

Retour d'expérience sur les techniques de traitement en nappe et présentation de solutions innovantes

Olivier Atteia^{1*}, Florie Jousse¹, Elyess Essouayed¹, Agnès Labarchède¹, Clément Portois¹, Grégory Cohen¹

(1) EA 4592/Innovasol - Pessac, France - I Allé F. Daguin 33607

Auteur correspondant : olivier.atteia@cegetel.net

RÉSUMÉ

Les techniques de réhabilitation in situ des pollutions en nappes souterraines (source ou panache) sont très variées. Cependant le succès de celles-ci est souvent aléatoire. La première partie de la présentation s'attachera, à partir d'une revue bibliographique et de quelques exemples, à déterminer les paramètres qui conduisent souvent à une faible efficacité du traitement. Ce point sera complété d'une analyse du retour d'expérience sur des pilotes de traitement. Les limites sont généralement liées à l'hétérogénéité des formations géologiques mais aussi à un mauvais ciblage des analyses préparatoires ou à des faiblesses dans le suivi de la réhabilitation. Dans une deuxième partie nous examinerons les progrès récents visant à maximiser l'efficacité des traitements in situ. En premier lieu il s'agit de techniques de diagnostic qui permettent de cibler les flux de polluants. Et dans le cadre des techniques innovantes, nous présenterons particulièrement une technique originale : l'injection de mousse permettant de bloquer la porosité du milieu autour d'une zone source.

MOTS-CLÉS : technique de réhabilitation, nappe souterraine, efficacité, injection de mousse

ABSTRACT

Feedback on remediation techniques and presentation of innovative solutions

In situ remediation techniques for groundwater pollution are quite diverse. However, the success of these is often random. The first part of the article will focus, from a literature review and some examples, to determine the parameters that unfortunately lead to a low efficacy of treatment. This point will be supplemented by an analysis of the feedback on treatments at the pilot scale. The limits are generally related to the heterogeneity of the geological formations but also to a poor targeting of the laboratory analyses or to a poor monitoring of the rehabilitation. In a second part we will examine recent progress to maximize the effectiveness of in situ treatments. At first, we emphasize diagnostic techniques that make it possible to target the flow of pollutants. Following a general presentation of innovative techniques, we will particularly present an original technique : the injection of foam to block the porosity of around a source area.

KEYWORDS: remediation techniques, groundwater, efficiency, foam injection

Retour d'expérience sur les techniques de traitement en nappe et présentation de solutions innovantes

Olivier Atteia, Florie Jousse, Elyess Essouayed, Agnès Labarchède, Clément Portois, Grégory Cohen

Introduction

La détermination, *a priori*, de l'efficacité d'une technique de réhabilitation *in situ* reste un sujet d'actualité, tant les diverses études montrent des résultats différents (Atteia *et al.*, 2013). C'est un sujet central dans la sécurisation des opérations, autant du point de vue des propriétaires que des sociétés de dépollution. Cette présentation essaie de donner quelques clés pour avancer dans ce débat, en utilisant à la fois des résultats de bibliographie, des retours d'expérience de terrain et des expériences de laboratoire. Cette analyse est ensuite complétée de propositions de solutions innovantes à la fois dans le domaine de la mesure et des techniques de traitement.

I. Analyse de l'efficacité des méthodes courantes

I.1 L'exemple de l'ISCO : revue bibliographique

L'oxydation *in situ* (ISCO) est une des techniques les plus utilisées pour traiter à la fois les panaches et les zones sources. Cette technique connaît encore un fort développement et fait appel à différents produits tels que le permanganate, le persulfate, le réactif de Fenton ou l'ozone (Siegrist *et al.*, 2011). L'analyse détaillée de la littérature sur des tests sur des sites réels (figure 1) fait apparaître les éléments suivants :

