

CubicM, un code de calcul pour simuler le devenir de polluants organiques dans le milieu souterrain

Juliette CHASTANET^{1*}, Jean-Marie COME^{1*}, Raphael DI CHIARA ROUPERT², Gerhard SCHAFER², Michel QUINTARD^{3,4}

¹ : BURGEAP, Département Recherche et Développement, 19 rue de la Villette, 69425 LYON Cedex 03, j.chastanet@burgeap.fr, jm.come@burgeap.fr

² : LHYGES – UMR7517 CNRS, EOST / UdS, 1 rue Blessig, 67084 STRASBOURG Cedex, dichiara@unistra.fr, schafer@unistra.fr

³ : Université de Toulouse ; INPT, UPS ; IMFT (Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse) ; Allée Camille Soula, F-31400 Toulouse, France

⁴ : CNRS ; IMFT ; F-31400 Toulouse, France, Michel.Quintard@burgeap.fr

Résumé

Le logiciel CubicM est dédié à la modélisation du devenir des polluants organiques dans le milieu souterrain. L'originalité du code tient dans le fait que i) il intègre l'ensemble des mécanismes qui régissent le comportement de ce type de polluants (écoulements triphasiques / transport / dissolution / biodégradation...) ; ii) des formalismes mathématiques originaux ont été inclus afin de gagner en précision. Cet outil permet ainsi de modéliser un grand nombre de situations rencontrées sur des sites pollués.

Introduction

La réalisation d'études relatives à la pollution de sites pollués nécessite la mise en œuvre de codes de calcul pour (i) quantifier les mécanismes qui régissent la migration de la pollution dans le milieu souterrain et (ii) prévoir le devenir de la pollution avec ou sans mise en œuvre de techniques de dépollution. Pour la majorité des sites pollués, les polluants à prendre en compte sont les composés organiques non miscibles à l'eau tels que les hydrocarbures pétroliers et les organo-halogénés volatils. La plupart des situations rencontrées mettent donc en jeu une zone source (un « corps d'imprégnation » avec de la phase organique (NAPL)) et un panache de polluants dissous (et/ou gazeux) qui se développe au cours du temps et pour lequel la biodégradation peut intervenir. Ce type de pollution induit donc un grand nombre de mécanismes physiques couplés entre eux (Côme et al, 2006 [1]). Hors, à notre connaissance, les outils de modélisation courants ne permettent pas de simuler de façon concomitante l'ensemble de ces mécanismes.

Dans ce contexte, un outil de calcul a été développé par BURGEAP (société d'ingénierie) en partenariat avec le Laboratoire d'Hydrologie et de Géochimie de Strasbourg (LHYGES) et l'Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse (IMFT) dans le cadre de 2 projets de recherche cofinancés par l'ADEME. Cet outil est conçu pour permettre de simuler le devenir de polluants organiques dans le milieu souterrain en prenant en compte l'ensemble des mécanismes en jeu dans le devenir des composés organiques. Le logiciel, dénommé **CubicM** (ou **M³**), fait référence aux fonctionnalités physiques du code à savoir : **multiphase, multicomponent & multiprocess code**.

Dans la suite, sont présentées les fonctionnalités physiques et les méthodes numériques sur lesquelles repose le code, des tests de vérification qui mettent en évidence la diversité des situations qui peuvent être modélisées ainsi que la mise en œuvre de l'outil sur un site d'étude.

Présentation de l'outil de modélisation

Le code cubicM intègre l'ensemble des mécanismes physiques pertinent pour simuler le devenir des polluants organiques dans les sols :

- écoulement triphasique (eau/air/phase organique) :
- transport des polluants dans les 3 phases : l'interaction des polluants en phase gazeuse est notamment considérée (diffusion multiconstituants) ;
- transferts entre phases : dissolution, volatilisation et adsorption sont intégrés avec une approche en non équilibre local pour tenir compte des effets cinétiques des échanges entre phases en lien avec les hétérogénéités du milieu souterrain et de la répartition de la pollution
- réactions chimiques proposées avec des formalismes génériques (cinétique d'ordre 1, Monod, ...) et des modules spécifiques pour certaines familles de polluants. Un module dédié aux chloroéthènes

incluant les mécanismes de compétition entre accepteurs/donneurs d'électrons est notamment inclus.

