon actif est initialement imprégné de 4 traceurs correspondant à des alcools (méthanol, éthanol, isopropanol et de l'alcool tert-butylique). Placé dans un piézomètre, le flux d'eau souterraine permet le relargage des alcools et le stockage de contaminants (ici les solvants chlorés).

Le calcul du flux d'eau souterraine et de contaminant nécessite la quantification de la fraction massique de traceurs perdue et la fraction de contaminant

Figure 6.7 : Préparation d'un PFM pour l'extraction des composés organiques du charbon actifs

adsorbée sur les charbons actifs (cf. Annexe). Au regard des recommandations de Annable *et al.* (2005), l'extraction des composants organiques présents sur les charbons actifs a été réalisée au laboratoire de l'ENSEGID et les analyses ont été réalisées par chromatographie en phase gazeuse et analysées par spectrométrie de masse (GC-MS).

Les piézomètres 117, 118, 134 et 135, placés directement en aval hydraulique, ont été sélectionnés pour la mesure des flux avant et après injection de mousse. Les PFMs ont été déployés pendant une période de 15 jours pour la mesure avant injection de mousse. Au regard des vitesses mesurées lors de la première phase de déploiement, les PFMs ont été redéployés 3 mois après l'injection de mousse pendant 28 jours. Cette procédure doit permettre de valider ou non le confinement de la zone source.

6.4 Résultats

6.4.1 Historique des pressions et débits pendant l'injection de mousse

La pression d'injection, le débit d'air et d'eau sont représentés en figure 6.8. L'injection de mousse a été effectuée continuellement pendant une période de 96 h. En raison des difficultés de mise en service du système d'injection, notamment le maintien et la validité des conditions d'injection, mais aussi le comblement des différentes fuites, nous avons choisi de ne pas injecter conjointement la mousse dans les 3 lignes d'injections. La ligne d'injection 1 (IL1) a été mise en service 24 h après la mise en service des lignes d'injections 2 et 3 (IL2, IL3). Les premières 24 heures ont permis d'assurer la validité des flux injectés et de réguler le système afin qu'il fonctionne de manière autonome. Globalement, peu d'incidents ont été répertoriés. Hormis quelques fuites rapidement comblées, seul un incident a été enregistré. À 67 h, le réservoir de tensioactif était vide et a conduit à l'injection uniquement de gaz et d'eau (sans formation de mousse). Cet événement est observable sur toutes les lignes d'injections avec une baisse des pressions d'injections. Afin d'assurer la maintenance (ré amorçage des pompes) l'injection a été arrêtée

pendant 30 minutes.

Sur la base de l'évolution de la pression d'injection, nous avons fixé le débit d'air, le débit d'eau et la concentration de tensioactifs afin :

1. D'éviter une pression d'injection trop élevée. Le système d'injection a été développé pour une pression maximale de 3 bar (pression relative). Pour réduire la pression, les débits ont été ajustés à la baisse afin de garantir la pérennité de l'injection. Par exemple, à 47 h, sur IL1, la pression atteignait 3 bar comme le montre la figure 6.8. Le débit d'air et le débit d'eau ont été diminués respectivement de 35 L/min à 12 L/min et de 0,35 L/min à 0,07 L/min.

2. D'augmenter la pression d'injection pour générer une mousse forte en augmentant les débits et la concentration en tensioactifs. Sur IL2, pour satisfaire la génération d'une mousse forte, nous avons augmenté la concentration en tensioactif (à 9 h) et les débits totaux (à 48 h). Dans chaque cas, cette modification a été suivie d'une augmentation significative de la pression.

La génération de mousse dans l'aquifère est traduite par l'augmentation de la pression d'injection dans toutes les lignes d'injection. Pour IL2, la pression d'injection a augmenté au cours des 12 premières heures avant d'atteindre un maximum de 2,55 bar. Par la suite, la pression s'est stabilisée autour de 1,8 à 1,9 bar jusqu'à la fin de la période d'injection. La ligne IL1 est marquée par une augmentation très rapide jusqu'à atteindre la limite acceptable de 3 bar. Après l'ajustement des débits d'injections, la pression s'est globalement stabilisée autour de 1,7 bar. La ligne IL3 est marquée par une augmentation plus lente de la pression au début du test d'injection (pression stabilisée autour de 0,7 bar). Cette lente augmentation lors des 50 premières heures peut traduire un milieu plus perméable.

6.4.2 Volume de mousse injecté

Se basant sur les débits d'air et d'eau à pression atmosphérique, le volume de mousse injecté dans les différents puits peut être approximé. Ce volume calculé considère que pour une ligne d'injection donnée, les deux fluides se transforment intégralement en mousse qui est injectée équitablement dans les deux puits d'injection. Ainsi en considérant une porosité de 0,25 et une épaisseur d'aquifère de 2 m, le rayon théorique maximal de pénétration de la mousse peut être calculé. Ce rayon théorique varie entre 4 et 7 m pour les différents puits d'injection (tableau 6.1).

Ce calcul consiste en une première estimation. Néanmoins il est fort probable qu'il sur estime la distance de propagation de la mousse, compte tenu de la ségrégation du gaz (Shi et Rossen, 1998) et des hétérogénéités de l'aquifère (Renkema et Rossen, 2007). Ainsi ces volumes et rayons calculés constituent la limite supérieure acceptable pour la simulation.

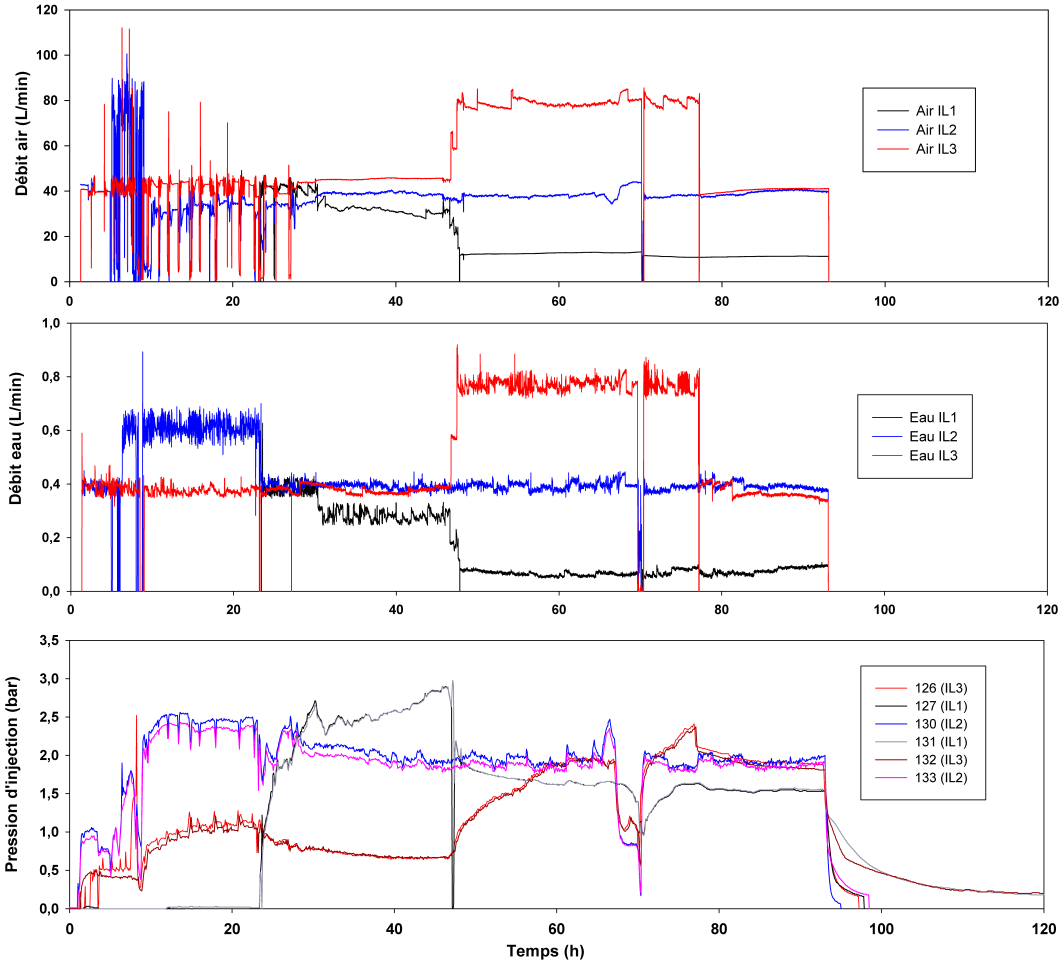

Figure 6.8 : Enregistrement de la pression d'injection (bar) et des débits (L/min) en fonction du temps (heure) pendant le test d'injection de mousse dans les 6 puits d'injections

Tableau 6.1 : Volume et rayon maximal d'influence de la mousse calculé

Ligne d'injection	Piézomètre	Volume mousse [m^3] à pression atmosphérique	Rayon maximal [m]
IL1	127	45	3,8
	131	45	3,8
IL2	130	110	5,9
	133	110	5,9
IL3	126	150	6,9
	132	150	6,9

Tableau 6.2 : Conductivité hydraulique calculée (m.s^{-1}) en fonction du temps. **en gras** : facteur de réduction

Piézomètre	Etat intial	Directement après l'injection de mousse	3 mois plus tard
127	$5{,}6 \times 10^{-5}$	-	$1{,}2 \times 10^{-6}$ / **48**
130	$2{,}3 \times 10^{-5}$	-	$1{,}4 \times 10^{-6}$ / **17**
131	$4{,}9 \times 10^{-5}$	$3{,}6 \times 10^{-7}$ / **137**	-
133	$1{,}6 \times 10^{-5}$	$1{,}4 \times 10^{-7}$ / **109**	$6{,}1 \times 10^{-7}$ / **25**

6.4.3 Slug tests

Les observations de terrain ont montré que tous les puits d'injection étaient secs à la fin du test. Parce que le retour au niveau statique était caractérisé par des temps longs (plus de 15 heures pour atteindre le plus rapidement le niveau statique), les mesures par *slug test* n'ont pas pu être réalisées pour les piézomètres 126, 127, 130 et 132. Les conductivités hydrauliques calculées pour les piézomètres 127 et 130 (effectuées 3 mois après l'injection de mousse) et 131 et 133 sont présentées dans le tableau 6.2.

Un facteur de réduction de la conductivité hydraulique supérieur à 100 a été mesuré par *slug test* directement après l'injection de mousse. La persistance de la mousse a été mise en évidence par des *slug tests* réalisés 3 mois après l'injection de mousse avec un facteur de réduction encore supérieur à 10. Ces mesures bien que très locales, prouvent l'efficacité de la mousse sur des temps relativement longs. Néanmoins ces mesures ne permettent pas de définir la rayon d'influence

de la mousse. En comparaison avec le modèle 2D d'écoulement présenté dans le chapitre 5, et au regard des conditions d'injections similaires entre les tests, l'influence de la mousse est estimée à 1 m de rayon minimum (compte tenu du temps d'injection plus long).

6.4.4 Test de pompage

L'essai de pompage a été effectué pendant 9,96 heures. Le débit d'exhaure a varié entre 0,47 et 0,60 $m^3.h^{-1}$, pour un débit moyen de 0,57 $m^3.h^{-1}$ et un volume total d'eau extrait de 5,74 m^3. Le puits de pompage était le puits 38 d'un diamètre de 53 mm.

Ce test a été interprété à partir d'un modèle numérique. Les données d'observations correspondent aux données de rabattement et de remontée du niveau des eaux après le test de pompage. La première étape de modélisation consiste à caler les rabattements observés au puits de pompage (38) et aux piézomètres d'observations (126, 127, 128, 130, 131, 132 et 133). Le modèle permet une bonne reproduction des rabattements observés au puits de pompage pour une conductivité hydraulique moyenne de $1{,}6 \times 10^{-4}$ $m.s^{-1}$ et pour une valeur classique du coefficient de stockage 10^{-4}.

L'évolution du rabattement dans les piézomètres d'observations (ancien puits d'injection de mousse), requiert l'ajout de zones avec des valeurs de K et S significativement différentes, en raison de la présence de mousse. Ainsi, nous avons établi des zones de faibles conductivités hydrauliques pour définir l'influence de la mousse (compris entre 10^{-10} et 10^{-9} $m.s^{-1}$). Initialement le rayon de la zone de mousse a été fixé au regard des rayons calculés à partir des volumes de mousse injectée (tableau 6.1). Pour caler les rabattements aux piézomètres d'observations les rayons de mousse ont dû être adaptés individuellement. En effet, une analyse de sensibilité a été effectuée et a montré que le rabattement de chaque piézomètre était essentiellement fonction du diamètre et de la position de la zone de mousse par rapport au piézomètre. La sensibilité du modèle a été testée pour l'extension, la position et les caractéristiques hydrauliques (K et S) de la zone de mousse. Le piézomètre 126 a été sélectionné pour l'analyse de sensibilité du fait de l'excellent calage obtenu (considéré comme le cas de base). La figure 6.10 montre les différences des niveaux piézométriques modélisés dans le puits 126 entre le cas de référence et les autres cas. Afin de comparer les résultats, la valeur de K a été adaptée pour obtenir la même valeur de rabattement maximal que celle du cas de référence. L'étude de sensibilité concerne le diamètre de la zone de mousse (+diam et -diam correspondant à l'augmentation ou la réduction du diamètre par rapport au cas de référence), la position du centre de la zone de mousse suivant la direction de l'axe x et y du modèle (+x et +y). Le paramètre $dKdS$ permet de tester l'influence d'une variation du ratio entre K et S sur le rabattement.

Les résultats soulignent clairement le fait que le rapport K/S joue un rôle secondaire dans l'ajustement, alors que le modèle est très sensible au diamètre ou à la position de la zone. Les résultats concernant la dimension ou la position de la zone contenant de la mousse semblent donc correctement simulés.

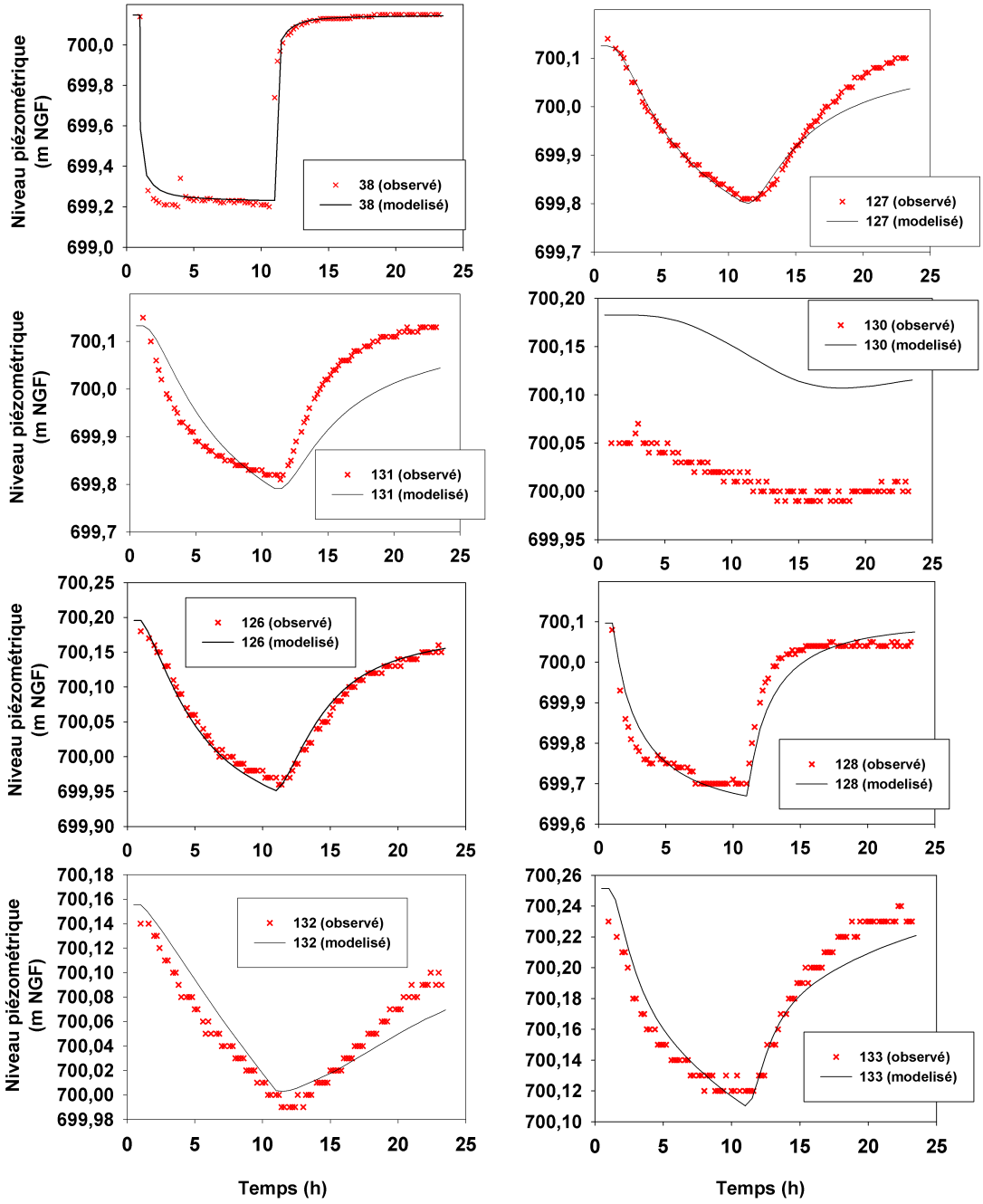

Figure 6.9 : Courbes de calibration du modèle d'interprétation du test de pompage

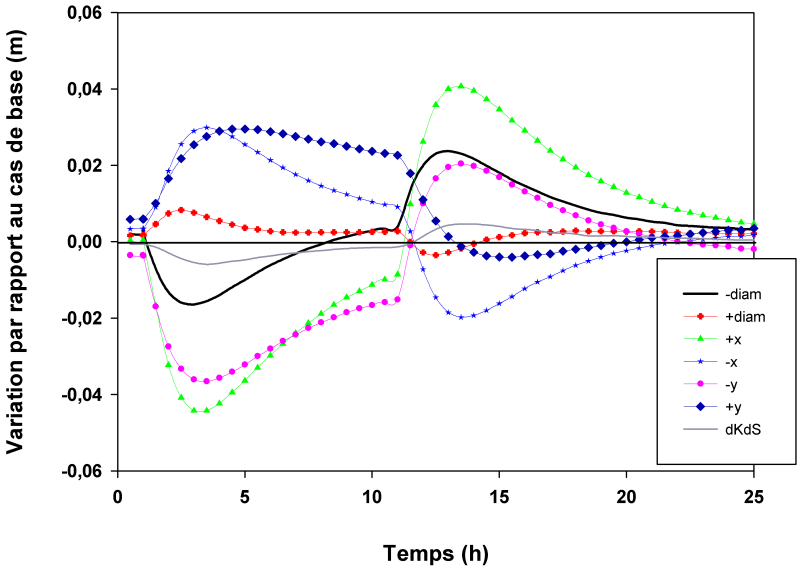

Figure 6.10 : Résultats de l'analyse de sensibilité

Par ailleurs, les courbes de rabattements présentent des formes très différentes d'un rabattement dans un aquifère naturel. On note une réponse rapide mais une amplitude du rabattement très faible. Le piézomètre 130 présente une différence entre les valeurs modélisées et observées (de l'ordre de 10 cm) qui peut être dû à la présence d'une zone de très faible conductivité hydraulique, conduisant à un état de non-équilibre avec le reste de l'aquifère au début de l'essai. En définitive, d'après le modèle, les rayons des zones de mousse varient entre 2,0 et 3,2 m (figure 6.11). Les rabattements calculés correspondent aux valeurs observées uniquement si le diamètre de la zone de mousse est inférieur au rayon préalablement calculé (tableau 6.1) et en considérant des valeurs de conductivité hydraulique très faibles (variant de 9,2 x 10^{-9} à 1,0 x 10^{-10} m.s^{-1}). Les coefficients de stockage calés pour les zones de mousses sont globalement supérieurs à la valeur originelle 10^{-4}, ce qui peut être lié à la présence d'air dans la mousse.