- la majorité des polluants peuvent être traités si l'oxydant adapté est choisi,
- il est très difficile d'atteindre une diminution des concentrations compatible avec les valeurs réglementaires dans les eaux,
- cependant sur certains sites les opérateurs ont réussi à éliminer plus de 98 % de la pollution, même en présence de NAPL,
- ceci n'est possible qu'après une étude très détaillée du positionnement de la pollution, de la demande naturelle en oxydant (NOD) et des tests

pilotes in situ

- dans un milieu hétérogène, l'application doit être directement ciblée sur les zones peu perméables chargées en polluant,
- l'effet de rebond des concentrations est courant et doit être suivi en détail, il est donc utile de réaliser plusieurs injections

Ainsi l'exemple de cette technique appliquée sur des sites variés, met bien en évidence que l'hétérogénéité des sols rend l'atteinte des objectifs très difficiles, cependant, à l'aide d'une étude très détaillée des formations, de nombreux forages, et d'un suivi précis des injections, de bons rendements peuvent être atteints. Soulignons que cette étude tend à présenter des rendements plutôt bons car les sites où la remédiation n'ayant pas donné de résultats sont rarement publiés. L'exposé permettra de présenter plus en détail les facteurs permettant une réussite du traitement.

I.2 Retour d'expérience sur des pilotes *in situ*

En complément à la revue bibliographique précédente, effectuée sur des rapports publiés aux USA un travail spécifique sur des pilotes de petite dimension (zone source) réalisés sur site est en cours. En suivant la démarche présentée ci-dessus, les différents facteurs permettant de définir l'efficacité de traitement ont été étudiés sur les pilotes (19 pilotes de venting, sparging, bio-lavage, pompage de flottant, oxydation, thermique, biostimulation), en considérant l'ensemble de ceux-ci, y compris ceux qui avaient donné de « mauvais » résultats. Les résultats sont en cours de traitement, mais ceux-ci confirment en partie les observations signalées ci-dessus sur l'hétérogénéité des formations géologiques rendant l'atteinte des objectifs de traitement très difficile et le suivi précis des opérations nécessaire à l'obtention de bons rendements. Cependant, à cette liste, il convient d'ajouter le fait que lorsque les rendements sont moyens, il est très difficile de simplement définir la valeur de l'efficacité du traitement car l'erreur sur