Outre le fait qu'il rassemble un grand nombre de fonctionnalités, l'originalité du code tient dans certaines fonctionnalités qui permettent de décrire des situations pas ou peu modélisées à ce jour :

- la diffusion multiconstituants dans l'air des sols permet d'appréhender les interactions entre les polluants volatilisés pour une meilleure prédiction des transferts de composés organiques volatils (COV) vers la surface ;
- les cinétiques d'échanges lors des processus de dissolution et volatilisation permettent de décrire l'évolution temporelle des zones sources de pollution à long terme (plusieurs dizaines d'années) et jusqu'à la fin de vie de ces zones sources ;
- les cinétiques d'échanges pour le mécanisme d'adsorption permettent notamment de décrire les effets rebonds observés après excavation des sols ;
- les modules de biodégradation (phase eau et phase organique) spécifiques à certaines familles de polluants (chloroéthènes et hydrocarbures essentiellement) autorisent une prédiction plus fine du devenir de ces polluants lorsque ce mécanisme est prédominant.

CubicM est basée sur la méthode des éléments finis mixtes hybrides et autorise des maillages structurés et non structurés. La résolution numérique est réalisée suivant la méthode des lignes ([2],[3]), méthode adaptée pour la résolution d'équations différentielles partielles non linéaires et évolutives. Le solveur DLSODIS¹ retenu permet de traiter des systèmes ODEs. La méthode de Marquart-Levenberg est utilisée pour les systèmes non linéaires et le solveur linéaire (décomposition LU) est optimisé dans le cas d'une matrice constante et/ou d'une matrice à structure invariante. Enfin, la gestion du pas de temps et de l'ordre en temps est automatique (pas de temps adaptatif). Le code est lié, via une interface simplifiée à des outils de pré et postprocessing (Gmsh [4] pour le maillage, Paraview² pour la visualisation des résultats).

Mise en œuvre du code sur des cas tests et application à un site d'étude

Tandis que le code a bénéficié de nombreux tests de vérification sur des cas simplifiés (comparaison à des solutions analytiques et à d'autres codes numériques...), plusieurs tests sont présentés afin de mettre en évidence l'intérêt de l'outil dans le cadre d'études sur les sites et sols pollués. Ces tests sont présentés succinctement (éléments de schématisation, fonctionnalités incluses, intérêt du test) ci-après.

Infiltration d'une phase organique dans le sol suite à un déversement accidentel

Ce test se focalise sur les capacités du code à simuler l'infiltration d'une phase organique dans la zone non saturée et la zone saturée depuis la surface du sol. En terme opérationnel ce type de test peut être utile pour prédire l'impact d'un déversement accidentel (rupture de cuve de stockage d'hydrocarbures, ...) sur le milieu souterrain et sur la nappe. La géométrie et les conditions aux limites de ce cas test sont conformes à l'expérience d'O'Caroll *et al* [5] (infiltration de Tétrachloroéthylène (PCE) pur dans un bac rempli de sables de saturation variable, cf. figure 1). Outre la comparaison avec les résultats expérimentaux et numériques de cette étude antérieure, les simulations réalisées avec CubicM permettent de vérifier que le code restitue correctement les effets gravitaires et capillaires, effets prépondérants dans la forme du front d'infiltration de la phase organique.

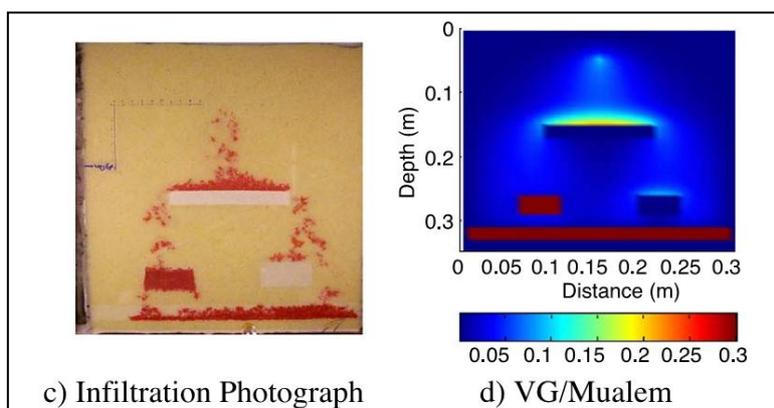


Figure 1. Infiltration de phase organique dans un sable à saturation variable [5]

¹ le solveur DLSODIS est développé par Alan C. Hindmarsh et Sheila Balsdon (Lawrence Livermore National Laboratory, version novembre 2003)

² Paraview est développé par le Sandia National Laboratories (Lockheed Martin Corporation), le Los Alamos National Laboratory et la société Kitware Inc.

Evolution temporelle d'une source de pollution (phase organique immobile) dans un aquifère

Il s'agit ici de simuler la dissolution progressive d'une phase organique immobile composée d'un mélange de composés organo-chlorés dans un aquifère homogène (cf. figure 2). L'évolution de la phase organique (masse, composition, saturation) est suivie au cours du temps. Les résultats de simulation du code CubicM sont comparés aux résultats du code Modflow-Surfact. Ce test met en évidence l'importance de modéliser la phase organique en intégrant les effets cinétiques dans le processus de dissolution lorsqu'on cherche à prédire l'évolution de la source et du panache à long terme (sur plusieurs dizaines d'années).