6.4.5 Réduction des flux en aval hydraulique de la zone confinée

6.4.5.1 Résultats des PFMs et des prélèvements ciblés

En suivant la méthode présentée par Annable *et al.* (2005), les flux de Darcy ont été calculés à partir des données de pertes des alcools. Le contraste de perméabilité entre l'aquifère et le PFM conduisant à des flux convergeants a été pris en compte au travers de l'équation de Strack et Haitjema (1981) (Annable *et al.*, 2005; Hatfield *et al.*, 2004). Nous avons considéré une conductivité hydraulique du PFM égale à 5×10^{-3} m.s^{-1} et une conductivité hydraulique de l'aquifère

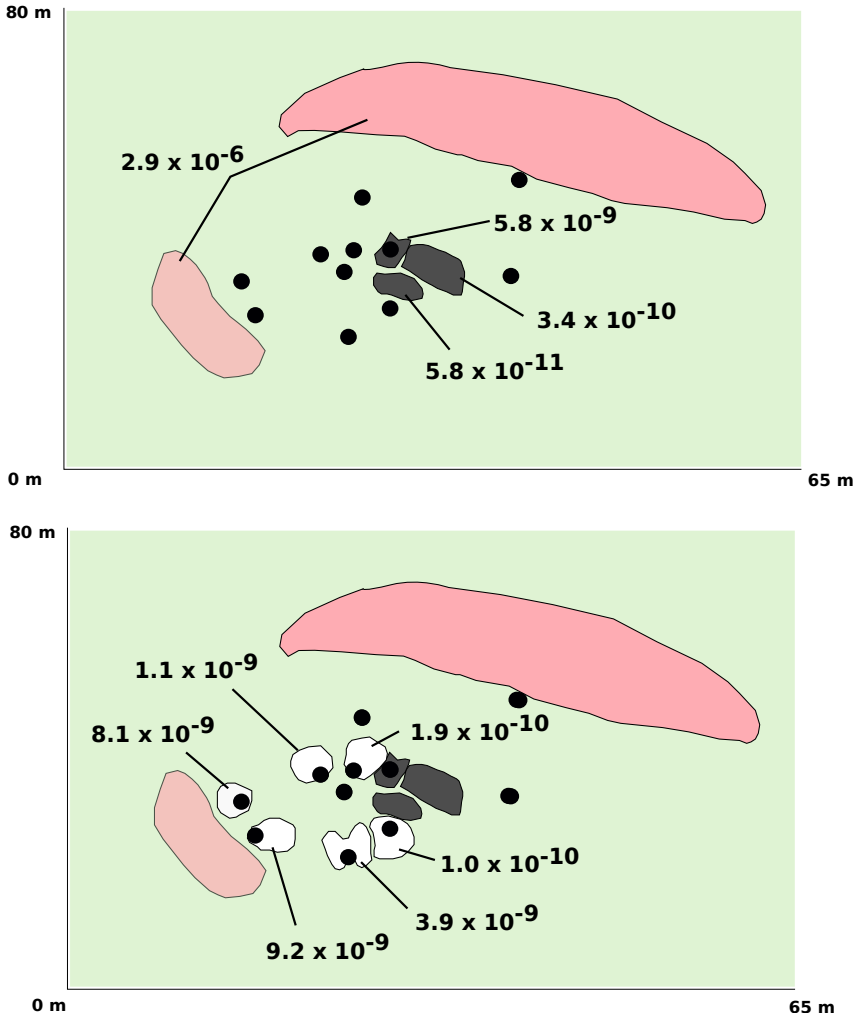

Figure 6.11 : Champ de conductivité hydraulique (m.s^{-1}) avant (en haut) et après (en bas) l'injection de mousse. Les zones blanches traduisent les zones de mousses

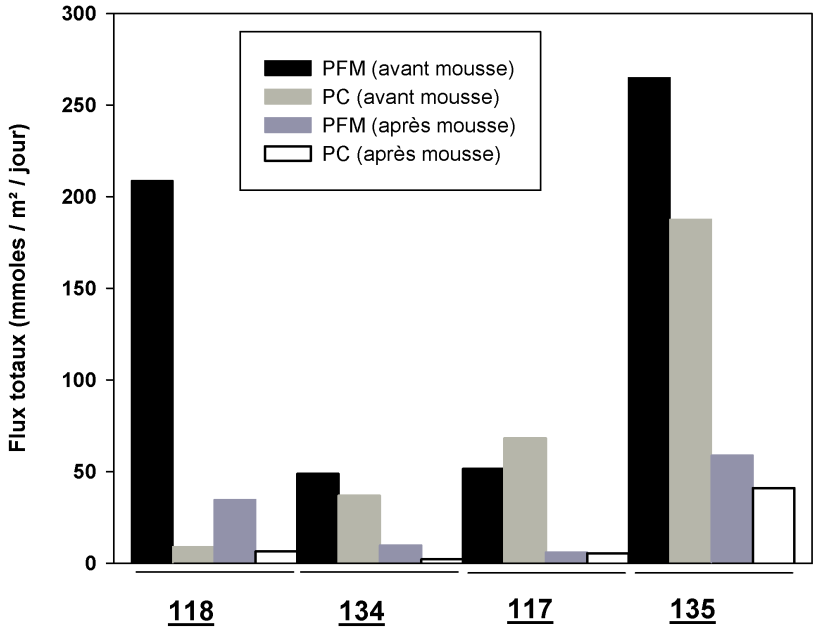

Figure 6.12 : Résultats du PFM et du préleveur ciblé (PC) (mmol.m^{-2}.jour^{-1}). Les nombres sur l'axe des x représente les piézomètres

de l'ordre de 1×10^{-5} jusqu'à 5×10^{-5} m.s^{-1}($\alpha = 2$). A partir de la masse de solvants chlorés accumulées sur le PFM, du temps de déploiement du PFM, et du coefficient α, un flux massique de solvants chlorés a pu être calculé et exprimé en mmol.m^{-2}.jour^{-1}. Par ailleurs, le prélèvement ciblé permet la définition d'une concentration en solvants chlorés dans les eaux souterraines à différentes profondeurs. Pour cette méthode, les flux de contaminants ont été obtenues par la multiplication des concentrations par les vitesses d'écoulements définies à partir des PFMs. Cette approche permet de comparer un échantillonnage traditionnel des eaux souterraines correspondant à une image instantanée de la contamination, avec la méthode des PFMs qui donne une intégration temporelle du flux massique de contaminant.

Les résultats du PFM et du préleveur ciblé sont présentés en figure 6.12 sous forme de flux sur la totalité de l'épaisseur de l'aquifère. De même la distribution verticale des concentrations molaires est représentée en figure 6.13.

Les concentrations molaires totales calculées pour les PFM étaient globalement dans la même gamme que l'analyse des eaux souterraines provenant de l'échantillonnage au préleveur ciblé, à l'exception du piézomètre 118 qui présente des concentrations plus faibles pour l'échantillonnage traditionnel. Tous les piézomètres de surveillance ont enregistré une diminution des flux de solvants chlorés allant de 39 à 206 mM.m^{-2}.jour^{-1}. La réduction maximale a été enregistrée pour le piézomètre 117, avec une réduction d'un ordre de grandeur (de 51 à 5 mM.m^{-2}.jour^{-1}). Le facteur de réduction calculé varie entre 4,5 (piézomètre

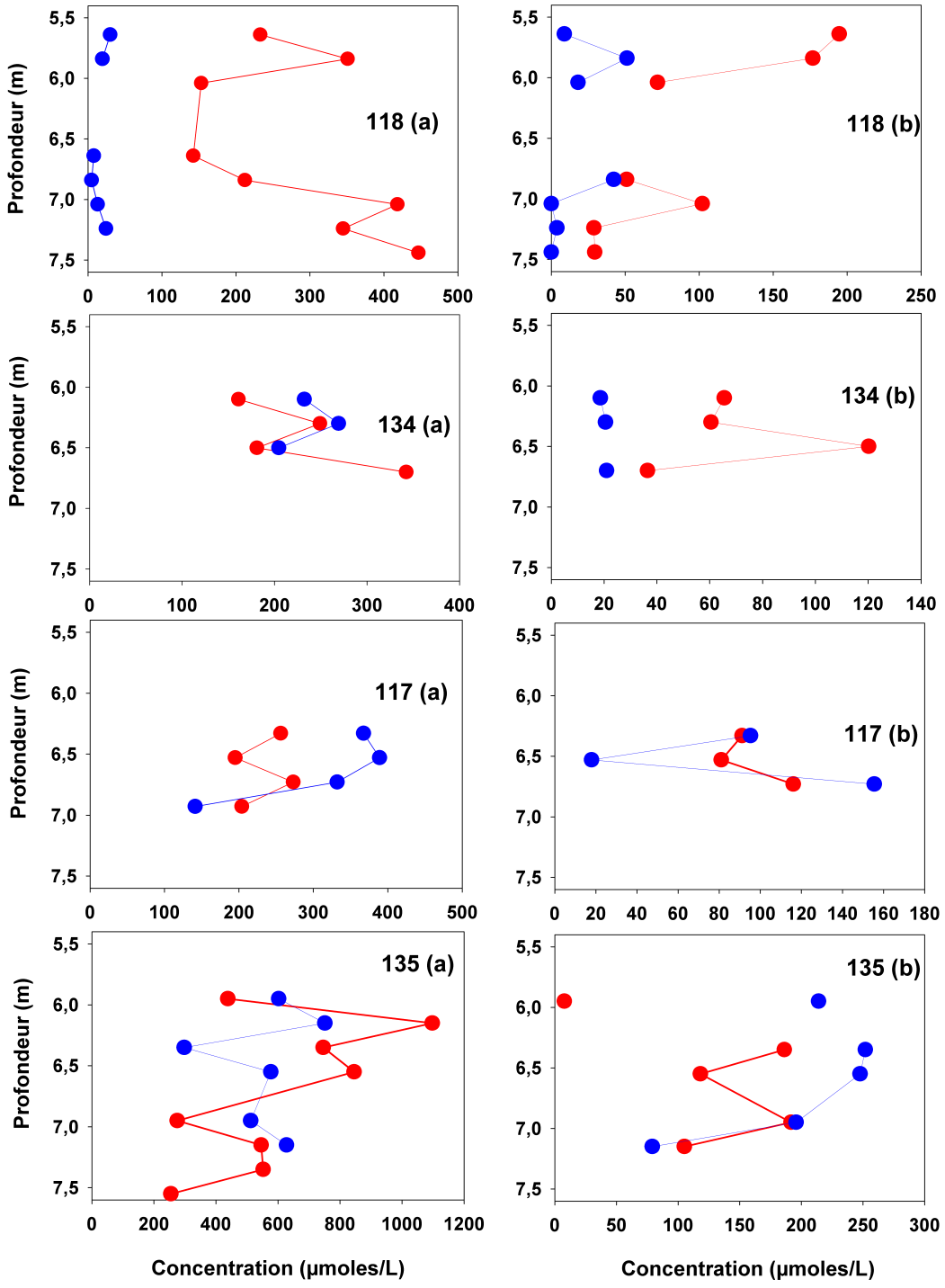

Figure 6.13 : Profils des concentrations molaires (μM/L) (a) avant l'injection de mousse, et (b) après l'injection de mousse. Les figurés en rouge correspondent aux valeurs mesurées avec le PFM et les figurés bleu correspondent aux valeurs mesurées avec le préleveur ciblé

135) et 6,1 (piézomètre 118). On remarque que le gradient de concentration est conservé qu'après l'injection de mousse avec un maximum dans le piézomètre 135 et une diminution plus vers l'ouest. Comme les résultats du piézomètre 118 sont difficilement interprétables en raison des fortes différences entre les deux techniques de mesure, nous avons défini un facteur de réduction global se basant sur les résultats des 3 autres piézomètres. Avant injection de mousse le flux total transitant par ces 3 piézomètres est de l'ordre de 265 mmol.m^{-2}.jour^{-1} pour les deux techniques de mesures. Après injection de mousse, une moyenne de 60 mM.m^{-2}.jour^{-1} est calculée avec une valeur de 47 mM.m^{-2}.jour^{-1} pour l'échantillonnage classique, et 76 mM.m^{-2}.jour^{-1} pour le PFM. Dans ces conditions, un facteur de réduction du flux de 4,4 est estimé. Ces mesures de flux totaux ont permis de mettre en évidence l'impact important de l'injection de mousse avec une réduction notable du flux de polluant en aval de la zone confinée.

6.4.5.2 Calcul de réduction du flux en aval hydraulique par modélisation

Afin de les comparer aux mesures de flux effectuées sur les piézomètres de contrôle situés en aval hydraulique de la zone source confinée, nous avons simulé ces flux avec le modèle numérique 2D. Le modèle de mousse a été utilisé pour calculer le flux dissous de SC délivré par la zone source (figure 6.14), en considérant une dimension de zone source estimée et une concentration fixe de la source (100 ţM). En utilisant uniquement les zones de mousse obtenues par le calage des données de l'essai de pompage, le flux est réduit d'un facteur 3,05 après l'injection de mousse. Cette valeur est proche de la réduction obtenue par la mesure des flux, bien que plus faible.

Bien que le modèle numérique suggère que la zone n'est pas totalement confinée, les résultats montrent que la mousse agit clairement comme une barrière hydraulique et conduit à une réduction importante des flux de contaminants en aval hydraulique.