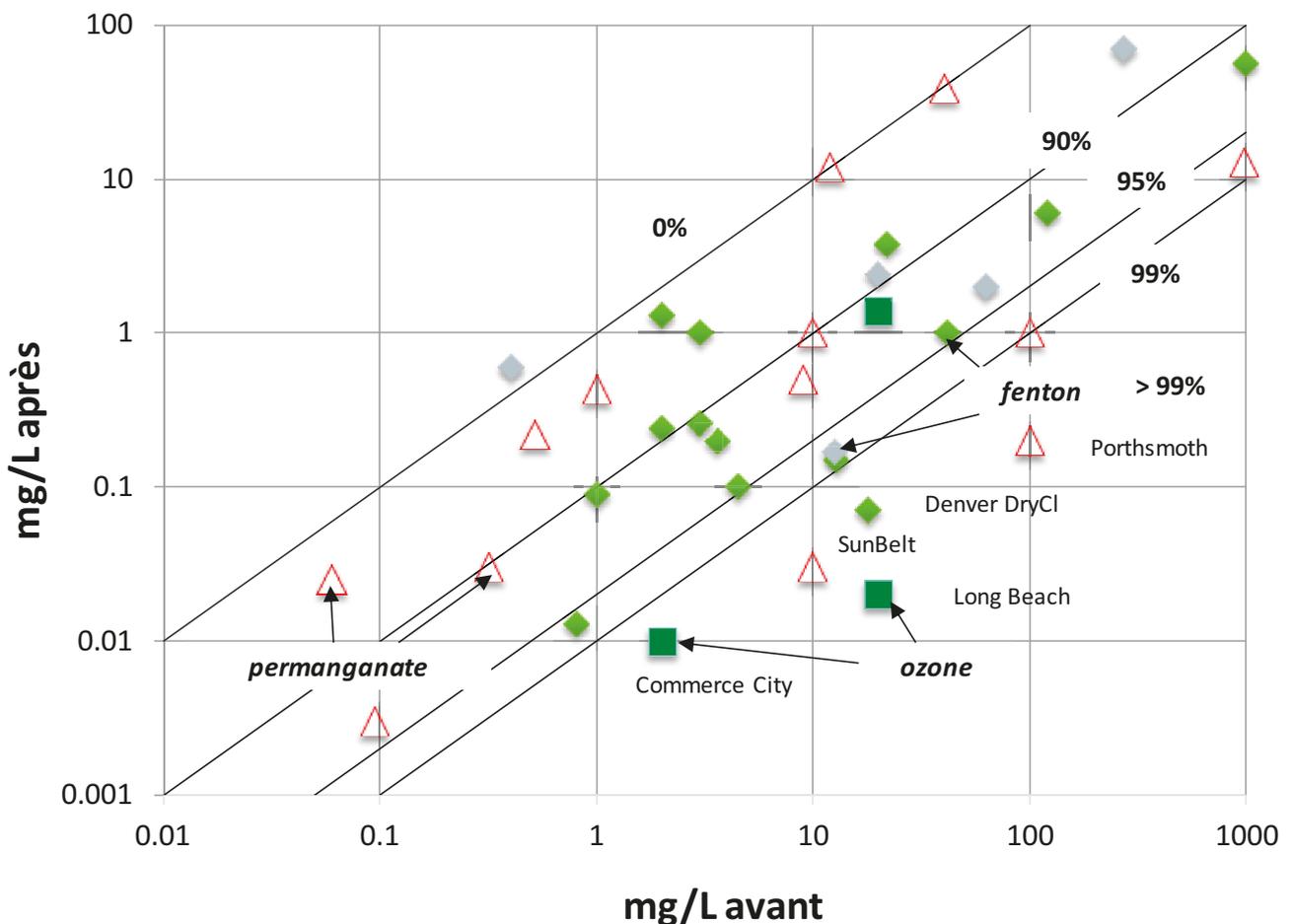


Figure 1. Concentrations dans les forages en aval de la zone source avant et après traitement selon les types d'oxydants (Fenton, ozone, permanganate). Les lignes montrent l'efficacité des techniques de traitement

l'estimation de la masse totale, avant et après traitement est très importante.

1.3 Une comparaison multi-échelle sur des systèmes contrôlés

Afin d'investiguer en détail les effets du milieu sur les techniques de traitement sur des polluants en phase NAPL, nous avons mené une étude comparative de quatre techniques de traitement (tensioactif, thermique, sparging, oxydation) à l'échelle du réacteur fermé et de la colonne de sol en laboratoire, mais aussi dans des pilotes de la taille d'un m³ (Atteia *et al.*, 2017 ; Jousse *et al.*, 2017). Les tests en batch, ont servi à confirmer les résultats de la littérature et à éliminer certains agents de traitement peu efficaces. Par un travail rigoureux de choix des bonnes conditions de traitement, les traitements en colonne ont permis d'éliminer plus de 95 % du polluant (des BTEX dans ce cas, figure 2). Ainsi, nous confirmons que l'étude de laboratoire en colonne est une étape indispensable pour préparer des injections de terrain. Par ailleurs, l'utilisation de pilotes présentant une pollution au sein d'une zone moins perméable a démontré

clairement la difficulté de réaliser une décontamination complète dans ce cas. La figure 2 présente les ratios de produit consommé pour les colonnes et les pilotes, et il apparaît de façon évidente que le changement d'échelle induit une perte accrue du produit de traitement, dépassant largement un facteur 10.

