

Article

« Transport avec échange gazeux du trichloroéthylène vers une nappe aquifère »

Salah Jellali et Olivier Razakarisoa

Revue des sciences de l'eau / Journal of Water Science, vol. 19, n° 1, 2006, p. 33-45.

Pour citer cet article, utiliser l'information suivante :

URI: <http://id.erudit.org/iderudit/012595ar>

DOI: 10.7202/012595ar

Note : les règles d'écriture des références bibliographiques peuvent varier selon les différents domaines du savoir.

Ce document est protégé par la loi sur le droit d'auteur. L'utilisation des services d'Érudit (y compris la reproduction) est assujettie à sa politique d'utilisation que vous pouvez consulter à l'URI <https://apropos.erudit.org/fr/usagers/politique-dutilisation/>

Érudit est un consortium interuniversitaire sans but lucratif composé de l'Université de Montréal, l'Université Laval et l'Université du Québec à Montréal. Il a pour mission la promotion et la valorisation de la recherche. Érudit offre des services d'édition numérique de documents scientifiques depuis 1998.

Pour communiquer avec les responsables d'Érudit : info@erudit.org

TRANSPORT AVEC ÉCHANGE GAZEUX DU TRICHLOROÉTHYLÈNE VERS UNE NAPPE AQUIFÈRE

Transport with exchange mechanisms of trichloroethylene to groundwater

Salah Jellali¹ et Olivier Razakarisoa^{2,*}

¹Institut National de Recherche Scientifique et Technique, Laboratoire Eau & Environnement (LEE), Route touristique de Soliman, B.P. 95, C.P. 2050, Hammam Lif, Tunisie

²Institut de Mécanique des Fluides et des Solides de Strasbourg, Institut Franco-Allemand de Recherche sur l'Environnement (IFARE), UMR 7507 ULP-CNRS, 23, rue du Loess, B.P. 20 - 67037 Strasbourg Cedex, France

Reçu le 23 août 2004, accepté le 30 mars 2005

ABSTRACT

Two large-scale experiments were conducted on a controlled artificial aquifer referred to as SCERES (Site Contrôlé Expérimental de Recherche pour la Réhabilitation des Eaux et des Sols: 25 x 12 x 3 m). The experimental tool SCERES was completely buried in the subsurface in order to get stable temperature conditions in the aquifer. The hydraulic gradient, flow rate, visualization of the water table and water sampling were managed and monitored in two technical pits located at the upstream and downstream ends of the SCERES basin. It was packed with a main layer of uniform quartz sand and a 0.5 m-deep drainage layer at the bottom of the basin having hydraulic conductivities of 8×10^{-4} and 6×10^{-3} m/s respectively. The quartz sand had a mean grain diameter of 0.45 mm, a total porosity of 0.4 and a uniformity coefficient of 2.1; its longitudinal dispersivity was determined in laboratory column experiments to be approximately 1 mm. The aquifer is composed of a 1 m-thick saturated zone and a 2 m-thick unsaturated zone, making it possible to monitor the propagation of vapours in this zone. The hydraulic gradient of the groundwater was fixed at 0.003 m/m, which corresponded

to a flow rate of 0.5 m³/h and an average velocity of approximately 0.4 m/day. The thickness of the capillary fringe was estimated to be approximately 0.25 m as deduced from water profile measurements by exploration with a TDR (Time Domain Reflectometry) probe. In the capillary fringe, water saturation at depths of 1.85 and 1.95 m was approximately 57% and more than 90%, respectively.

The contaminant chosen for these experiments was trichloroethylene (TCE), because it is among the most frequently detected volatile organic compounds (VOCs) in subsurface environments. TCE as the pure phase was injected 0.35 m beneath the soil surface of SCERES with an experimental design that maintained a uniform infiltration of TCE in the vadose zone for 15 min. The chosen injection device was built from a stainless steel tank (0.58 m diameter and 0.15 m height), on which 31 screened brass rods were fixed at the bottom and separated by a distance of 0.1 m. Each rod contained four injection holes of 0.2 mm diameter in the lower extremity (JELLALI, 2000; JELLALI *et al.*, 2001). In order to prevent TCE volatilization from the device during injection, the TCE volume in the injection tank was covered with a 0.02 m thick water layer.