6.4.6 Efficacité de la mousse

Bien que la réduction du flux SC soit significative, les résultats montrent que la mousse injectée n'a pas bloqué l'ensemble de la zone. Les zones bloquées ont une conductivité hydraulique très faible et abaissée d'un facteur supérieur à 100. Les expériences de laboratoire ont montré que la réduction du k_{rw} était liée à une saturation en eau plus faible dans le milieu poreux. Cependant, cet effet semble se produire uniquement après injection de plusieurs volumes de pores de mousse. Il est donc possible que la mousse identifiée dans le modèle d'écoulement soit la partie où la saturation en eau est proche de la saturation limite S_w^* conduisant à des valeurs très faibles du k_{rw}. Les premiers volumes de pores de mousse injectée peuvent donc constituer en une mousse faible et avoir un effet médiocre sur la conductivité hydraulique du milieu. Ils ne sont pas pris en compte dans le modèle de pompage et peuvent jouer un rôle dans le déplacement des contaminants, ce

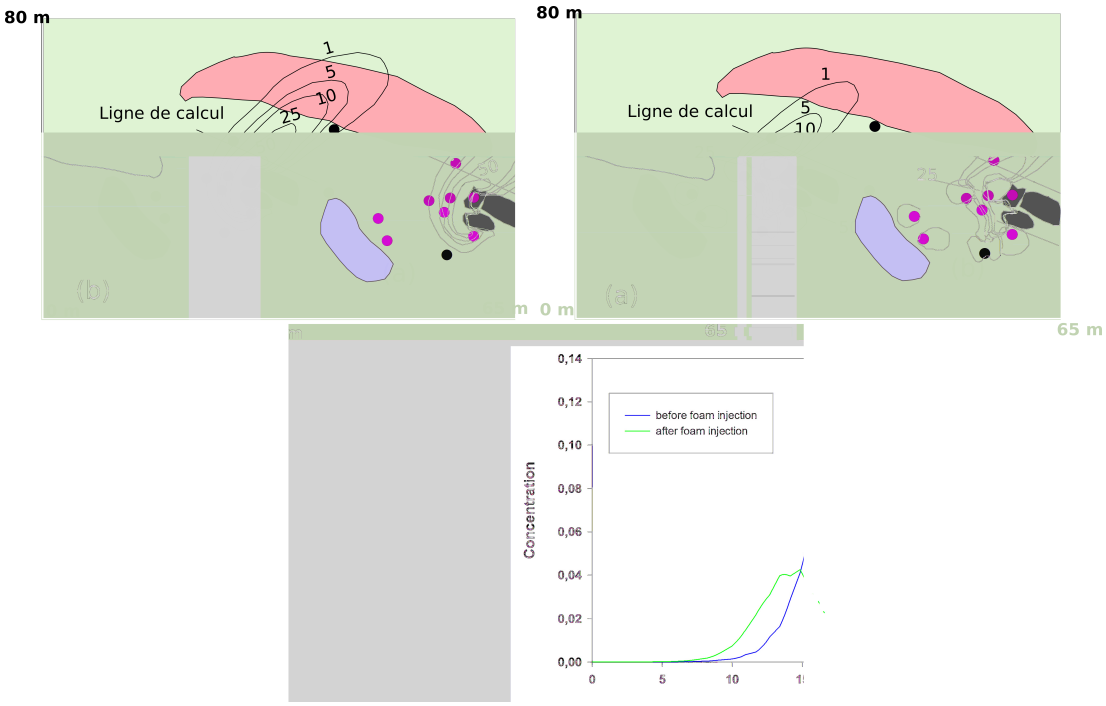

Figure 6.14 : Simulation du transport (a) avant, (b) après l'injection de mousse. (c) flux calculé suivant le long de la ligne de calcul

qui justifierait que les flux de SC sont sous-estimés dans le modèle par rapport à la réalité. Si cette hypothèse est vérifiée, l'efficacité globale de la mousse pourrait ainsi être améliorée par deux approches : un mélange différent de tensioactif qui diminue la quantité de *weak foam*, ou l'injection à une vitesse plus élevée pour favoriser la *strong foam* (Rossen et Gauglitz, 1990), en utilisant l'injection de type SAG qui permet de diminuer les pressions d'injections et d'augmenter la distance de propagation de la mousse (Boeije *et al.*, 2014; Hirasaki *et al.*, 1997; Shan *et al.*, 2002; Shi et Rossen, 1998).

6.5 Discussion : positionnement des travaux dans le cadre des études sur la mousse

L'injection de mousse en contexte environnemental reste un domaine mal connu et surtout très peu testé sur le terrain. A ce jour, il existe trois applications terrains Hirasaki *et al.* (1997), Maire *et al.* (2018) et nos expériences. Ces trois applications promeuvent trois stratégies pour la remédiation des sols contaminés (figure 6.15) :

- Le blocage sélectif des zones de fortes perméabilités (Hirasaki *et al.*, 1997)
- La mobilisation et le déplacement des DNAPLs (Maire *et al.*, 2018)
- Le confinement in-situ (nos expériences)

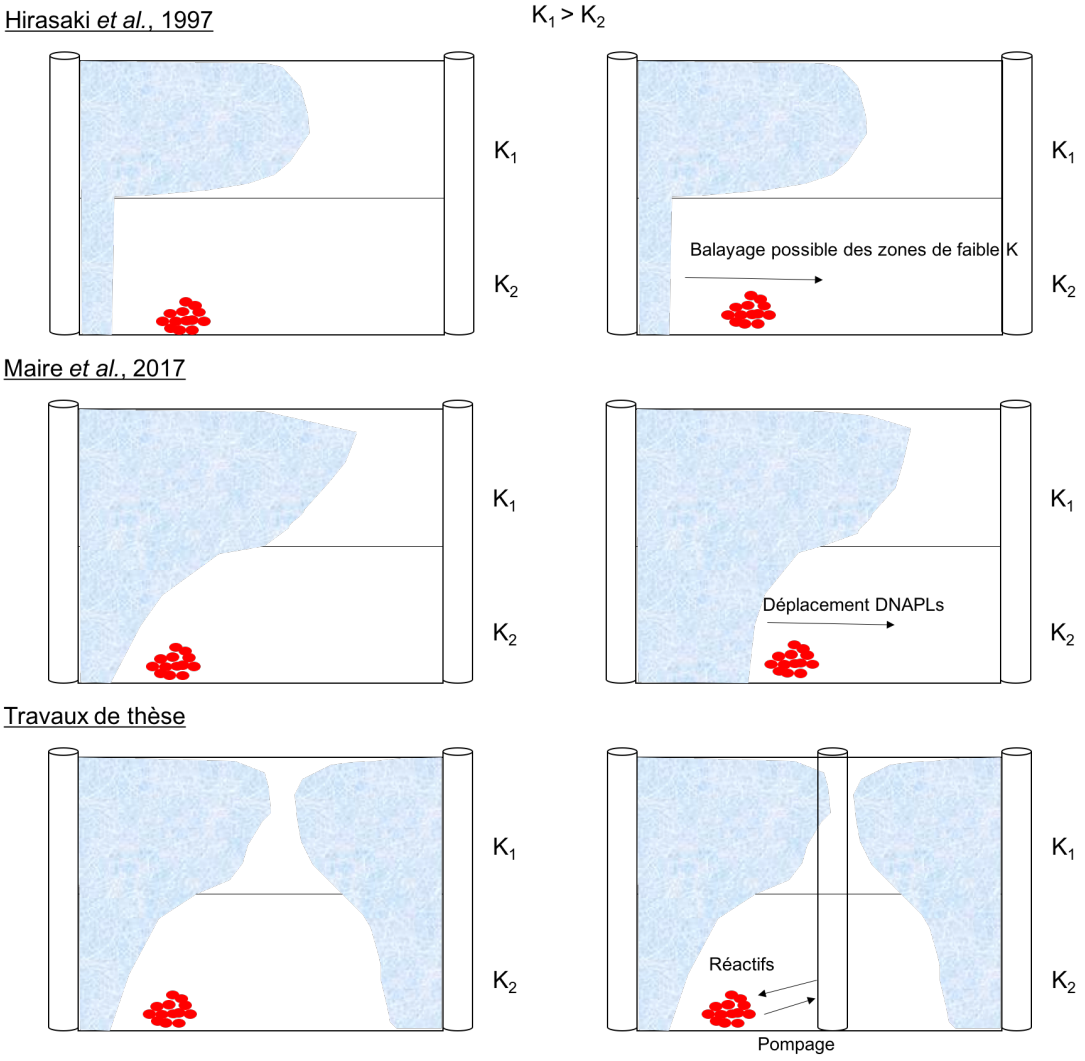

Figure 6.15 : Représentation des trois applications possibles dans le cadre d'une injection de mousse en contexte environnemental. Nos expériences et celle de Hirasaki *et al.* (1997) sont des méthodes indirectes et nécessite l'application d'une technique de soutien. L'application selon Maire *et al.* (2018) constitue une méthode directe de remédiation.

Lors de l'application par Maire *et al.* (2018), la réussite du déplacement des DNAPLs est régie par la formation d'un front de *strong foam* (Maire et Fatin-Rouge, 2017). Notre application nécessite l'injection d'une mousse permettant la réduction de la saturation en eau. Le confinement transitoire est obtenu par la difficulté d'écoulement de l'eau dans un milieu constitué d'eau et de mousse.

Capacité à déplacer un fluide. Le point commun aux trois applications citées précédemment résident dans la capacité de la mousse à déplacer un fluide initialement présent que ce soit de l'eau ou une phase organique. Néanmoins du fait de propriétés différentes des fluides, notamment la viscosité et la pression capillaire, leur capacité de déplacement par une mousse donnée n'est pas la même. Dans nos expériences de terrain nous avons montré qu'une qualité de mousse proche de 98% (régime non optimal) convenanait pour des objectifs de k_{rw} de l'ordre de 10^{-2} à 10^{-3}. Dans le cadre de la mobilisation des NAPLs il apparaît que la stabilité de la mousse est primordiale pour le déplacement de fluides visqueux (Longpré-Girard *et al.*, 2016; Maire *et al.*, 2015; Maire et Fatin-Rouge, 2017; Maire *et al.*, 2018; Wang et Chen, 2014). Comme la stabilité de la mousse est régit en partie par la qualité de mousse, il convient de la définir pour obtenir une mousse optimale (Longpré-Girard *et al.*, 2016; Maire *et al.*, 2015; Maire et Fatin-Rouge, 2017; Maire *et al.*, 2018; Wang et Chen, 2014).

Le nombre capillaire définit par l'équation 6.1, apparaît comme un paramètre primordial pour le déplacement de fluide visqueux (NAPL). Il représente la compétition entre les forces visqueuses (force de rétention) et les forces capillaires (force de mobilisation) et détermine la distribution et le potentiel de mobilisation des NAPLs.

$$N_{ca} = \frac{\mu \times v}{\sigma} = \frac{k \times \nabla P}{\sigma} \tag{6.1}$$

Avec μ : la viscosité apparente de la mousse, v : la vitesse d'injection de la mousse, σ : la tension interfaciale entre la phase mouillante et la phase non mouillante, k : la perméabilité intrinsèque, ∇P : le gradient de pression.

Lake (1989) a défini une relation entre les saturations finales des liquides mouillants et non mouillants avec le nombre capillaire. Il existe deux stades :

- Pour des N_{ca} inférieurs à 10^{-5}, la saturation résiduelle de la phase non mouillante est constante (autour de 30%).
- Pour des N_{ca} supérieurs à 10^{-5}, Lake (1989) définit une relation logarithmique avec une décroissance de la saturation résiduelle avec une augmentation du nombre capillaire.

Pour les objectifs de remédiation, les différents auteurs maximisent la récupération des NAPLs en générant une mousse associée à un nombre capillaire supérieur à 10^{-3} (Jeong et Corapcioglu, 2003; Maire et Fatin-Rouge, 2017). L'équation 6.1 montre que ce nombre peut être maximisé en augmentant la viscosité apparente de la mousse ou en diminuant la tension interfaciale entre les NAPLs et l'eau. Ce concept prouve que la sélection du tensioactif est une étape primordiale.

Tensioactifs. Le premier point important est la sélection du ou des tensioactif. Le tensioactif a un rôle important dans la génération et la stabilité de la mousse dans les milieux poreux. Il affecte les forces interfaciales entre le gaz et le liquide qui à leur tour affectent la valeur de la pression capillaire. Comme mentionné dans la littérature, les forces entrainant la coalescence de la mousse sont inversement proportionnelles à la concentration en tensioactif, c'est à dire que la mousse s'affaiblit à mesure que la concentration en tensioactifs diminue (Apaydin et Kovscek, 2001). Friedmann *et al.* (1986) ont montré que la taille des bulles de gaz diminue avec l'augmentation de la concentration en tensioactifs entrainant une meilleure stabilité en milieu poreux.

Dans les trois démonstrations, le tensioactif (DHSS) et le mélange (SLES, CB, LG) ont permis la génération d'une *strong foam*. Il existe un éventail large de tensioactifs permettant de générer de la *strong foam* : les sulfonates d'alpha-oléfine (AOS) (Andrianov *et al.*, 2011; Farajzadeh *et al.*, 2009), les sulfates de sodium (Andrianov *et al.*, 2011; Khatib *et al.*, 1988; Ransohoff *et al.*, 1988), les biotensioactifs (Wang et Mulligan, 2004). La sélection du tensioactif est une étape importante car elle conditionne la stabilité de la mousse générée par sa capacité à présenter des pressions capillaires limites P_c^* plus élevées, et à contrer les effets gravitaires (*gravity override*). Le régime *strong foam* correspond au régime permettant de réponde à ces contraintes. Pour l'application de la mousse pour la mobilisation des contaminants, Maire et Fatin-Rouge (2017) ont montré que l'efficacité du balayage et donc le déplacement des NAPLs a été grandement amélioré par l'utilisation d'une *strong foam*. Par ailleurs la formulation à son importance pour cette application, notamment pour augmenter le pourcentage de récupération des contaminants (Mulligan et Eftekhari, 2003), de même que la concentration en tensioactifs (Wang et Chen, 2014).

Pour l'application d'un blocage complet ou sélectif, le caractère *strong foam* peut-être modéré. Nos expériences semblent démontrer que le caractère *strong foam* (caractérisé par un fort RF) ne constitue pas un point crucial. La réduction de la saturation peut être équivalente pour différentes formulations (Del Campo Estrada *et al.*, 2015; Tang et Kovscek, 2006) . Ces observations sont valables en 1D, pour les milieux homogènes.

Type de gaz pour générer la mousse. Les contraintes environnementales liées à l'injection de mousse à de faibles profondeurs constituent un challenge supplémentaire. Parmi les solutions apportées par le passé pour réduire la pression d'injection tout en conservant le caractère *strong foam*, la sélection du gaz peut constituer un point clé. Si pour la mobilisation des polluants le CO_2 permet la réduction de la pression (Farajzadeh *et al.*, 2011) tout en conservant la pouvoir de récupération des contaminants (Maire *et al.*, 2015), le CO_2 semble peu approprié pour des stratégies de confinements. En effet, le CO_2 se dissolvant beaucoup plus que le N_2 (Maire *et al.*, 2015), la stabilité à long terme des mousses de CO_2 montré par les expériences de Aarra *et al.* (2014) est plus faible. Pour un confinement optimum et suffisamment long, malgré la contrainte de pression plus forte, il apparaît nécessaire de travailler sur d'autres paramètres pour réduire la pression d'injection.

Qualité de mousse. La qualité de la mousse est un paramètre important qui détermine les caractéristiques de propagation et de mobilité de la mousse (Osterloh *et al.*, 1992). Un certain nombre d'études sur la qualité de la mousse ont montré que la mousse présente des propriétés de réduction de la mobilité lorsque la qualité de la mousse est comprise entre 45 et 95% (Schramm, 1994). En théorie le *high quality regime* correspond au régime ou la pression capillaire limite P_c^* et la saturation limite S_w^* sont atteintes et ce pour les différentes qualités de mousse. En effet, pour pallier aux contraintes de pression capillaires, la structure de la mousse change avec notamment l'augmentation des tailles de bulles pour contrer la baisse de pression capillaires (Alvarez *et al.*, 2001; Osterloh *et al.*, 1992). Ce régime se traduit par une décroissance linéaire du RF lorsque la qualité de mousse augmente au-dessus d'un seuil qui est souvent proche de 95 % (Ma *et al.*, 2012; Maire *et al.*, 2015). Ceci peut s'expliquer par le fait que la dispersion du gaz dans la phase liquide augmente avec l'augmentation de la qualité de mousse (Farzaneh *et al.*, 2013). Pour l'application de confinement, il est donc intéressant de travailler dans cette gamme de qualité.

Débits d'injection d'air et eau. D'après la théorie de la catastrophe de Afsharpoor *et al.* (2010), la transition entre *weak foam* et *strong foam* est abrupte, et apparaît au-delà d'un débit total fixé (Gauglitz *et al.*, 2002). D'après les expériences en laboratoire, ce paramètre ne semble pas influer autant sur la stabilité de la mousse dès lors que la valeur seuil est dépassée. Cependant sur le terrain, lors d'une injection radiale, la vitesse diminue rapidement avec l'éloignement du puits, donc le "débit" équivalent diminue aussi. Ainsi il faut que le débit d'injection à une certaine distance du puits d'injection soit le plus élevé possible et ce pour garantir la continuité de la *strong foam* (cf. Chapitre 5).

Durée de l'injection. Pour les applications de mousses, il apparaît que le nombre de volumes de pore injectés influent sur le déplacement des fluides (eau et NAPL) (Maire *et al.*, 2015; Mulligan et Eftekhari, 2003; Mulligan et Wang, 2006). Nos expériences confirment ce processus pour le déplacement de l'eau. En effet la stabilisation de la saturation en eau est obtenue après 3 VP en pilote 2D et 5 VP en colonne. La différence de configuration des tests en laboratoire indique que les effets gravitaires (présent en colonne et moins importants en pilote) tendent à augmenter le nombre de volumes de pore à injecter pour arriver à stabilisation. Extrapoler à un système 3D où les effets gravitaires sont présents, ce temps d'injection peut être très important et à ne pas négliger. Hirasaki *et al.* (1997) ont déterminé les vitesses de propagation à partir des temps de percée de la mousse dans les puits d'observations. Dans les parties hautes de l'aquifère la propagation de la mousse a été estimée à 1,8 à 4 m/h, tandis que dans les parties basses, la propagation de la mousse est plus lente 0,17 à 0,19 m/h. Ces vitesses sont contraintes par les conditions d'injections avec un débit total d'injection de l'ordre de 110 L/min en régime SAG. Dans notre cas, après 96h, pour un débit de total de l'ordre de 50 L/min, d'après les travaux de modélisation la mousse s'est propagé sur 2,0 à 3,2 m. Une vitesse approximative de l'ordre de 2 à 3 cm/h traduit une propagation très lente de la mousse. Pour rappel, les zones de mousse modélisée traduisent l'envahissement du milieu par de la *strong foam*. Aussi la

propagation de mousse de plus faible stabilité est probablement plus rapide et difficilement calculable en l'état. L'augmentation de la vitesse de la mousse est donc certainement une clé d'un meilleur confinement.