2. Proposition de solutions

2.1 Localiser les flux de polluants

Si une des clés d'un traitement réussi est la précision, alors la localisation très précise de la zone source devient un objectif majeur avant le traitement. Cependant il ne faut pas confondre les valeurs de concentrations dans le sol, voire dans l'eau et le flux de polluant. En effet, ce qui va causer un panache est bien la présence d'un flux de polluant important provenant de la zone source. Le flux est obtenu en multipliant la concentration locale par le flux d'eau ou flux de Darcy. De nombreuses études ont montré que la distribution spatiale des flux pouvait être très différente à la fois des distributions prises indépendamment des

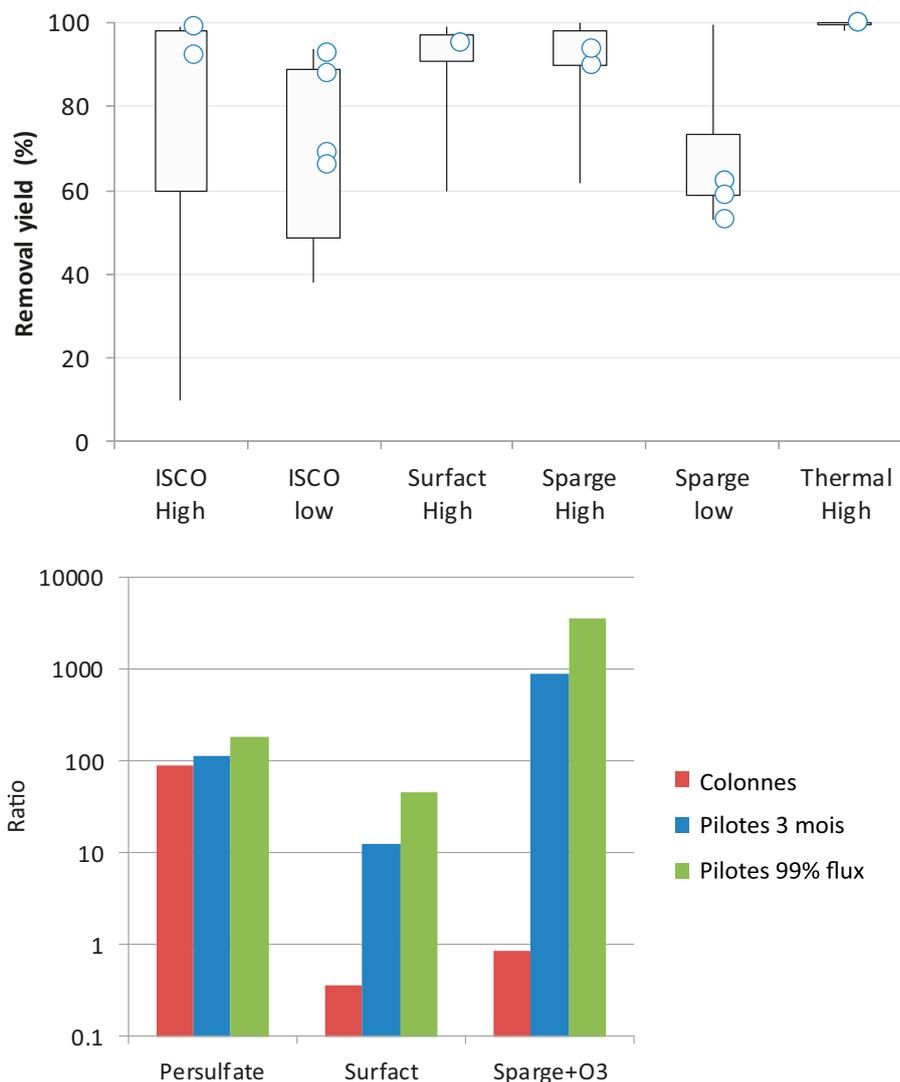


Figure 2. Haut : Comparaison des rendements de la littérature (boxplots) et de nos expériences en colonne (ronds), high et low font référence à la solubilité des produits. Bas : Illustration de la consommation importante de réactif à l'échelle du pilote vs celle de la colonne présentée sous forme de ratio massique entre l'agent de traitement et le polluant (pilote 3 mois : valeurs mesurées après 3 mois d'expérience, 99 % : extrapolation pour élimination de 99 % du flux sortant).

concentrations et des vitesses. Nous avons mis au point deux outils qui permettent de mesurer localement à la fois les concentrations et les vitesses, permettant ainsi de calculer des flux (Essouayed *et al.*, 2018). Différents sites étudiés mettent en évidence que la distribution verticale des flux de polluants est loin d'être semblable à ce qui est prévu par la densité des produits (Basu *et al.*, 2008) (Soga *et al.*, 2004), c'est-à-dire avec des flux de L-NAPL élevés au toit de la nappe alors que les solvants chlorés seraient plutôt au mur de celle-ci.