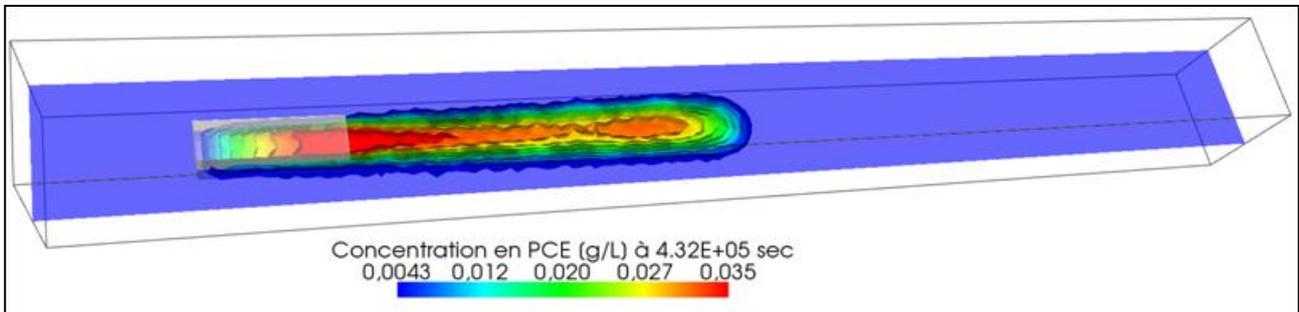


Figure 2. Dissolution et transport d'un composé organique dissous dans un aquifère homogène

Modélisation d'une source de pollution (phase organique immobile) dans la zone non saturée et saturée, impact sur la nappe et dans l'air des sols

Ce cas test correspond à la modélisation en 3D des mécanismes d'atténuation (i) d'une zone source multicomposés par dissolution et volatilisation, (ii) et des panaches (composés dissous et volatilisés) par convection, dispersion/diffusion, volatilisation, sorption et biodégradation (cf. Figure 3 pour la géométrie). Il intègre donc un grand nombre de mécanismes. Issu du programme d'inter comparaison du projet MACAOH [6], ce cas test a permis d'évaluer les performances du code CubicM, en comparaison avec d'autres codes mis en œuvre dans le cadre de ce projet, dans une configuration où le devenir d'une pollution organique dans le milieu souterrain est traité dans son ensemble (source, panache dissous, panache volatilisé).

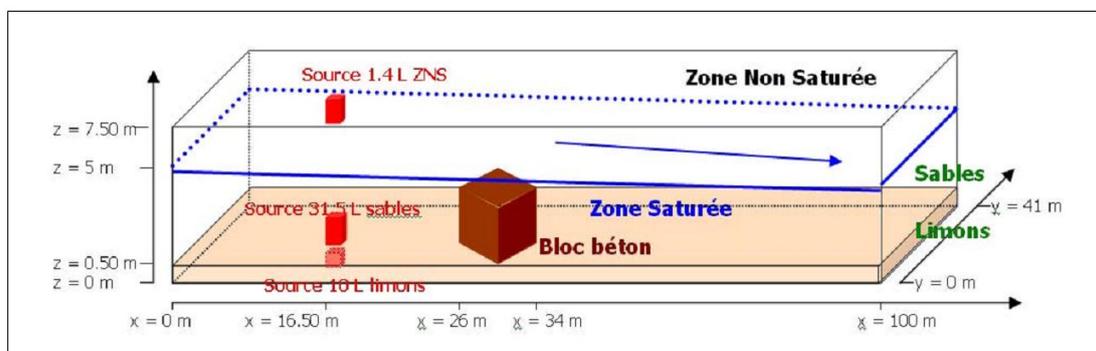


Figure 3. Schématisation du cas test pour la modélisation d'une source de pollution en ZNS et ZS et son impact sur la nappe et sur l'air des sols [6]

Mise en œuvre sur un site d'étude

Le code a été mis en œuvre sur le site atelier du projet R&D Fluxobat. Ce site présente une pollution de type chloroéthènes dans les sols. Ici, la question des risques sanitaires liée au transfert de polluants volatilés vers l'air intérieur des bâtiments est d'autant plus importante que ce site est situé dans une zone fortement urbanisée (Traverse et al, 2013 [7]). Pour modéliser le transfert de polluants volatilés depuis une source dans le sol et vers la surface, les écoulements diphasiques eau / air et le transport de composés organiques dans les phases en présence sont pris en compte. Les résultats montrent une bonne concordance entre le code CubicM et le code Modflow-Surfact (code utilisé pour la modélisation numérique dans le cadre du projet Fluxobat, cf. figure 4 pour une illustration). Au-delà de cette comparaison, ce test met en évidence la capacité du code CubicM à modéliser l'influence des variations de saturation en eau sur le transfert de volatils ainsi que les interactions entre polluants dans l'air des sols (effet multiconstituants).