Rémanence de la mousse dans le milieu poreux. A notre connaissance, il existe peu de données sur la rémanence de la mousse en milieu poreux. Classiquement, la stabilité des mousses est mesurée hors milieux poreux par des méthodes mesurant le temps de demi-vie de la mousse (Estrada, 2014; Liu *et al.*, 2005). Cette stabilité hors milieux poreux est souvent comparée à la faculté de la mousse à se propager dans un milieu poreux. Les éléments comparés entre les deux méthodes sont le temps de demi-vie (hors milieu poreux) et la pression d'injection, autrement dit le RF (dans le milieu poreux) (Maini *et al.*, 1984). Dans l'optique d'un confinement, la stabilité de la mousse sous-entend sa capacité à confiner sur des temps significatifs. Il existe peu d'études sur la rémanence des mousses dans les milieux poreux, la définition du terme "stabilité" n'étant pas la même. Nos différentes mesures sur le terrain donnent une première indication de la stabilité de la mousse sur le long terme à la fois proche du puits d'injection, avec une persistance de la mousse supérieure à 3 mois, mais aussi à distance des puits d'injections (plusieurs mètres), mis en évidence par le test de pompage réalisé 1 mois après l'injection de mousse. Maire *et al.* (2018) ont observé, à partir d'une collecte d'échantillons de sols, la présence de mousse 3 semaines après l'injection, prouvant la durée de vie relativement longue de la mousse dans le sol.

Synthèse

Une injection de mousse a été réalisée sur un site réel et comporte les aspects suivants :

- Une implantation des piézomètres fortement contraintes par la présence de machine ;
- Un système d'injection entièrement automatisé permettant l'injection de mousse en continu pendant 96h ;
- Un suivi des paramètres (débits, pression) en temps réel ;

La performance de l'injection a été évaluée à partir :

- d'essais hydrauliques de terrain : *slug test* et essai de pompage longue durée ;
- de mesures de flux de polluant en aval hydraulique de la zone d'injection, à travers deux outils de mesure : le PFM et le préleveur ciblé ;
- d'un modèle d'écoulement et de transport en 2 dimensions ;

L'injection de mousse sur site indique :

- L'obtention de *strong foam* autour des puits d'injection mis en évidence par les mesures locales (*slug test*) ;
- Un rayon d'influence de la mousse significatif compris entre 2 et 3,2 m, évaluée à partir de l'essai de pompage et de la modélisation de celui-ci ;
- Une réduction du flux en aval hydraulique d'un facteur 4,4 mis en évidence par les mesures effectuées avec le PFM et le préleveur ciblé ;
- Une cohérence des résultats mis en évidence à travers le modèle de transport ;
- Un confinement efficace mais non total de la zone source a priori lié à la présence de *weak foam* lors des premiers m^3 de mousse injectés ;

Chapitre 7

Conclusions et perspectives

Les travaux menés au cours de cette thèse ont notamment permis :

- de présenter une approche permettant une meilleure caractérisation d'un panache de contamination en vue d'améliorer l'estimation des risques et les techniques de remédiation.

- de proposer une nouvelle approche par confinement in-situ pour maitriser une zone source de pollution grâce à l'utilisation de l'injection de mousse.

7.1 Caractérisation et modélisation des processus régissant le développement des panaches de contaminants

7.1.1 Méthodes

Un modèle de transport en 3 dimensions simplifié, simulant la somme molaire en SC a été développé pour définir les mécanismes régissant le développement et le transport des SC.

- Un effort de caractérisation a été mené sur le terrain par la collecte de données visant à préciser l'état de connaissance du milieu et des processus physiques, de disposer d'une quantité suffisante et fiable de données, comme base structurelle pour développer le modèle numérique. Ces étapes ont permis d'établir un modèle conceptuel prenant en compte les données géologiques, hydrogéologiques, et données chimiques (Chapitre 3).

- A partir d'une analyse rigoureuse des données géologiques, la structure 3D du modèle a été transposée numériquement. Les couches principales ont préalablement été repérées et interpolées sur l'ensemble du domaine. Ainsi, la structure se rapproche au mieux de la réalité à partir des données existantes.

- Le fonctionnement hydrogéologique du système complexe a été modélisé avec un calage effectué sur les charges mesurées et le transport des SC. Le flux de polluant émanant de la zone a été exprimé au travers de la concentration molaire totale. Les processus de dégradation n'ont pas été modélisés.

7.1.2 Résultats

Les travaux de thèse ont permis de mettre en évidence les éléments majeurs de ce site, qui n'avaient pas été identifiés auparavant :

- La présence d'une source principale de faible extension comme origine des panaches observés.
- Un comportement hydrogéologique complexe qui à partir d'une zone source très localisée (quelque m^2) entraine soit une digitation du panache (cas de l'aquifère quaternaire), soit un étalement (cas de l'aquifère tertiaire alpha).
- Une connexité locale entre les deux aquifères, avec une infiltration de la majeure partie des SC vers l'aquifère tertiaire alpha.

7.1.3 Comparaison à d'autres sites

Dans nos travaux de modélisation, le transport des SC est essentiellement régi par des structures connectées hautement perméables agissant comme des voies préférentielles de transport, tandis que les zones de faibles perméabilités jouent le rôle de barrière hydraulique ou la mobilité de l'eau est bien plus faible. Ce concept a déjà été démontré et est comparable aux processus identifiés sur l'un des sites hétérogènes les plus connus : le site Columbus Air Force Base (USA, Mississippi), connue sous le nom de MADE site (Macrodispersion Experiment). Ce programme a été mis au point pour souligner les challenges liés à la modélisation du transport dans des systèmes hautement hétérogènes (Zheng *et al.*, 2011). L'équation classique d'advection-dispersion ne peut expliquer les phénomènes de transport observés à grande échelle sur le site d'étude (Feehley *et al.*, 2000; Harvey et Gorelick, 2000; Julian *et al.*, 2001). L'échec du modèle classique à reproduire le comportement du traceur observé a été attribué à l'existence de chemins d'écoulement préférentiels à petite échelle connectés entre eux. Harvey et Gorelick (2000) mettent en avant une approche *dual-domain mass transfer* combinant à la fois la présence de zones ou les fluides sont mobiles (essentiellement par advection) et une zone immobile où le transport se fait essentiellement par diffusion . Ainsi le transport est régi par des voies d'écoulement préférentielles à petite échelle et un échange avec des zones immobiles qui exercent un contrôle crucial sur le transport de solutés (Salamon *et al.*, 2007; Zheng et Gorelick, 2003). Cette configuration est semblable au fonctionnement identifié pour l'aquifère quaternaire. Cependant, dans notre cas l'échelle des hétérogénéités identifiées sur le terrain est plus grande et a donc été introduite directement dans le modèle en

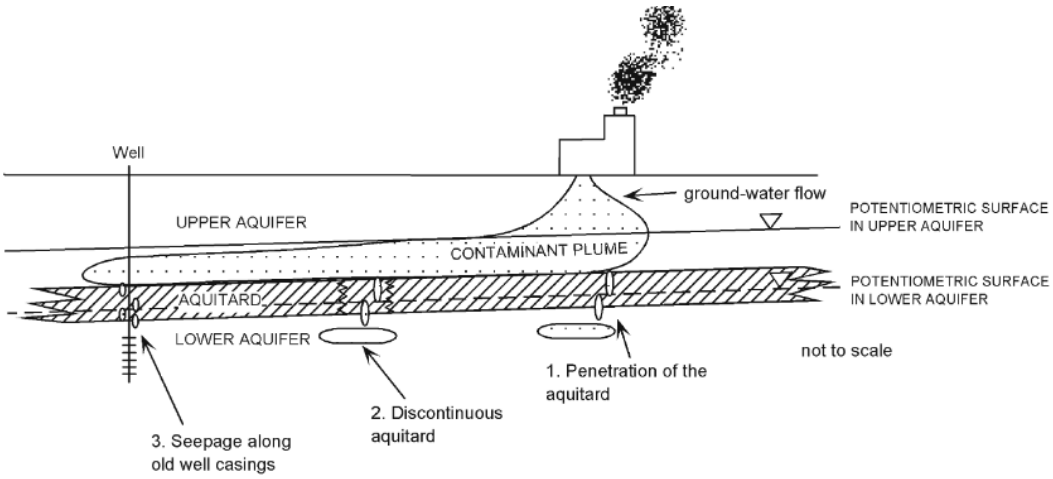

Figure 7.1 : Voies de contamination à travers un aquitard intermédiaire séparant deux aquifères d'après Santi *et al.* (2006). Dans ce cas, le gradient est descendant de la partie supérieure vers la partie inférieur

tant que zones d'écoulement rapides et lentes. D'une part, nous n'avons pas assez d'information permettant d'identifier un modèle de type *dual domain* et d'autre part, les variations de concentrations identifiées proche de la zone source indiquent que les chemins préférentiels sont certainement à l'échelle métrique. Par ailleurs, comme pour les travaux menés dans le cadre du site MADE, c'est bien le travail de modélisation qui a permis d'éclaircir le fonctionnement hydrogéologique.

L'une des clés du modèle numérique développé dans le cadre de cette thèse est la présence de zones d'infiltrations très localisées au sein de l'éponte. Si en premier lieu, une zone source était suspectée dans l'aquifère tertiaire, celle-ci ne correspondrait pas avec la distribution du TCE et des métabolites. Tout comme le modèle de Martin et Frind (1998), la sensibilité des zones d'infiltration est maximale et le placement de celles-ci est fortement contraint par la géologie. La différence de notre modèle par rapport à celui de Martin et Frind (1998), résident dans le fait que les preuves de discontinuité dans l'aquitard suggéraient certains chemins d'écoulements, et ont pu être confirmées par l'utilisation de données chimiques au contraire du modèle de Martin et Frind (1998). Santi *et al.* (2006) ont défini trois types d'infiltrations possibles sur un site multi-couches (figure 7.1). Dans le cas de notre site, le schéma d'infiltration correspond à l'hypothèse 2 avec des discontinuités en terme de lithologie de l'aquitard entrainant le transfert des SC vers des horizons profonds. Néanmoins, des défauts de construction de piézomètres pourraient aussi être à l'origine de l'alimentation de l'aquifère tertiaire, mais ne pourraient pas conduire à l'alimentation constatée aux alentours du piézomètre 40. De même, La pénétration de phase pure à travers l'aquitard au droit de la zone source (cas n°1 de Santi *et al.* (2006)) paraît peu probable en raison des concentrations des différentes espèces.

7.1.4 Limites

Les approches sélectionnées présentent certaines limites. Bien que basée sur les observations de terrain, la simplification de la spatialisation des propriétés hydrodynamiques par la zonation peut comporter certaines limites, et introduire notamment des erreurs structurelles (Anderson *et al.*, 2015). Des approches plus flexibles telles que la spatialisation des propriétés hydrodynamiques par l'approche des points pilotes (de Marsily *et al.*, 1984) pourraient être investiguées. Cette approche ne constitue pas une finalité, car la flexibilité est donnée par l'augmentation du nombre de paramètres créant potentiellement des corrélations et des insensibilités. Néanmoins, cette approche permettrait d'extraire de l'information des données d'observations pour mieux caractériser les incertitudes paramétriques (Doherty et Welter, 2010). Soulignons que malgré les moyens mis en œuvre le nombre de points de mesure reste toujours faible vis-à-vis de l'hétérogénéité du milieu et conduit de toutes façons à une incertitude forte sur la distribution spatiale de la conductivité hydraulique modélisée.

D'autres erreurs structurelles sont potentiellement présentes dans le modèle : comme l'absence de processus d'écoulement transitoire, et la sous-représentation de l'hétérogénéité à la fois temporelle et spatiale de la zone source.

7.1.5 Implication des résultats sur la gestion du site

La collecte de données et la mise en cohérence de celles-ci via la modélisation numérique ouvrent des perspectives pour la gestion du site.

L'un des points clés est la présence d'une seule source de pollution localisée dans l'aquifère quaternaire. Au premier abord, les fortes concentrations pouvaient laisser présager à la fois une source plus étendue dans l'aquifère quaternaire et d'une autre source présente dans l'aquifère tertiaire. Il s'agit là d'une information très importante pour la réhabilitation du site. L'accessibilité de la zone source est une donnée primordiale pour la remédiation et celle-ci diminue nettement lorsque la zone source est localisée en profondeur. Les coûts associés à la remédiation sont plus importants et les chances de réussite d'une technique sont plus faibles.

Dans ce contexte, le modèle suggère la présence d'une zone source de faible extension, et ce en accord avec les premières hypothèses quant aux regards des sondages de sols et analyses d'eau souterraines. Cette localisation précisée de la source grâce à la modélisation constitue donc un gain financier et environnemental important pour la gestion du site. La zone source semble localisée dans une zone ou le flux d'eau et donc de contaminants (dissous) est important. La connaissance de cette configuration doit permettre d'adapter la ou les stratégies de remédiation. En ce sens, l'injection de mousse prend tout son sens, et peut-être utilisée pour isoler la source du flux important d'eaux souterraines, et en augmentant l'accessibilité des polluants par les agents remédiant utilisés lors de la remédiation.

Bien que la vitesse de propagation du panache soit une donnée relativement incertaine, il semble que les deux panaches (quaternaire et tertiaire) transitent

au-delà des limites propriétés augmentant grandement le risque associé à cette pollution pour les populations voisines. Il apparaît nécessaire en premier lieu de résoudre l'extension longitudinale du panache afin de quantifier le risque, mais aussi de d'ores et déjà réfléchir à une stratégie de traitement du panache, afin de le contenir dans l'air de la propriété.

Si la compréhension de la pollution a été grandement améliorée au moins pour les entités quatenaire et tertiaire alpha, la suspicion de transfert des SC vers des horizons plus profonds (entité bêta et au-delà) est fortement probable. En effet, même si seuls deux piézomètres captent l'entité tertiaire bêta, des concentrations non négligeables ont été enregistrés dans ceux-ci (de 2,3 à 15 μM/L suivant les campagnes). Couplé à la connaissance géologique des terrains et les potentielles drainances verticales, il est fort probable qu'un transfert vers des horizons plus profonds s'opère au droit du site. Fort de ces connaissances, des travaux de caractérisation sur toute la profondeur du système multi-couches sont en cours pour estimer les risques potentiels associés au plongement d'un panache vers des couches plus profondes.

7.2 Développement de l'injection de mousse pour l'appliquer à un site réel

7.2.1 Méthodes

L'objectif principal de ce volet était de tester l'injection de mousse comme technique de confinement in situ. S'agissant d'une injection dans un cadre de remédiation environnementale, le mélange de tensioactifs doit être biodégradable. La démarche adoptée était la suivante :

- Afin de garantir la réussite de l'injection de mousse, nous avons voulu comprendre les mécanismes permettant de déterminer l'efficacité de la mousse en tant qu'"agent bloquant". Nous avons voulu aussi tester l'influence de paramètres gouvernant la génération de mousse afin de définir la formulation optimale à la fois pour le blocage mais aussi considérant la contrainte de la pression d'injection.

- La première inconnue concernant l'injection de mousse sur un site réel concerne la capacité de la mousse à se propager et à conserver ses propriétés bloquantes dans le milieu poreux. Pour définir ce comportement nous avons mené des expériences en colonne, développé un pilote 2D et réalisé des tests sur des forages en site réel.

- Comme l'objectif principal est de garantir le confinement pendant un temps significatif, nous avons aussi évalué la durée de stabilité de la mousse.

- Un système d'injection de mousse autonome a été développé et a permis l'injection de mousse en conditions réelles afin de confiner la zone source.

- Une combinaison de tests de terrain couplés à la modélisation numérique a permis de mesurer l'effet de confinement autour de la zone source.

7.2.2 Résultats

Des résultats majeurs ont été obtenus pour une optimisation de la génération de mousse en milieu poreux :

- La capacité de la mousse à réduire de façon drastique le k_{rw} pour toutes les échelles de mesures (1D, 2D, et 3D) et ceci indépendamment du RF. Ce résultat est primordial en vue de l'application sur le terrain ou une mousse moins forte (sous-entendu moins visqueuse) peut être injectée pour les objectifs de confinement en contexte environnemental, c'est-à-dire avec une contrainte forte au niveau de la pression d'injection
- Une stabilité de la mousse et un pouvoir bloquant sur plusieurs mois. En terme d'applicabilité cette donnée implique un nombre d'interventions relativement faible réduisant ainsi les coûts opérationnels
- Le confinement effectif avec une réduction du flux de polluant au sortir de la zone source d'un facteur proche de 5. L'injection offre ainsi la possibilité de contrôler et réduire le relargage de polluant dans les systèmes aquifères. Cependant, l'objectif majeur est d'utiliser cette configuration d'injection en soutien d'une technique de traitement afin de maximiser l'impact de celle-ci.

7.2.3 Synthèse des connaissances pour l'applicabilité sur site

D'après notre retour d'expérience, la figure 7.2 présente le degré d'importance de chacun des paramètres relatifs à une injection de mousse sur site. Le point central, différenciant les applications proposées pour l'injection de mousse, réside dans les propriétés des deux fluides : celui à déplacer et celui qui est initialement présent dans le milieu poreux. Ainsi, les NAPLs présentent des propriétés physico-chimiques moins favorables (viscosité et pression capillaire plus élevées) pour leur déplacement par la mousse que pour le cas de l'eau.