2.2 Une solution innovante : l'injection de mousse

La mousse est proposée comme solution innovante car elle

permet de répondre, tout au moins en partie, à la difficulté majeure soulevée lors de l'analyse des faibles efficacités des techniques de réhabilitation sur de nombreux sites. En effet la mousse présente l'avantage d'être peu chère par volume injecté et surtout, de se positionner principalement dans les zones les plus perméables. Lorsque la mousse de blocage a envahi ces zones, la perméabilité de celle-ci est considérablement réduite. Cette injection peut donc être utilisée comme une technique de confinement temporaire, permettant, par isolement de la zone source, d'améliorer considérablement l'efficacité d'un traitement effectué par injection de réactifs. Si de la mousse a déjà été injectée en réservoir pétrolier, une seule injection a eu lieu dans le domaine environnemental dans les années 1990. De plus elle avait été réalisée avec des tensioactifs qui ne peuvent

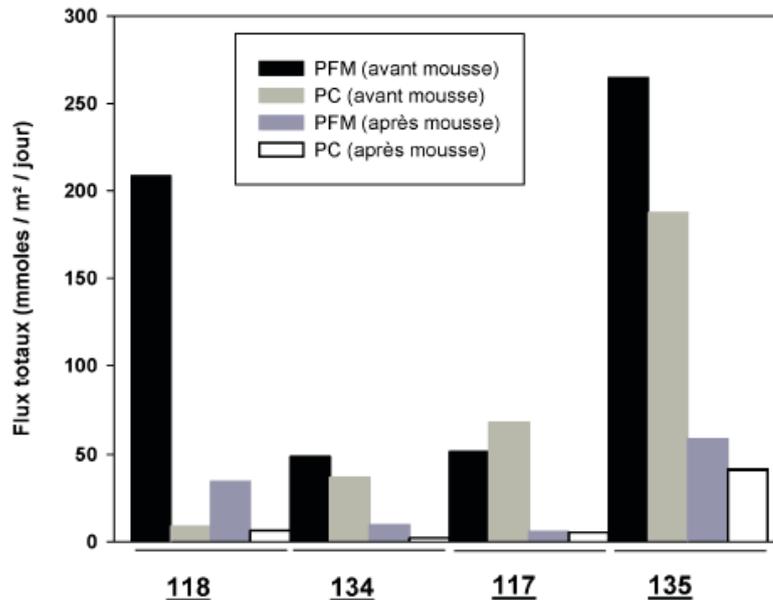


Figure 3. Comparaison de flux de solvants chlorés à l'aval de la source avant et après l'injection de mousse (PFM : Passive Flux Meter, PC : Préleveur Ciblé)

plus être utilisés actuellement. Le travail que nous avons mené avait pour objectif de confiner in situ une zone source de solvants chlorés.

Les expériences de laboratoire ont permis de définir, sur le milieu étudié, le type de tensioactif favorable à la création de mousse, la teneur en air (ou qualité) de la mousse, et la pression d'injection nécessaire. Ces expériences ont aussi permis de définir la relation entre la teneur en eau du milieu poreux envahi de mousse de blocage et la perméabilité à l'eau de celui-ci. Il apparaît ainsi que la perméabilité à l'eau peut être réduite d'un facteur variant entre 100 et 1000.

Des tests de terrain ont permis de valider un dispositif original de génération de la mousse de blocage, effectuée autour de la zone source, et les méthodes de mesure permettant de calculer la réduction de perméabilité. Ici aussi cette réduction est supérieure à 100, certains puits restant secs pendant plusieurs heures après l'injection. Sur site, en raison de l'injection en forage, il n'est pas possible, dans l'état actuel des connaissances de déterminer le rayon d'action de l'injection par la mesure. Une modélisation hydrodynamique a permis d'estimer celui-ci à une valeur de 2 à 3 m pour ce premier essai.