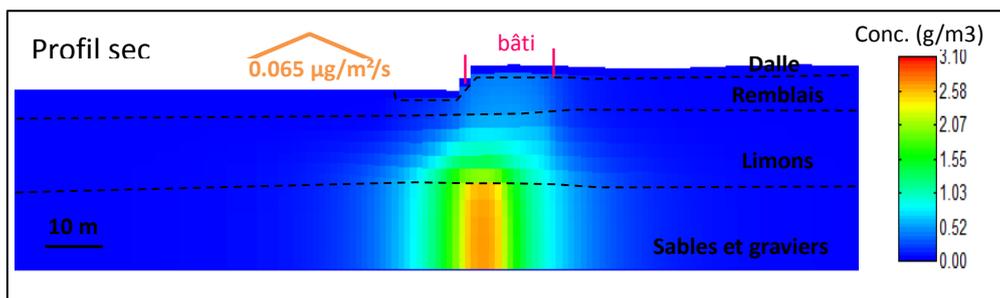


Figure 4. Transferts de composés volatils depuis le sol vers la surface [8]

Conclusions et perspectives

Le code numérique CubicM intègre l'ensemble des mécanismes qui régissent le devenir des composés organiques dans le milieu souterrain (écoulement triphasique, transport de masse, dissolution, volatilisation, adsorption, biodégradation). Les fonctionnalités du code reposent sur des formalismes mathématiques fins qui permettent de décrire des situations généralement mal modélisées (fin de vie des zones source, effet rebond après excavation, biodégradation séquentielle des COHV, interaction des composés organiques entre eux,...). Les tests présentés donnent un aperçu des situations qui peuvent être modélisées avec ce logiciel.

Références

- [1] Côme, J.M., Quintard, M., Schäfer, G., Mosé, R., Delaplace, P., Haeseler, F. (2006). Modélisation du devenir des composés organo-chlorés aliphatiques dans les aquifères, *Guide méthodologique ADEME, Programme R&D MACAOH (Modélisation, Atténuation, Caractérisation dans les Aquifères des Organo-Halogénés)*, 182 p. <http://www2.ademe.fr/servlet/KBaseShow?sort=-1&cid=96&m=3&catid=10143>
- [2] Kees, C.E., Miller, C.T. (2002). Higher order time integration methods for two-phase flow, *Advances in Water Resources*, 25 (2), 159-177.
- [3] Fahs, M., Younes, A., Ackerer, P. (2011). An Efficient Implementation of the Method of Lines for Multicomponent Reactive Transport Equations. *Water, Air, & Soil Pollution*, 215 (1-4), 273 - 283.
- [4] Geuzaine, C., Remacle, J.F. (2009). Gmsh: a three-dimensional finite element mesh generator with built-in pre- and post-processing facilities. *International Journal for Numerical Methods in Engineering*. 79(11), 1309-1331.
- [5] O'Carroll, D.M., Bradford, S.A., Abriola, L.M. (2004). Infiltration of PCE in a system containing spatial wettability variations. *Journal of Contaminant Hydrology*, 73, p. 39-63.
- [6] Quintard, M., Schäfer, G., Côme, J.M., Mosé, R., Kaskassian, S., Delaplace, P., Nex, F., Haeseler, F., (2006). Modélisation du devenir des composés organo-chlorés aliphatiques dans les aquifères : situations à modéliser, analyse critique des outils de calcul disponibles, programme d'inter-comparaison. *Rapport final ADEME, Volume II, Programme R&D MACAOH (Modélisation, Atténuation, Caractérisation dans les Aquifères des Organo-Halogénés)*, 144 p.
- [7] Traverse, S., Schäfer G., Chastanet, J., Hulot, C., Perronnet, K., Collignan, B., Cotel, S., Marcoux, M., Côme, J.M., Correa, J., Gay, G., Quintard, M., Pepin, L. (2013). Projet FLUXOBAT, Evaluation des transferts de COV du sol vers l'air intérieur et extérieur. *Guide méthodologique. Novembre 2013*. 257 p. www.fluxobat.fr
- [8] Traverse S., Schäfer G., Chastanet J., Hulot C., Perronnet K., Collignan B., Cotel S., Marcoux M., Côme J.M., Correa J., Gay G., Quintard M., Pepin L. (2013). Projet FLUXOBAT, Evaluation des transferts de COV du sol vers l'air intérieur et extérieur. *Annexes du guide méthodologique. Novembre 2013*. 167 p. www.fluxobat.fr