La première étape consiste en la sélection d'un ou plusieurs tensioactifs. Il s'agit d'une étape primordiale. Le but principal est de pouvoir générer de la *strong foam*, sous-entendu une mousse stable. La stabilité est donnée par la capacité de la mousse à :

- Se développer à des pressions capillaires limites P_c^* élevées
- Contrer les effets gravitaires

La maximisation des deux points précédents permet d'augmenter l'efficacité du balayage de l'aquifère par la mousse. Si le caractère *strong foam* semble indispensable pour la mobilisation des NAPLs, nous avons montré par nos expériences qu'une mousse présentant un RF de l'ordre de 20 était compatible avec

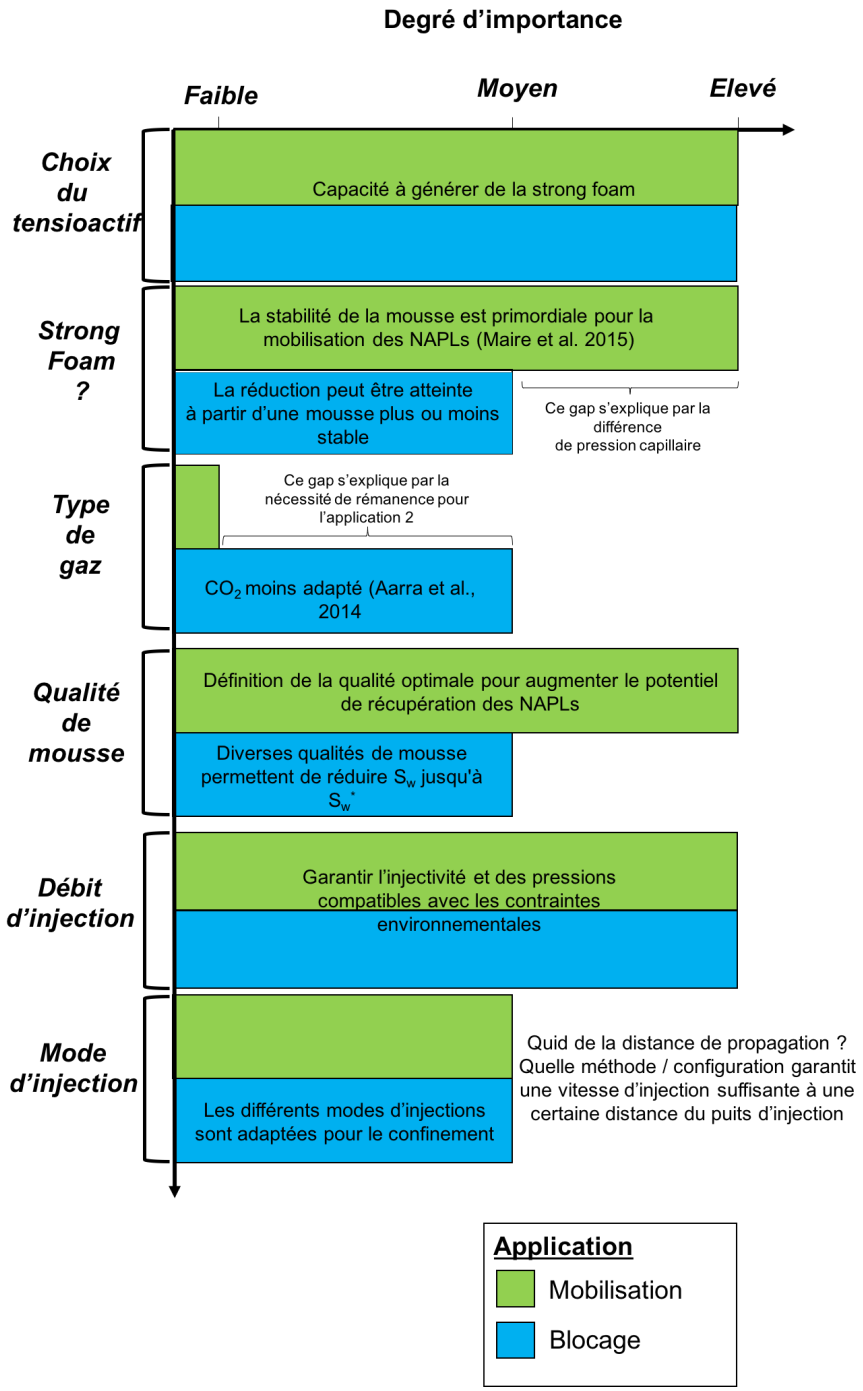

Figure 7.2 : Réflexion sur les points importants garantissant l'efficacité de l'injection de mousse

notre application de confinement. Cette donnée est importante car l'injection d'une mousse relativement moins stable permet de mieux gérer les contraintes de pression liées à une injection à faible profondeur.

Dans le cadre de la mobilisation, les fortes pressions d'injections sont souvent traitées par l'utilisation du CO_2, plus soluble que le N_2. La génération de mousse à partir de CO_2 semble moins adaptée pour le confinement in-situ car la stabilité de la mousse dans le temps semble plus faible.

La stabilité de la mousse peut aussi être maximisée par la définition d'une qualité de mousse adapté à l'application visée. Notre approche expérimentale sur la qualité de mousse (supérieure à 95 %) permet de définir une mousse présentant un RF (de l'ordre de 20) tout en conservant le régime *strong foam*. Pour la mobilisation des NAPLs, la définition de la qualité de mousse optimale est primordiale.

Pour le confinement in-situ, théoriquement, la réduction maximale de la saturation jusqu'à S_w^*, est obtenue lorsque la pression capillaire limite P_c^* est atteinte. La combinaison de nos expériences aux résultats de la littérature montre que la relation P_c^*-S_w^* est atteinte pour diverses conditions d'injections. Le RF associé à l'injection de mousse n'influe pas sur la réduction de la saturation en eau dans le régime *strong foam*.

Si le débit d'injection et le mode d'injection ont été volontairement séparés, pour mettre en avant le fait que chaque mode d'injection semble adapté pour les objectifs de confinement, ces deux paramètres semblent être intimement liés en conditions de terrain car le mode d'injection peut conditionner la vitesse de la mousse à une certaine distance du puits d'injection. Ce conditionnement s'applique de la même façon pour la mobilisation des NAPLs.

La comparaison des deux applications montre que la sélection des conditions d'injections semble plus contraignante pour la mobilisation que pour le blocage.

7.2.4 Limites

Il existe différentes limites associées à ce travail.

La caractérisation de la propagation de la mousse n'a pas été totalement élucidée. Les premières estimations réalisées à partir de la modélisation numérique doivent être considérées comme incertaines car il s'agit d'une méthode indirecte. En effet, la modélisation entraine la possibilité de plusieurs solutions tant sur la position et le rayon de la zone de mousse, et dans une moindre mesure la valeur de la réduction de la conductivité hydraulique (comme le montre l'analyse de sensibilité). De même, les zones de mousse considérées comme homogènes verticalement et horizontalement représentent une simplification de la réalité. Compte tenu des données acquises sur le terrain l'impact gravitaire sur la propagation de la mousse n'a pu être estimée et n'est pas pris en compte dans les modèles. Ces phénomènes peuvent avoir un impact majeur et entrainer un balayage partiel de l'aquifère entrainant un confinement moins important. Soulignons toutefois que le confinement global a été mesuré à l'aide des flux de polluants. Ainsi, afin de conserver le taux de confinement global, en présence d'un effet gravitaire, celui-ci

doit conduire à un confinement réel plus faible que celui simulé dans la partie basse de l'aquifère, mais plus élevé dans la partie haute.

Par ailleurs les expériences de laboratoire suggèrent que le pouvoir bloquant de la mousse augmente en fonction du nombre de volumes de pores injectés. Ceci conduit à la nécessité d'injecter des volumes de mousse importants.

Sur le terrain, le choix de la méthode d'injection peut constituer une limite à l'injectivité et donc à l'influence de la mousse à distance du puits d'injection. Il est reconnu que la pré génération implique des pressions d'injections plus élevées que la co-injection et le SAG. Ce faisant, la vitesse d'injection de mousse est réduite et la propagation de la mousse semble plus longue pour la pré génération de mousse (Rossen, 1996). Ainsi pour réduire les temps d'injections et augmenter les vitesses à distance du puits, un mode d'injection de type SAG devrait donner de meilleurs résultats

Enfin la caractérisation du confinement par mesure de flux n'a pas pu être répétée sur une ou plusieurs campagnes de mesures. La dynamique des flux suite au blocage n'a ainsi pas été établie.

7.3 Perspectives

De ce travail de thèse plusieurs perspectives peuvent être envisagées :

- Perspectives opérationnelles
- Perspectives de recherches

7.3.1 Perspectives opérationnelles

Les perspectives opérationnelles sont focalisées sur la gestion de la pollution :

- Définir une stratégie de remédiation de la zone source. Les données obtenues dans le contexte de cette thèse permettent d'identifier assez précisément la zone source. Cependant la méthode permettant le meilleur traitement est encore à définir. Des mesures hydrodynamiques autour de la zone source, couplé à une modélisation plus précise de cette zone devraient permettre une optimisation de la technique de remédiation. Parmi les techniques envisageables, l'ajout d'agents réducteurs (Fe(0)) ou oxydants ($KMnO_4$) pourrait permettre une élimination de la zone source. La présence de mousse de confinement présente un gros avantage car elle permettra de focaliser les réactifs sur les zones à traiter et de ne pas en perdre la majeure partie. Cependant ceci implique aussi un suivi plus précis sur l'ensemble de la zone, à la fois dans les parties avec et sans mousse.

- Investiguer l'aquifère tertiaire bêta pour définir les potentielles infiltrations de SC vers des niveaux inférieurs. La difficulté de ce travail réside dans l'importante extension du panache de SC dans le tertiaire alors que les zones

d'infiltrations sont a priori de petite taille. Ainsi la démarche doit être orientée vers les zones qui présentent le plus de risque. Dans ce contexte le modèle peut aussi aider à quantifier ces flux lorsque des données complémentaires auront été acquises.

7.3.2 Perspectives de recherches

Les perspectives recherches sont proposées au regard des limites mentionnées :

- Pour la modélisation hydrogéologique, il serait intéressant d'appliquer un algorithme d'estimations des paramètres (type Gaus Levenberg Marquadt implémenté dans la suite PEST) et une analyse d'incertitude. Cette étape peut permettre de consolider les premières hypothèses quant au fonctionnement hydrogéologique du système multi-couches.

- Travailler sur l'aspect transitoire de l'hydrodynamique. En effet, pour l'instant le modèle est permanent alors que les concentrations varient notablement dans le temps. Une approche transitoire pourrait ainsi permettre de bien mieux contraindre le modèle. Très peu de modèles de contamination ont été réalisés en transitoire, car la dynamique des concentrations est souvent très complexe et liée à des incertitudes de prélèvement et analytiques fortes.

- Définir l'impact par modélisation du confinement de la zone source combiné à une technique de remédiation (par exemple l'ISCO) sur le temps de traitement, la consommation de réactif et la réduction des couts de dépollution.

- Développer un mode d'injection permettant de maximiser la distance de propagation de la mousse dans l'aquifère. Malgré des tests concluant (Hirasaki *et al.*, 1997) l'injection de mousse a été peu utilisée dans le domaine des sols pollués. Il semble que la technique n'ait pas été reconduite car à l'époque les entreprises de dépollution devaient penser qu'il existait des techniques plus simples dans leur mise en place (période de développement de l'ISCO) et celle-ci a donc été temporairement abandonnée. Ce travail de thèse met en évidence la faisabilité et l'efficacité de cette méthode, mais met en lumière la complexité et l'instabilité de l'injection de mousse sur site réel. Il apparaît nécessaire de caractériser la propagation de la mousse, par exemple dans un pilote radial, afin de comprendre les mécanismes et les paramètres contrôlant l'avancée de la mousse dans le milieu poreux et permettant de la maximiser. Une phase de modélisation pourrait être réalisée en complément de ces travaux de laboratoire. La question sous-tendant ces travaux demeure dans le *monitoring* d'une injection de mousse. Hormis la mesure de pression, quelle mesure peut traduire l'avancée de la mousse ? Si en théorie la géophysique apparaît comme une méthode séduisante avec des possibilités diverses (propagation des ondes sismiques, acoustiques, et ou utilisation de la méthode de la résistivité électrique), elle semble difficilement applicable dans certains cas. Le bruit de fond, les interférences liées

l'activité, une couverture bétonnée au droit site et de nombreuses lignes électriques souterraines sont autant de frein à l'utilisation de la géophysique.

- Aussi pour promouvoir cette technique aux yeux des décideurs, il serait intéressant de réaliser des études bilans couts avantages de la technique et la comparer aux techniques classiques, lorsque plusieurs essais en conditions variées auront été réalisés.

Références

Aarra M. G., Skauge A., Solbakken J. et Ormehaug P. A. (2014) Properties of n 2-and co 2-foams as a function of pressure. *Journal of Petroleum Science and Engineering* **116**, 72–80.

Adamson A. (1982) *Physical Chemistry of Surfaces.* A Wiley-Interscience publication. J. Wiley.

Afsharpoor A. (2009) Mechanistic foam modeling and simulations : Gas injection during surfactant-alternating-gas processes using foam-catastrophe theory.

Afsharpoor A., Lee G. et Kam S. (2010) Mechanistic simulation of continuous gas injection period during surfactant-alternating-gas (sag) processes using foam catastrophe theory. *Chemical Engineering Science* **65**, 3615–3631.

Aggelopoulos C. et Tsakiroglou C. (2008) The effect of micro-heterogeneity and capillary number on capillary pressure and relative permeability curves of soils. *Geoderma* **148**, 25–34.

Alvarez J., Rivas H. et Rossen W. (2001). Unified model for steady-state foam behavior at high and low foam qualities. spej 6 (3) : 325–333. Technical report, SPE-74141-PA.

Anderson M. P. (1991) Comment on “universal scaling of hydraulic conductivities and dispersivities in geologic media” by sp neuman. *Water Resources Research* **27**, 1381–1382.

Anderson M. P., Woessner W. W. et Hunt R. J. (2015) *Applied groundwater modeling : simulation of flow and advective transport.* Academic press.

Andrianov A., Farajzadeh R., Nick M. M., Talanana M., Zitha P. L. *et al.* (2011). Immiscible foam for enhancing oil recovery : bulk and porous media experiments. In *SPE Enhanced Oil Recovery Conference.* Society of Petroleum Engineers.

Annable M. D., Hatfield K., Cho J., Klammler H., Parker B. L., Cherry J. A. et Rao P. S. C. (2005) Field-scale evaluation of the passive flux meter for simultaneous measurement of groundwater and contaminant fluxes. *Environmental Science & Technology* **39**, 7194–7201.

Apaydin O. G. et Kovscek A. R. (2001) Surfactant concentration and end effects on foam flow in porous media. *Transport in porous media* **43**, 511–536.

Atteia O. (2005) Chimie et pollutions des eaux souterraines.

Atteia O., Estrada E. D. C. et Bertin H. (2013) Soil flushing : a review of the origin of efficiency variability. *Reviews in Environmental Science and Bio/Technology* **12**, 379–389.

Atteia O., Franceschi M. et Dupuy A. (2008) Validation of reactive model assumptions with isotope data : Application to the dover case. *Environmental science & technology* **42**, 3289–3295.

Atteia O., Jousse F., Cohen G. et Höhener P. (2017) Comparison of residual napl source removal techniques in 3d metric scale experiments. *Journal of Contaminant Hydrology*.

Basu N. B., Rao P., Poyer I. C., Annable M. et Hatfield K. (2006) Flux-based assessment at a manufacturing site contaminated with trichloroethylene. *Journal of Contaminant Hydrology* **86**, 105–127.

Benner M., Stanford S., Lee L. et Mohtar R. (2000) Field and numerical analysis of in-situ air sparging : a case study. *Journal of hazardous materials* **72**, 217–236.

Bernard G. G., Jacobs W. *et al.* (1965) Effect of foam on trapped gas saturation and on permeability of porous media to water. *Society of Petroleum Engineers Journal* **5**, 295–300.

Bertin H., Apaydin O., Castanier L., Kovscek A. *et al.* (1999) Foam flow in heterogeneous porous media : Effect of cross flow. *SPE Journal* **4**, 75–82.

Bertin H., Estrada E. D. C. et Atteia O. (2017) Foam placement for soil remediation. *Environmental Chemistry*.

Bikerman J. J. (1973) *Foams* (1 ed.), Volume 10 of *Applied Physics and Engineering*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg.

Bodocsi A., Rumer R. et Ryan M. (1995) *Barrier containment technologies for environmental remediation applications*. Environmental Science and Technology. John Wiley.

Boeije C. (2016) Experimental and modelling studies of foam enhanced oil recovery.

Boeije C. S., Rossen W. *et al.* (2014) Gas-injection rate needed for sag foam processes to overcome gravity override. *SPE Journal* **20**, 49–59.

Böhlke J. et Denver J. (1995) Combined use of groundwater dating, chemical, and isotopic analyses to resolve the history and fate of nitrate contamination in two agricultural watersheds, atlantic coastal plain, maryland. *Water Resources Research* **31**, 2319–2339.

Bordenave A. (2015) *Traitement in situ des HAPs par co-injection air-vapeur : mécanismes physico-chimiques et optimisation énergétique.* Thèse de Doctorat, Bordeaux 3.

Bouwer H. (1989) The bouwer and rice slug test—an update. *Groundwater* **27**, 304–309.

Bouwer H. et Rice R. (1976) A slug test for determining hydraulic conductivity of unconfined aquifers with completely or partially penetrating wells. *Water resources research* **12**, 423–428.

Bower K. M., Gable C. W. et Zyvoloski G. A. (2005) Grid resolution study of ground water flow and transport. *Groundwater* **43**, 122–132.

Bredehoeft J. (2005) The conceptualization model problem—surprise. *Hydrogeology journal* **13**, 37–46.

Brewster M., Annan A., Greenhouse J., Kueper B., Olhoeft G., Redman J. et Sander K. (1995) Observed migration of a controlled dnapl release by geophysical methods. *Ground water* **33**, 977–987.