Le résultat majeur de ce premier test d'injection est une limitation très importante du flux d'eau traversant la zone source et donc du flux de polluant à l'aval de celle-ci. En effet, des mesures de flux de polluants ont été effectuées avant et après l'injection à l'aide de deux méthodes complémentaires. Ces mesures montrent nettement une réduction des flux, sur l'ensemble des forages situés à l'aval de la zone source, seul

un de ceux-ci montrant des résultats différents entre les deux méthodes de mesure (figure 3). La réduction globale du flux est proche d'un facteur 5, ce qui est un excellent résultat pour un premier test (Portois *et al.*, 2018). Ce résultat est cohérent avec le modèle numérique (Modflow + Mt3dms avec des zones de faible perméabilité pour la mousse de blocage) réalisé suite à l'injection.

Conclusion

Outre le contrôle très précis des étapes de mise au point de la méthode de traitement (laboratoire, pilote, suivi de terrain), la question centrale de l'efficacité du traitement réside dans le contrôle des effets de l'hétérogénéité du milieu et de la distribution du polluant. Après une analyse détaillée du rôle de l'hétérogénéité, nous avons présenté deux approches novatrices qui peuvent permettre ce contrôle : la description affinée des flux de polluants à l'aval des zones sources et l'utilisation de techniques de contrôle de l'écoulement autour de la zone source, telle que l'injection de mousse, dont les premiers tests ont été satisfaisants. D'autres techniques permettant de cibler les zones polluées (contrôle de flux, confinement, effets densitaires) sont envisageables.

Références bibliographiques

Atteia O., Jousse F., Cohen G., Höhener P. (2017). Comparison of residual NAPL source removal techniques in 3D metric scale experiments. *Journal of contaminant hydrology*, 202, pp. 23-32. <https://doi.org/10.1016/j.jconhyd.2017.04.006>

Atteia O., Estrada E.D.C., Bertin H. (2013). Soil flushing: a review of the origin of efficiency variability. *Reviews in Environmental Science and Bio/Technology*, 12(4), pp. 379-389. <https://doi.org/10.1007/s11157-013-9316-0>

Basu N. B., Rao P.S.C., Falta R.W., Annable M.D., Jawitz J.W., Hatfield K. (2008). Temporal evolution of DNAPL source and contaminant flux distribution: Impacts of source mass depletion. *Journal of Contaminant Hydrology*, 95(3-4), pp. 93-109. <https://doi.org/10.1016/j.jconhyd.2007.08.001>

Essouayed E., Annable M.D., Momtbrun M., Atteia O. (2018). An innovative tool for groundwater velocity measurement compared with other tools in laboratory and field tests. *Journal of Hydrology X*, 2, 100008. <https://doi.org/10.1016/j.hydroa.2018.100008>

Jousse F., Atteia O., Höhener P., Cohen G. (2017). Removal of NAPL from columns by oxidation, sparging, surfactant and thermal treatment. *Chemosphere*, 188, pp. 182-189. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2017.08.163>

Portois C., Essouayed E., Annable M.D., Guiserix N., Joubert A., Atteia O. (2018). Field demonstration of foam injection to confine a chlorinated solvent source zone. *Journal of contaminant hydrology*, 214, pp. 16-23. <https://doi.org/10.1016/j.jconhyd.2018.04.003>

Siegrist R.L., Crimi M., Simpkin T. J. (Eds.). (2011). *In situ chemical oxidation for groundwater remediation* (Vol. 3). Springer; New-York, NY. <https://doi.org/10.1007/978-1-4419-7826-4>

Soga K., Page J.W.E., Illangasekare T.H. (2004). A review of NAPL source zone remediation efficiency and the mass flux approach. *Journal of Hazardous Materials*, 110(1-3), pp. 13-27. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2004.02.034>