Brooks R. et Corey T. (1964) Hydraulic properties of porous media. *Hydrology Papers, Colorado State University.*

Brusseau M. L., Arnold R. G., Ela W. et Field J. (2001) Overview of innovative remediation approaches for chlorinated solvents. *Rapport technique, University of Arizona.*

Burdine N. *et al.* (1953) Relative permeability calculations from pore size distribution data. *Journal of Petroleum Technology* **5**, 71–78.

Carrera J., Alcolea A., Medina A., Hidalgo J. et Slooten L. J. (2005) Inverse problem in hydrogeology. *Hydrogeology journal* **13**, 206–222.

Casteel J., Djabbarah N. *et al.* (1988) Sweep improvement in co2 flooding by use of foaming agents. *SPE reservoir engineering* **3**, 1–186.

Chambers K. T. et Radke C. (1990) Capillary phenomena in foam flow through porous media. *Interfacial Phenomena in Oil Recovery.*

Chambon J. C., Broholm M. M., Binning P. J. et Bjerg P. L. (2010) Modeling multi-component transport and enhanced anaerobic dechlorination processes in a single fracture–clay matrix system. *Journal of Contaminant Hydrology* **112**, 77–90.

Cheng L., Reme A., Shan D., Coombe D., Rossen W. *et al.* (2000). Simulating foam processes at high and low foam qualities. In *SPE/DOE improved oil recovery symposium.* Society of Petroleum Engineers.

Chou S. *et al.* (1991). Conditions for generating foam in porous media. In *SPE Annual Technical Conference and Exhibition.* Society of Petroleum Engineers.

Chowdiah P., Misra B., II J. K., Srivastava V. et Hayes T. (1998) Foam propagation through soils for enhanced in-situ remediation. *Journal of Hazardous Materials* **62**, 265 – 280.

Cirpka O. A. et Attinger S. (2003) Effective dispersion in heterogeneous media under random transient flow conditions. *Water Resources Research* **39**.

Cirpka O. A. et Kitanidis P. K. (2000) Characterization of mixing and dilution in heterogeneous aquifers by means of local temporal moments. *Water Resources Research* **36**, 1221–1236.

Clunie J., Goodman J., Ingram B. et Matijevic E. (1971) Surface and colloid science. *Wiley, Eaglewood Cliffs, NJ.*

Cohen G. (2013) *Caractérisation, quantification et modélisation du transport et des interactions du CO2 dans une zone vadose carbonatée : application à une fuite diffuse de CO2 en contexte de séquestration géologique.* Thèse de Doctorat, Bordeaux 3.

Côme J., Ropars M., Kaskassian S., Quintard M., Vogel T., Razakarisoa O., Nex F., Schäfer G. et Haeseler F. (2006) Programme r&d macaoh (2001–2006). *Caractérisation dans les aquifères d'une zone source constituée d'organo-chlorés aliphatiques–guide méthodologique. France : l'Agence de l'environnement et de la maîtrise de l'énergie (ADEME).*

Cooper H. H. et Jacob C. E. (1946) A generalized graphical method for evaluating formation constants and summarizing well-field history. *Eos, Transactions American Geophysical Union* **27**, 526–534.

Dagan G. (1982) Stochastic modeling of groundwater flow by unconditional and conditional probabilities : 1. conditional simulation and the direct problem. *Water Resources Research* **18**, 813–833.

Dagan G. (1984) Solute transport in heterogeneous porous formations. *Journal of fluid mechanics* **145**, 151–177.

Dagan G. (2012) *Flow and transport in porous formations.* Springer Science & Business Media.

Das D., Hassanizadeh S., Rotter B. et Ataie-Ashtiani B. (2004) A numerical study of micro-heterogeneity effects on upscaled properties of two-phase flow in porous media. *Transport in Porous Media* **56**, 329–350.

Das D. B., Mirzaei M. et Widdows N. (2006) Non-uniqueness in capillary pressure–saturation–relative permeability relationships for two-phase flow in porous media : interplay between intensity and distribution of random micro-heterogeneities. *Chemical Engineering Science* **61**, 6786–6803.

Dauvergne J. (2010) *Synthèse et étude physico-chimique de nouveaux tensioactifs utilisables pour la cristallisation 2D sur film lipidique et l'étude des protéines membranaires.* Thèse de Doctorat, Université d'Avignon.

De Marsily G. (1986). Quantitative hydrogeology. Technical report, Paris School of Mines, Fontainebleau.

De Marsily G., Delay F., Goncalves J., Renard P., Teles V. et Violette S. (2005) Dealing with spatial heterogeneity. *Hydrogeology Journal* **13**, 161–183.

de Marsily G., Lavedan G., Boucher M. et Fasanino G. (1984) Interpretation of interference tests in a well field using geostatistical techniques to fit the permeability distribution in a reservoir model. *Geostatistics for natural resources characterization, Part* **2**, 831–849.

de Vries A. S., Wit K. *et al.* (1990) Rheology of gas/water foam in the quality range relevant to steam foam. *SPE Reservoir Engineering* **5**, 185–192.

Dearden R., Noy D., Lelliott M., Wilson R. et Wealthall G. (2013) Release of contaminants from a heterogeneously fractured low permeability unit underlying a dnapl source zone. *Journal of contaminant hydrology* **153**, 141–155.

Dekker T. J. et Abriola L. M. (2000) The influence of field-scale heterogeneity on the surfactant-enhanced remediation of entrapped nonaqueous phase liquids. *Journal of contaminant hydrology* **42**, 219–251.

Del Campo Estrada E., Bertin H. et Atteia O. (2015) Experimental Study of Foam Flow in Sand Columns : Surfactant Choice and Resistance Factor Measurement. *Transport in Porous Media* **108**, 335–354.

Dentz M. et Carrera J. (2005) Effective solute transport in temporally fluctuating flow through heterogeneous media. *Water resources research* **41**.

Devlin J. et Parker B. (1996) Optimum hydraulic conductivity to limit contaminant flux through cutoff walls. *Groundwater* **34**, 719–726.

Doherty J. (2003) Ground water model calibration using pilot points and regularization. *Ground water* **41**, 170–177.

Doherty J. *et al.* (1994) Pest : a unique computer program for model-independent parameter optimisation. *Water Down Under 94 : Groundwater/Surface Hydrology Common Interest Papers ; Preprints of Papers*, 551.

Doherty J. et Christensen S. (2011) Use of paired simple and complex models to reduce predictive bias and quantify uncertainty. *Water Resources Research* **47**.

Doherty J. et Welter D. (2010) A short exploration of structural noise. *Water Resources Research* **46**.

Domenico P. (1987) An analytical model for multidimensional transport of a decaying contaminant species. *Journal of Hydrology* **91**, 49–58.

Eaton T. T. (2006) On the importance of geological heterogeneity for flow simulation. *Sedimentary Geology* **184**, 187 – 201.

Eftekhari A. A. et Farajzadeh R. (2017) Effect of foam on liquid phase mobility in porous media. *Scientific Reports* **7**.

EPA U. (1986). Background document for the ground-water screening procedure to support 40 cfr part 269 : Land disposal. Technical report, U.S. EPA.

Estrada E. D. C. (2014) *Ecoulements de mousse pour la dépollution d'aquifères.* Thèse de Doctorat, Université de Bordeaux.

Falls A., Hirasaki G., Patzek T. e. a., Gauglitz D., Miller D., Ratulowski T. *et al.* (1988) Development of a mechanistic foam simulator : the population balance and generation by snap-off. *SPE reservoir engineering* **3**, 884–892.

Falta R. W. (2005) Dissolved chemical discharge from fractured clay aquitards contaminated by dnapls. *Dynamics of Fluids and Transport in Fractured Rock*, 165–174.

Farajzadeh R., Andrianov A., Bruining H. et Zitha P. L. (2009) Comparative study of co2 and n2 foams in porous media at low and high pressure- temperatures. *Industrial & Engineering Chemistry Research* **48**, 4542–4552.

Farajzadeh R., Lotfollahi M., Eftekhari A., Rossen W. et Hirasaki G. (2015) Effect of permeability on implicit-texture foam model parameters and the limiting capillary pressure. *Energy & fuels* **29**, 3011–3018.

Farajzadeh R., Muruganathan R., Rossen W. et Krastev R. (2011) Effect of gas type on foam film permeability and its implications for foam flow in porous media. *Advances in Colloid and Interface Science* **168**, 71 – 78.

Farzaneh S. A., Sohrabi M. *et al.* (2013). A review of the status of foam application in enhanced oil recovery. In *EAGE Annual Conference & Exhibition incorporating SPE Europec*. Society of Petroleum Engineers.

Feehley C. E., Zheng C. et Molz F. J. (2000) A dual-domain mass transfer approach for modeling solute transport in heterogeneous aquifers : Application to the macrodispersion experiment (made) site. *Water Resources Research* **36**, 2501–2515.

Fetter C. W. (2000) *Applied hydrogeology.* Prentice hall.

Fiedler L. (2000). Engineered approaches to in situ bioremediation of chlorinated solvents : Fundamentals and field applications. Technical report, DTIC Document.

Fogg G. E. (1986) Groundwater flow and sand body interconnectedness in a thick, multiple-aquifer system. *Water Resources Research* **22**, 679–694.

Fogg G. E., Noyes C. D. et Carle S. F. (1998) Geologically based model of heterogeneous hydraulic conductivity in an alluvial setting. *Hydrogeology Journal* **6**, 131–143.

Fountain J. C., Starr R. C., Middleton T., Beikirch M., Taylor C. et Hodge D. (1996) A controlled field test of surfactant-enhanced aquifer remediation. *Groundwater* **34**, 910–916.

Freeze R. A. (1975) A stochastic-conceptual analysis of one-dimensional groundwater flow in nonuniform homogeneous media. *Water Resources Research* **11**, 725–741.

Friedmann F., Jensen J. *et al.* (1986). Some parameters influencing the formation and propagation of foams in porous media. In *SPE California Regional Meeting*. Society of Petroleum Engineers.

Gauglitz P. A., Friedmann F., Kam S. I. et Rossen W. R. (2002) Foam generation in homogeneous porous media. *Chemical Engineering Science* **57**, 4037–4052.

Gelhar L. W., Welty C. et Rehfeldt K. R. (1992) A critical review of data on field-scale dispersion in aquifers. *Water resources research* **28**, 1955–1974.

Giese S. W. et Powers S. E. (2002) Using polymer solutions to enhance recovery of mobile coal tar and creosote dnapls. *Journal of contaminant hydrology* **58**, 147–167.

Goode D. J. et Konikow L. F. (1990) Apparent dispersion in transient groundwater flow. *Water Resources Research* **26**, 2339–2351.

Graber E., Laor Y. et Ronen D. (2008) Aquifer contamination by chlorinated-vocs : the case of an urban metropolis megasite overlying the coastal plain aquifer in israel. *Hydrogeology journal* **16**, 1615–1623.

Gran G. (1952) Determination of the equivalence point in potentiometric titrations. part ii. *Analyst* **77**, 661–671.

Guyonnet D., Mishra S. et McCord J. (1993) Evaluating the volume of porous medium investigated during slug tests. *Groundwater* **31**, 627–633.

Haitjema H. (2006) The role of hand calculations in ground water flow modeling. *Groundwater* **44**, 786–791.

Harbaugh A. W., Banta E. R., Hill M. C. et McDonald M. G. (2000) Modflow-2000, the u. s. geological survey modular ground-water model-user guide to modularization concepts and the ground-water flow process. *Open-file Report. U. S. Geological Survey* (92), 134.

Harvey C. et Gorelick S. M. (2000) Rate-limited mass transfer or macrodispersion : Which dominates plume evolution at the macrodispersion experiment (made) site ? *Water Resources Research* **36**, 637–650.

Hatfield K., Annable M., Cho J., Rao P. et Klammler H. (2004) A direct passive method for measuring water and contaminant fluxes in porous media. *Journal of Contaminant Hydrology* **75**, 155 – 181.

Hill M., Kavetski D., Clark M., Ye M., Arabi M., Lu D., Foglia L. et Mehl S. (2016) Practical use of computationally frugal model analysis methods. *Ground water* **54**, 159.

Hill M. C. (2006) The practical use of simplicity in developing ground water models. *Groundwater* **44**, 775–781.

Hill M. C., Cooley R. L. et Pollock D. W. (1998) A controlled experiment in ground water flow model calibration. *Groundwater* **36**, 520–535.

Hirasaki G. J., Miller C. A., Szafranski R., Lawson J. B., Meinardus M. J., Londergan J. T., Jackson R. E., Pope G. A. et Wade W. H. (1997) Field Demonstration of the Surfactant/Foam Process for Aquifer Remediation. *SPE Annual Technical Conference and Exhibition* (SPE 39292).

Holt T. et Vassenden T. (1997). Reduced gas-water segregation by use of foam. In *IOR 1997-9th European Symposium on Improved Oil Recovery*.

Huh D., Handy L. *et al.* (1989) Comparison of steady and unsteady-state flow of gas and foaming solution in porous media. *SPE reservoir engineering* **4**, 77–84.

Hvorslev M. J. (1951) Time lag and soil permeability in ground-water observations.

Illangasekare T. H., Ramsey J. L., Jensen K. H. et Butts M. B. (1995) Experimental study of movement and distribution of dense organic contaminants in heterogeneous aquifers. *Journal of Contaminant Hydrology* **20**, 1–25.

Jenkins M. *et al.* (1984). An analytical model for water/gas miscible displacements. In *SPE enhanced oil recovery symposium*. Society of Petroleum Engineers.

Jeong S.-W. et Corapcioglu M. Y. (2003) A micromodel analysis of factors influencing napl removal by surfactant foam flooding. *Journal of contaminant hydrology* **60**, 77–96.

Jiménez A. et Radke C. Dynamic stability of foam lamellae flowing through a periodically constricted pore. ACS Publications.

Julian H. E., Boggs J. M., Zheng C. et Feehley C. E. (2001) Numerical simulation of a natural gradient tracer experiment for the natural attenuation study : Flow and physical transport. *Groundwater* **39**, 534–545.

Kam S. I., Nguyen Q. P., Li Q., Rossen W. R. *et al.* (2007) Dynamic simulations with an improved model for foam generation. *SPE Journal* **12**, 35–48.

Khatib Z. I., Hirasaki G. J. et Falls A. H. (1988) Effects of Capillary Pressure on Coalescence and Phase Mobilities in Foams Flowing through Porous Media. *SPE Reservoir Engineering* **3**, 919–926.

Koltermann C. E. et Gorelick S. M. (1996) Heterogeneity in sedimentary deposits : A review of structure-imitating, process-imitating, and descriptive approaches. *Water Resources Research* **32**, 2617–2658.

Kovscek A. et Bertin H. (2003) Foam mobility in heterogeneous porous media. *Transport in Porous Media* **52**, 17–35.

Kovscek A. et Radke C. (1994). Fundamentals of foam transport in porous media. ACS Publications.

Kovscek A. R., Tadeusz W. P., Radke C. J. *et al.* (1997) Mechanistic foam flow simulation in heterogeneous and multidimensional porous media. *SPE Journal* **2**, 511–526.

Krembs F. J., Siegrist R. L., Crimi M. L., Furrer R. F. et Petri B. G. (2010) Isco for groundwater remediation : analysis of field applications and performance. *Groundwater Monitoring & Remediation* **30**, 42–53.

Kueper B. H., Redman D., Starr R. C., Reitsma S. et Mah M. (1993) A field experiment to study the behavior of tetrachloroethylene below the water table : Spatial distribution of residual and pooled dnapl. *Ground Water* **31**, 756–766.

Kular G., Lowe K., Coombe D. *et al.* (1989). Foam application in an oil sands steamflood process. In *SPE Annual Technical Conference and Exhibition*. Society of Petroleum Engineers.

Lake L. W. (1989) Enhanced oil recovery.

Lee H., Heller J., Hoefer A. *et al.* (1991) Change in apparent viscosity of co2 foam with rock permeability. *SPE reservoir engineering* **6**, 421–428.

Lee H. O., Heller J. P. *et al.* (1990) Laboratory measurements of co2-foam mobility. *SPE Reservoir Engineering* **5**, 193–197.

Liu Y., Grigg R. B., Svec R. K. *et al.* (2005). Co2 foam behavior : influence of temperature, pressure, and concentration of surfactant. In *SPE Production Operations Symposium*. Society of Petroleum Engineers.

Longpré-Girard M., Martel R., Robert T., Lefebvre R. et Lauzon J.-M. (2016) 2d sandbox experiments of surfactant foams for mobility control and enhanced lnapl recovery in layered soils. *Journal of contaminant hydrology* **193**, 63–73.

Ma K., Liontas R., Conn C. A., Hirasaki G. J. et Biswal S. L. (2012) Visualization of improved sweep with foam in heterogeneous porous media using microfluidics. *Soft Matter* **8**, 10669–10675.

Ma K., Lopez-Salinas J. L., Puerto M. C., Miller C. A., Biswal S. L. et Hirasaki G. J. (2013) Estimation of parameters for the simulation of foam flow through porous media. part 1 : the dry-out effect. *Energy & fuels* **27**, 2363–2375.

Maini B., Ma V. *et al.* (1984). Relationship between foam stability measured in static tests and flow behavior of foams in porous media. In *SPE Annual Technical Conference and Exhibition*. Society of Petroleum Engineers.

Maire J., Coyer A. et Fatin-Rouge N. (2015) Surfactant foam technology for in situ removal of heavy chlorinated compounds-DNAPLs. *Journal of Hazardous Materials* **299**, 630 – 638.

Maire J. et Fatin-Rouge N. (2017) Surfactant foam flushing for in situ removal of dnapls in shallow soils. *Journal of hazardous materials* **321**, 247–255.

Maire J., Joubert A., Kaifas D., Invernizzi T., Marduel J., Colombano S., Cazaux D., Marion C., Klein P.-Y., Dumestre A. et Fatin-Rouge N. (2018) Assessment of flushing methods for the removal of heavy chlorinated compounds {DNAPL} in an alluvial aquifer. *Science of The Total Environment* **612**, 1149 – 1158.

Mannhardt K., Novosad J., Schramm L. *et al.* (2000) Comparative evaluation of foam stability to oil. *SPE Reservoir Evaluation & Engineering* **3**, 23–34.

Martel R., Gélinas P. J. et Saumure L. (1998) Aquifer washing by micellar solutions : 3 field test at the thouin sand pit (l'assomption, québec, canada). *Journal of Contaminant Hydrology* **30**, 33–48.

Martel R., Hébert A., Lefebvre R., Gélinas P. et Gabriel U. (2004) Displacement and sweep efficiencies in a dnapl recovery test using micellar and polymer solutions injected in a five-spot pattern. *Journal of contaminant hydrology* **75**, 1–29.

Martin P. et Frind E. (1998) Modeling a complex multi-aquifer system : The waterloo moraine. *Ground Water* **36**, 679–690.

McGuire T. M., McDade J. M. et Newell C. J. (2006) Performance of dnapl source depletion technologies at 59 chlorinated solvent-impacted sites. *Groundwater Monitoring & Remediation* **26**, 73–84.

Mercer J. W. et Cohen R. M. (1990) A review of immiscible fluids in the subsurface : Properties, models, characterization and remediation. *Journal of Contaminant Hydrology* **6**, 107 – 163.

Montzka C., Moradkhani H., Weihermüller L., Franssen H.-J. H., Canty M. et Vereecken H. (2011) Hydraulic parameter estimation by remotely-sensed top soil moisture observations with the particle filter. *Journal of Hydrology* **399**, 410–421.

Mualem Y. (1976) A new model for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated porous media. *Water resources research* **12**, 513–522.

Mulligan C. N. et Eftekhari F. (2003) Remediation with surfactant foam of pcp-contaminated soil. *Engineering Geology* **70**, 269–279.

Mulligan C. N. et Wang S. (2006) Remediation of a heavy metal-contaminated soil by a rhamnolipid foam. *Engineering Geology* **85**, 75–81.

Myers D. (2005) *Surfactant science and technology.* John Wiley & Sons.

Neumann S. (1990) Universal scaling of hydraulic conductivities and dispersivities in geologic media. *Water Resources Res* **26**, 1749–1758.

Oostrom M., Hofstee C., Walker R. et Dane J. (1999) Movement and remediation of trichloroethylene in a saturated heterogeneous porous medium : 1. spill behavior and initial dissolution. *Journal of Contaminant Hydrology* **37**, 159–178.

Osterloh W., Jante Jr M. *et al.* (1992). Effects of gas and liquid velocity on steady-state foam flow at high temperature. In *SPE/DOE Enhanced Oil Recovery Symposium.* Society of Petroleum Engineers.

Pang Z.-X. (2010) The blocking ability and flowing characteristics of steady foams in porous media. *Transport in porous media* **85**, 299–316.

Pankow J. F. et Cherry J. A. (1996) Dense chlorinated solvents and other dnapls in groundwater : History, behavior, and remediation.

Papadopulos S. S., Bredehoeft J. D. et Cooper H. H. (1973) On the analysis of 'slug test' data. *Water Resources Research* **9**, 1087–1089.

Patzek T., Koinis M. *et al.* (1990) Kern river steam-foam pilots. *Journal of Petroleum Technology* **42**, 496–503.

Persoff P., Radke C., Pruess K., Benson S., Witherspoon P. *et al.* (1991) A laboratory investigation of foam flow in sandstone at elevated pressure. *SPE reservoir engineering* **6**, 365–372.

Poulsen M. M. et Kueper B. H. (1992) A field experiment to study the behavior of tetrachloroethylene in unsaturated porous media. *Environmental science & technology* **26**, 889–895.

Preston W. C. (1948) Some correlating principles of detergent action. *Journal of Physical & Colloid Chemistry* **52**, 84–97.

Prommer H., Barry D. et Davis G. (2002) Modelling of physical and reactive processes during biodegradation of a hydrocarbon plume under transient groundwater flow conditions. *Journal of Contaminant Hydrology* **59**, 113–131.

Pugh R. (1996) Foaming, foam films, antifoaming and defoaming. *Advances in Colloid and Interface Science* **64**, 67 – 142.

Ramsburg C. A., Pennell K. D., Abriola L. M., Daniels G., Drummond C. D., Gamache M., Hsu H.-l., Petrovskis E. A., Rathfelder K. M., Ryder J. L. *et al.* (2005) Pilot-scale demonstration of surfactant-enhanced pce solubilization at the bachman road site. 2. system operation and evaluation. *Environmental science & technology* **39**, 1791–1801.

Ransohoff T., Radke C. *et al.* (1988) Mechanisms of foam generation in glass-bead packs. *SPE reservoir engineering* **3**, 573–585.

Refsgaard J. C., Christensen S., Sonnenborg T. O., Seifert D., Højberg A. L. et Troldborg L. (2012) Review of strategies for handling geological uncertainty in groundwater flow and transport modeling. *Advances in Water Resources* **36**, 36–50.

Reilly T. E., Plummer L. N., Phillips P. J. et Busenberg E. (1994) The use of simulation and multiple environmental tracers to quantify groundwater flow in a shallow aquifer. *Water Resources Research* **30**, 421–433.

Renard P., Alcolea A. et Ginsbourger D. (2009) Stochastic versus deterministic approaches. *Environmental Modelling : Finding Simplicity in Complexity, Second Edition*, 133–149.

Renkema W. et Rossen W. (2007). Success of sag foam processes in heterogeneous reservoirs. In *IPTC 2007 : International Petroleum Technology Conference.*

Reynolds C. et Krevor S. (2015) Characterizing flow behavior for gas injection : Relative permeability of co2-brine and n2-water in heterogeneous rocks. *Water Resources Research* **51**, 9464–9489.

Reynolds D. et Kueper B. (2002) Numerical examination of the factors controlling dnapl migration through a single fracture. *Ground Water* **40**, 368–377.

Rivett M. O. et Allen-King R. M. (2003) A controlled field experiment on groundwater contamination by a multicomponent dnapl : dissolved-plume retardation. *Journal of contaminant hydrology* **66**, 117–146.

Rivett M. O., Lerner D. N. et Lloyd J. W. (1990) Temporal variations of chlorinated solvents in abstraction wells. *Groundwater Monitoring & Remediation* **10**, 127–133.

Robert T., Martel R., Conrad S. H., Lefebvre R. et Gabriel U. (2006) Visualization of tce recovery mechanisms using surfactant–polymer solutions in a two-dimensional heterogeneous sand model. *Journal of contaminant hydrology* **86**, 3–31.

Rodriguez-Cruz M., Sanchez-Martin M. et Sanchez-Camazano M. (2005) A comparative study of adsorption of an anionic and a non-ionic surfactant by soils based on physicochemical and mineralogical properties of soils. *Chemosphere* **61**, 56–64.

Rogers S. W. et Ong S. K. (2000) Influence of porous media, airflow rate, and air channel spacing on benzene napl removal during air sparging. *Environmental science & technology* **34**, 764–770.

Rosen M. J. (2012) *Surfactants and Interfacial Phenomena* (4th ed.). Wiley-Interscience.

Ross S. et Morrison E. (1988) Colloidal systems and interfaces.

Rossen W., Boeije C. S. *et al.* (2015) Fitting foam-simulation-model parameters to data : Ii. surfactant-alternating-gas foam applications. *SPE Reservoir Evaluation & Engineering* **18**, 273–283.

Rossen W. et Gauglitz P. (1990) Percolation theory of creation and mobilization of foams in porous media. *AIChE Journal* **36**, 1176–1188.

Rossen W., Wang M.-W. *et al.* (1997). Modeling foams for acid diversion. In *SPE European Formation Damage Conference*. Society of Petroleum Engineers.

Rossen W., Zeilinger S., Shi J., Lim M. *et al.* (1999) Simplified mechanistic simulation of foam processes in porous media. *SPE Journal* **4**, 279–287.

Rossen W. R. (1996) Foams in enhanced oil recovery. *Surfactant Science Series*, 413–464.

Rossen W. R., Van Duijn C., Nguyen Q. P., Shen C., Vikingstad A. K. *et al.* (2010) Injection strategies to overcome gravity segregation in simultaneous gas and water injection into homogeneous reservoirs. *SPE Journal* **15**, 76–90.

Rothmel R. K., Peters R. W., St. Martin E. et DeFlaun M. F. (1998) Surfactant foam/bioaugmentation technology for in situ treatment of tce-dnapls. *Environmental science & technology* **32**, 1667–1675.

Rovey C. W. et Cherkauer D. S. (1995) Scale dependency of hydraulic conductivity measurements. *Groundwater* **33**, 769–780.

Saenton S., Illangasekare T., Soga K. et Saba T. (2002) Effects of source zone heterogeneity on surfactant-enhanced napl dissolution and resulting remediation end-points. *Journal of Contaminant Hydrology* **59**, 27–44.

Salamon P., Fernandez-Garcia D. et Gómez-Hernández J. (2007) Modeling tracer transport at the made site : the importance of heterogeneity. *Water Resources Research* **43**.

Sale T., Piontek K. et Pitts M. (1989). Chemically enhanced in situ soil washing. In *Proceedings of the Conference on Petroleum Hydrocarbons and Organic Chemicals in Ground Water : Prevention, Detection, and Restoration, Houston, TX*.

Sanchez J., Schechter R., Monsalve A. *et al.* (1986). The effect of trace quantities of surfactant on nitrogen/water relative permeabilities. In *SPE Annual Technical Conference and Exhibition*. Society of Petroleum Engineers.

Sánchez-Martín M., Dorado M., Del Hoyo C. et Rodríguez-Cruz M. (2008) Influence of clay mineral structure and surfactant nature on the adsorption capacity of surfactants by clays. *Journal of Hazardous Materials* **150**, 115–123.

Sanchez-Vila X., Guadagnini A. et Carrera J. (2006) Representative hydraulic conductivities in saturated groundwater flow. *Reviews of Geophysics* **44**.

Santi P. M., McCray J. E. et Martens J. L. (2006) Investigating cross-contamination of aquifers. *Hydrogeology Journal* **14**, 51–68.

Schnarr M., Truax C., Farquhar G., Hood E., Gonullu T. et Stickney B. (1998) Laboratory and controlled field experiments using potassium permanganate to remediate trichloroethylene and perchloroethylene dnapls in porous media. *Journal of contaminant hydrology* **29**, 205–224.

Schramm L. L. (1994) *Foams : Fundamentals and Applications in the Petroleum Industry*. Number 242 in Advances in Chemistry Series. Washington, DC, USA : American Chemical Society.

Schramm L. L. (2000) *Surfactants : fundamentals and applications in the petroleum industry*. Cambridge University Press.

Shan D., Rossen W. *et al.* (2002). Optimal injection strategies for foam ior. In *SPE/DOE Improved Oil Recovery Symposium*. Society of Petroleum Engineers.

Shi J. et Rossen W. (1998) Simulation of gravity override in foam processes in porous media. *SPE Reservoir Evaluation & Engineering* **1**, 148–154.

Soga K., Page J. et Illangasekare T. (2004) A review of napl source zone remediation efficiency and the mass flux approach. *Journal of Hazardous Materials* **110**, 13–27.

Stone H. L. *et al.* (1982). Vertical, conformance in an alternating water-miscible gas flood. In *SPE annual technical conference and exhibition*. Society of Petroleum Engineers.

Strack O. D. et Haitjema H. M. (1981) Modeling double aquifer flow using a comprehensive potential and distributed singularities : 1. solution for homogeneous permeability. *Water Resources Research* **17**, 1535–1549.

Stroo H. F., Leeson A., Marqusee J. A., Johnson P. C., Ward C. H., Kavanaugh M. C., Sale T. C., Newell C. J., Pennell K. D., Lebrón C. A. *et al.* (2012). Chlorinated ethene source remediation : Lessons learned.

Sudicky E. et Huyakorn P. (1991) Contaminant migration in imperfectly known heterogeneous groundwater systems. *Reviews of Geophysics* **29**, 240–253.

Sudicky E. A. (1986) A natural gradient experiment on solute transport in a sand aquifer : Spatial variability of hydraulic conductivity and its role in the dispersion process. *Water Resources Research* **22**, 2069–2082.

Tang G.-Q. et Kovscek A. (2006) Trapped gas fraction during steady-state foam flow. *Transport in porous media* **65**, 287–307.

Theis C. V. (1935) The relation between the lowering of the piezometric surface and the rate and duration of discharge of a well using ground-water storage. *Eos, Transactions American Geophysical Union* **16**, 519–524.

Troldborg L., Refsgaard J. C., Jensen K. H. et Engesgaard P. (2007) The importance of alternative conceptual models for simulation of concentrations in a multi-aquifer system. *Hydrogeology Journal* **15**, 843–860.

Turta A. T., Singhal A. K. *et al.* (2002) Field foam applications in enhanced oil recovery projects : screening and design aspects. *Journal of Canadian Petroleum Technology* **41**.

Van Dam J., Stricker J. et Droogers P. (1990). From one-step to multi-step. determination of soil hydraulic functions by outflow experiments. Technical report, Landbouwuniversiteit Wageningen.

Van Genuchten M. T. (1980) A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils. *Soil science society of America journal* **44**, 892–898.

Verardo E., Atteia O. et Prommer H. (2017) Elucidating the fate of a mixed toluene, dhm, methanol, and i-propanol plume during in situ bioremediation. *Journal of Contaminant Hydrology* **201**, 6–18.

Voss C. I. (2011) Editor's message : Groundwater modeling fantasies—part 1, adrift in the details. *Hydrogeology Journal* **19**, 1281–1284.

Wang H. et Chen J. (2014) Experimental investigation on influence of foam mobility on polychlorinated biphenyl removal in foam flushing. *Environmental technology* **35**, 993–1002.

Wang S. et Mulligan C. N. (2004) An evaluation of surfactant foam technology in remediation of contaminated soil. *Chemosphere* **57**, 1079 – 1089.

Webb E. K. et Anderson M. P. (1996) Simulation of preferential flow in three-dimensional, heterogeneous conductivity fields with realistic internal architecture. *Water Resources Research* **32**, 533–545.

Wiedemeier T. H. (1999) *Natural attenuation of fuels and chlorinated solvents in the subsurface*. John Wiley & Sons.

Xu M. et Eckstein Y. (1995) Use of weighted least-squares method in evaluation of the relationship between dispersivity and field scale. *Groundwater* **33**, 905–908.

Zheng C., Bianchi M. et Gorelick S. M. (2011) Lessons learned from 25 years of research at the made site. *Groundwater* **49**, 649–662.

Zheng C. et Gorelick S. M. (2003) Analysis of solute transport in flow fields influenced by preferential flowpaths at the decimeter scale. *Groundwater* **41**, 142–155.

Zheng C. et Wang P. P. (1999). Mt3dms : a modular three-dimensional multispecies transport model for simulation of advection, dispersion, and chemical reactions of contaminants in groundwater systems ; documentation and user's guide. Technical report, Alabama Univ University.

Annexes

Annexe 1 : Analyses des échantillons

Toutes les analyses d'eau ont été réalisées à partir d'un GC-FID de type Varian CP3800. La colonne permettant la séparation des composés est une 624-SIL-MS (Restek, France). Les valeurs des paramètres analytiques importants sont présentées dans les tableaux 1 et 2.

Tableau 1 : Paramètres analytique du GC-FID

Paramètres	**Valeur**
Température de l'injecteur (°C)	250
Temprérature du détecteur (°C)	250
Split ratio	5
Débit du gaz vecteur (mL/min)	0,8
Débit d'air (mL/min)	300
Débit hydrogène (mL/min)	30
Volume d'échantillon injecté (μL)	500
Fluide injecté dans la GC-FID	Gaz
Temps de préchauffage des échantillons (min)	15
Température de préchauffage (°C)	32

La validité des analyses a été vérifiée par des gammes étalons réalisées avant et après la série d'échantillons d'eau souterraine provenant du site d'étude. Ces mesures ont été validées lorsque la courbe d'étalonnage présentait un $R^2 \geq 0{,}99$.

A partir des différentes analyses, les limites de détections ont pu être calculées et sont présentées dans le tableau suivant 3 :

Afin d'assurer la validité des mesures, deux comparaisons inter laboratoire ont été effectuées : l'une avec le laboratoire WESSLING (octobre 2015) et l'autre avec le laboratoire chimie environnement de l'université d'Aix-Marseille (UMR 7376, Mars 2016) (figure 3). Les différences observées peuvent être attribuées au

Tableau 2 : Programme de chauffage permettant la séparation des éléments dans la colonne du GC-FID

Cycle	Température (°C)	Rampe (°C.min^{-1})	Temps (min)
Premier cycle	32	-	4
Deuxième cycle	100	10	10,8
Troisième cycle	300	50	16,80 (+ 2 min à 300 °C)

Tableau 3 : Performance analytique du GC-FID

	TCE	cis-DCE	trans-DCE	CV
Limite de détection (μg/L)	2,5	7,7	11,2	12,2

conditionnement des échantillons une fois arrivés au laboratoire. De même, le temps séparant le conditionnement et l'analyse des échantillons peut jouer un rôle important et être responsable des différences observées.

Des analyses d'ions majeurs ont été réalisées au LCE à Marseille afin de comprendre les différences de minéralisation. Cette caractérisation permet d'identifier l'origine des eaux souterraines et de définir des zones de mélanges et/ou de contaminations.

Titration des ions hydrogénocarbonates. Le titrage des ions hydrogénocarbonates a été réalisé selon la méthode de Gran (1952) par de l'acide chloridrique (pH = 1,925). Les carbonates et les constantes d'acidités sont estimés de manière graphique (Gran, 1952).

Anions et cations. Les mesures d'anions ont été effectuées par chromatographie ionique (ICS-3000, Dionex) à l'aide d'une colonne de type AS11-HC (4*250 mm, Dionex ion) traversée par une solution de NaOH, dosée à 250 mM. Pour les cations, les concentrations ont été établies avec un chromatographe ionique en phase liquide (DX 500, Dionex) couplé à une colonne CS12A (4*250 mm, Dionex). L'éluant utilisé était de l'acide méthanesulfonique maintenu à un débit de 0,8 mL/min.

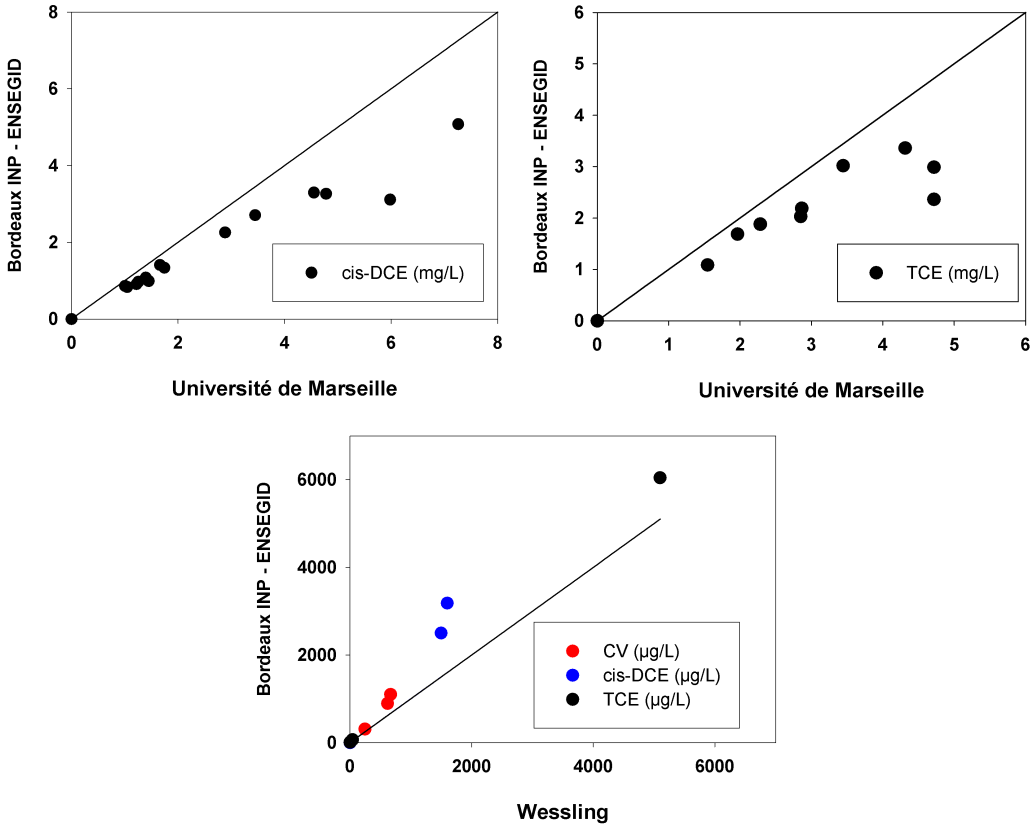

Figure 3 : Comparaison inter-laboratoire Bordeaux, Aix-Marseille, Wessling

Annexe 2 : Expérience de drainage et détermination de la pression capillaire d'entrée P_{ce}, de la saturation irréductible S_{wi}, et des paramètres α et m_{vg}

Pour déterminer la saturation irréductible S_{wi} et la pression capillaire d'entrée P_{ce} du milieu poreux utilisé pour les expériences, nous avons réalisé un test de drainage. Les caractéristiques de la colonne sont présentées au tableau 4. Cette colonne est ensuite saturé en eau. La colonne est ensuite "ouverte" pour laisser s'écouler l'eau hors de la colonne sous l'effet de la gravité, et l'air entre progressivement dans la colonne (figure 5).

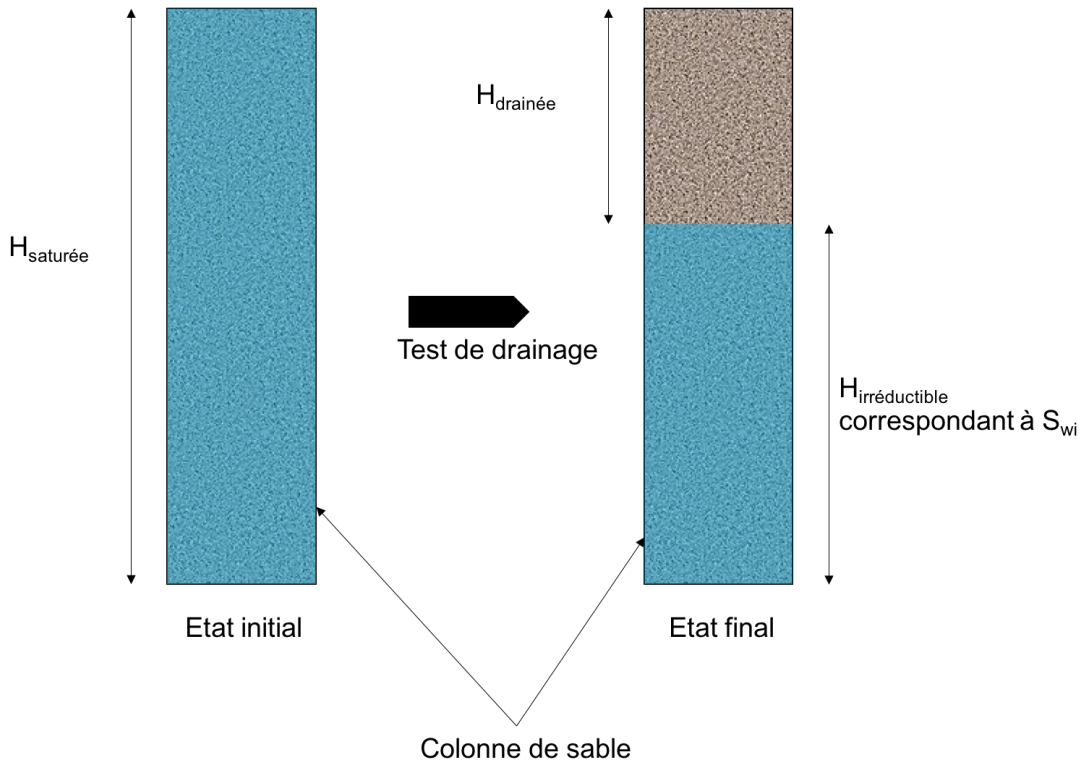

Figure 4 : Schéma de l'expérience menée pour définir P_{ce} et S_{wi}

La masse d'eau récupéré en sortie de colonne est suivi en temps réel jusqu'à ce que l'eau ne soit plus drainée hors de la colonne. Ainsi, il est possible de mesurer la hauteur saturée irréductible $H_{irréductible}$ (égale à 0,4 m) et de déduire la hauteur drainée $H_{drainée}$ ($H_{drainée}$ = $H_{saturée}$ - $H_{irréductible}$). $H_{drainée}$ est égale 0,2 m. La pression capillaire est ainsi définie par la relation 1.

$$P_{ce} = \rho_w \times g \times H_{drainée} \tag{1}$$

Avec P_{ce} la pression capillaire d'entrée (Pa), ρ_w la masse volumique de l'eau

Tableau 4 : Caractéristiques de la colonne pour définir les paramètres du milieu poreux

Paramètres	**Valeur**
Diamètre [m]	0,08
Section d'écoulement [m^2]	0,005027
Longueur de la colonne [m]	0,6
Volume de la colonne [m^3]	0,003016
Masse volumique du milieu poreux [$kg.m^{-3}$]	2650

($kg.m^3$), et g l'accélération de la gravité ($m.s^{-2}$). Dans notre cas, P_{ce} est égale à 3920 Pa. Cette méthode est tout de même sujette à incertitude car l hauteur irréductible n'est pas forcément clairement définissable.

Par ailleurs connaissant le volume d'eau présent dans la colonne à l'état saturé, et le volume d'eau récupéré, la saturation irréductible S_{wi} peut être facilement déterminée. Dans notre cas, le volume d'eau initial était de 314 mL, et le volume drainée était de 280,4 mL. Ainsi, S_{wi} est égale à 0,107.

A partir de l'expression de Van Genuchten (équation 2), nous avons tracé la courbe de S_w-P_c.

$$P_c(S_w) = \frac{1}{\alpha} \times \left(\left(\frac{S_w - S_{wi}}{1 - S_{wi} - S_{gr}} \right)^{1/m_{vg}} - 1 \right)^{1-m_{vg}} \tag{2}$$

Dans notre expérience de drainage, l'état initial est constitué uniquement de la phase eau. Il n'y a donc aucune phase gazeuse présent dans milieu poreux. Ainsi, S_{gr} est égale à 0. Pour une valeur de α égale à $1{,}06 \times 10^{-4}$, et une valeur de m_{vg} égale à 0,8, la courbe de la pression capillaire en fonction de la saturation semble en adéquation avec la valeur de pression capillaire d'entrée P_{ce}.

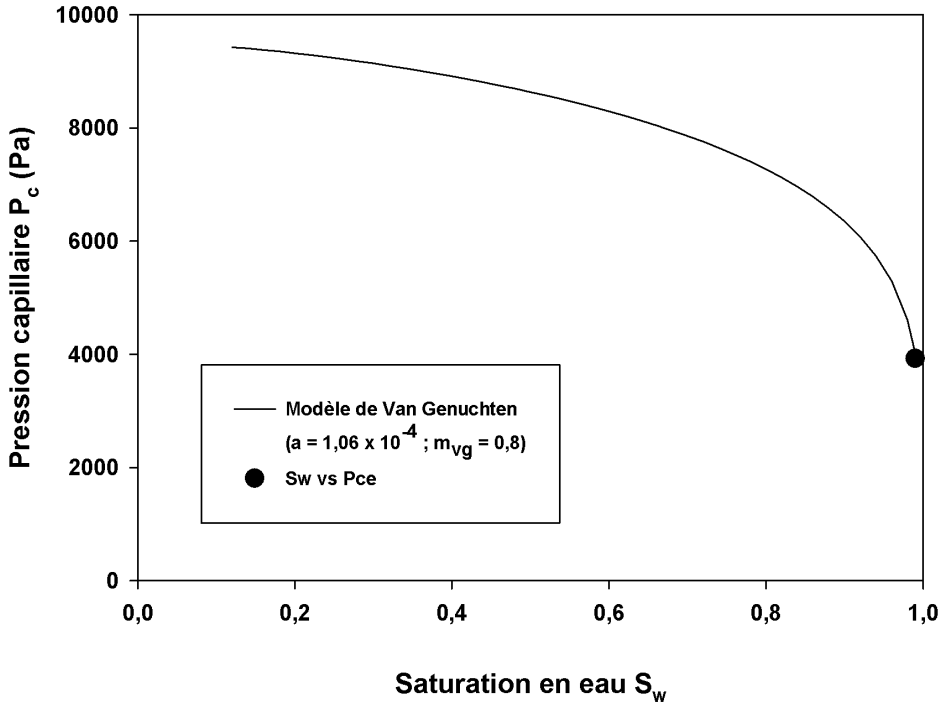

Figure 5 : Calage du modèle de Van Genuchten à partir des paramètres α et m_{vg} à la pression capillaire d'entrée P_{ce}

Annexe 3 : Protocole associé aux mesures faite avec le *Passive Flux Meter*

Après exposition, les PFMs sont récupérés et conservés dans des tubes étanches afin de limiter toute volatilisation. Ils sont stockés conditionnés à +4 °C jusqu'à leur manipulation. Les PFMs utilisés sur ce site ont une longueur de 1 mètre, avec 5 horizons de charbon actif de 20 cm séparé par des anneaux en caoutchouc.

Récupération des charbons actifs

Pour chaque PFM, les horizons sont collectés séparemment. Pour un horizon donné, l'ensemble du charbon actif est mélangé pendant une minute, afin d'homogénéisé les charbons actifs.

Une partie de ces charbons est ensuite stockés pour des analyses en liquides pour mesurer les masses de contaminants par horizons, et en analyse en phase gazeuse pour définir les masses relatives des alcools permettant de calculer les vitesses d'écoulement des eaux souterraines.

Analyses GC-FID : Mesure de la vitesse de Darcy

Les échantillons de charbons actifs exposés durant un temps t sur le terrain sont comparés avec des charbons actifs non exposé sur le terrain, initialement composés de 4 alcools. Les concentrations initiales de ces "témoins" ont été fixées d'après le recommendations de Annable *et al.* (2005) (tableau 5).

Tableau 5 : Caractéristiques initiales des PFMs : Concentration des traceurs et facteur de retard associé à chaque traceur

Traceurs	Concentration (mg/L)	Facteur de retard
methanol	1200	4,9
ethanol	1200	20
isopropanol	2300	109
alcool tert-butylique	2300	309

En fonction du facteur de retard, les alcools seront plus ou moins rapidement mobilisés par le flux d'eau souterraines. La comparaison des masses entre les "témoins" et les échantillons récupérés sur site permet de définir le facteur Mr pour chaque alcool, si tôt que cette alcool soit encore présent dans l'échantillon provenant du terrain. Pour chaque horizon, 5,0 g de charbons actifs sont conditionnés dans des *headspaces*. Il en va de même pour les "témoins".

La formule simplifié, définie par Annable *et al.* (2005), permet de mesurer les vitesses de Darcy (équation 3).

$$q = \frac{1,67 \times r \times R_f \times (1 - Mr)}{t} \tag{3}$$

Avec, q la vitesse de Darcy [L.T^{-1}], r le rayon du PFM [L], R_f le facteur de retard du traceyr utilisé pour le calcul [-], Mr la masse relative du traceur [-], et t le temps d'exposition du PFM sur site [T].

Toutes les analyses ont été réalisées à partir d'un GC-FID de type Varian CP3800. La colonne permettant la séparation des composés est une 624-SIL-MS (Restek, France). Les valeurs des paramètres analytiques importants sont présentées dans les tableaux 6 et 7.

Analyses GC-MS : Mesure du flux massique de contaminant

Afin de définir la masse de contaminant adsorbé sur les charbons actifs durant un temps t, il est important de pouvoir extraire ces contaminants de manière efficace. L'extraction des charbons actifs est réalisée à l'aide du dichlorométhane (DCM). Pour chaque horizon, 10 g de charbons actifs sont mélangé avec 30 mL

Tableau 6 : Paramètres analytique du GC-MS

Paramètres	Valeur
Température de l'injecteur (°C)	250
Temprérature du détecteur (°C)	250
Split ratio	10
Débit du gaz vecteur (mL/min)	1,2
Débit d'air (mL/min)	300
Débit hydrogène (mL/min)	30
Volume d'échantillon injecté (μL)	500
Fluide injecté dans la GC-MS	Gaz
Temps de préchauffage des échantillons (min)	35
Température de préchauffage (°C)	70

Tableau 7 : Programme de chauffage permettant la séparation des éléments dans la colonne du GC-FID

Cycle	Température (°C)	Rampe (°C.min^{-1})	Temps (min)
Premier cycle	32	-	5
Deuxième cycle	100	10	11,8
Troisième cycle	300	50	18,80 (+ 3 min à 300 °C)

de DCM. Afin d'avoir une extraction maximale, chaque échantillon est mélangé durant 24 h. Une fois l'extraction faite, le liquide est analysé en GC-MS donnant la concentration de contaminant extrait de 10 g de charbons actifs dans 30 mL de DCM. Connaissant la quantité de charbon par horizon, il est possible de calculer directement la masse de contaminant, Mc, présente pour chaque horizon.

La formule, définie par Annable *et al.* (2005), permet de mesurer le flux massique de contaminant (équation 4).

$$J = \frac{q \times Mc}{\pi \times r^2 \times L \times (1 - Mr) \times \theta \times R_f} \tag{4}$$

Avec J le flux massique de contaminant [M.LT^{-1}], Mc la masse de contaminant mesurée sur l'horizon étudié [M].

Or à partir de l'équation 3, l'équation 4 peut se simplifier comme suit :

$$J = \frac{1,67 \times Mc}{\pi Lrt} \tag{5}$$

Toutes les analyses ont été réalisées à partir d'un GC-MS de type Argilent 7820A. La colonne permettant la séparation des composés est une 624-SIL-MS (Restek, France). Les valeurs des paramètres analytiques importants sont présentées dans les tableaux 8 et 9.

Tableau 8 : Paramètres analytique du GC-MS

Paramètres	**Valeur**
Température de l'injecteur (°C)	250
Split ratio	20
Température de la source (°C)	230
Température *Quad* (°C)	150
Débit du gaz vecteur (mL/min)	1,0
Volume d'échantillon injecté (μL)	1
Fluide injecté dans la GC-MS	Liquide

Tableau 9 : Programme de chauffage permettant la séparation des éléments dans la colonne du GC-MS

Cycle	**Température (°C)**	**Rampe (°C.min^{-1})**	**Temps (min)**
Premier cycle	40	-	5,0
Deuxième cycle	100	20	8,0
Troisième cycle	300	50	12,0 (+ 1 min à 300 °C)