*Auteur pour correspondance :
Tél. : 33 (0) 3 88 10 67 96
Fax : 33 (0) 3 88 10 67 95
Courriel : olivier@ifms.u-strasbg.fr

The resulting vapour and aqueous phases were monitored along with temperature and moisture content in order to investigate the mass transfer of VOC from the unsaturated zone to groundwater. The originality of this research was based on the fact that the controlled SCERES site allowed the study of transfer phenomena in the capillary fringe, which is difficult to reach in a reduced laboratory physical model or in a real contaminated site. This characteristic offers an exceptional opportunity for data acquisition in controlled conditions between laboratory and site scales. This aspect is of importance due to the fact that in this capillary zone, water content varies with depth and this situation causes changes in flow rate affecting the intensity of the pollution flux. This study aimed to quantify, in an experimental way, the pollution flux from the unsaturated zone towards the groundwater.

In the first experiment, carried out in the summer (July-September), the infiltrated TCE volume was 5 L. In the second experiment, carried out in autumn (October-December), the TCE volume was 3 L in order to increase the distance between the pollution source and the water-table. These volumes were selected on the basis of previous knowledge of TCE residual saturations determined in laboratory column tests (JELLALI, 2000) and in order to obtain a pollution source limited to the unsaturated zone. The first experiment was conducted without water infiltration to study the dispersion of TCE vapours across the capillary fringe, while the second experiment was carried out with a limited rain infiltration in order to investigate the effect of vapour leaching on groundwater pollution. The transport of TCE was monitored in the vadose zone, the capillary fringe and the groundwater where a comparative analysis of two mechanisms of TCE transfer from the unsaturated zone to groundwater via the capillary fringe was carried out: dispersion and dissolution. In both cases, the coupling of measurements of pollutant concentrations in the unsaturated zone, the capillary fringe and the groundwater of SCERES allowed us to take into account the mechanisms intervening near the source area, on a scale close to that of a real pollution problem. The concentration of dissolved TCE was analyzed by a gas chromatograph equipped with a flame ionization detector (GC-FID) after liquid-liquid extraction with hexane. The online quantitative analysis of TCE vapours was performed by a multigas monitor equipped with a photoacoustic infrared detector.

For the first experiment, the TCE mass fluxes from the vadose zone to groundwater were quantified using the method of JOHNSON and PANKOW (1992) where we applied the analytical solution of GRATHWOHL (1998) and incorporated parameters due to the capillary fringe. For the second experiment, we used the numerical code HYDRUS that allowed the simulation of one-dimensional flow in the unsaturated zone. In this example, the TCE mass fluxes leaving the unsaturated zone to the groundwater due

to rain infiltration were obtained from the knowledge of the infiltration flow rate and the measured concentrations at the top of the capillary fringe.

The observed results indicate that the hydrodynamic dispersion of TCE vapours within the capillary fringe (vertical dispersion) can cause significant groundwater pollution despite the slowness of the aqueous diffusion in the lower region of the highly water saturated capillary fringe. Vapour leaching due to controlled water infiltration causes more significant groundwater pollution in degree and extent than vertical dispersion. The experimental and analytical results demonstrate, on the one hand, the role of the capillary fringe as a barrier against pollution transfer to groundwater when the only mechanism is hydrodynamic dispersion, and on the other hand, significant enhancement of groundwater contamination due to the capture and leaching of vapours from the vadose zone by infiltrating water.

Key words: *pollution; transfer; groundwater; trichloroethylene; vapours; flux; capillary fringe*

RÉSUMÉ

Deux expériences ont été réalisées sur un site expérimental contrôlé de dimensions décimétriques reconstituant un aquifère alluvial. L'originalité de ce travail est basée sur le fait que cette plate-forme expérimentale permet de rendre compte du rôle de la frange capillaire dans les phénomènes de transfert, ce qui est difficilement accessible sur des systèmes réduits de laboratoire ou dans les investigations sur site réel. L'objectif principal est l'évaluation quantitative des mécanismes de transfert de Composés Organiques Volatils (COV) depuis la zone non saturée vers la nappe dans le cas d'une source de pollution localisée en zone non saturée. Le cas du transport du trichloroéthylène (TCE) a été abordé où une analyse comparative du transfert du TCE depuis la zone non saturée vers la nappe via la frange capillaire est présentée en étudiant les deux mécanismes : dispersion et dissolution. Dans la première expérience, la dispersion passive de la pollution par les vapeurs depuis la zone non saturée vers la nappe via la frange capillaire est étudiée. Dans la seconde expérience, l'impact sur la pollution de la nappe du lessivage des vapeurs par une pluie contrôlée est quantifié. Les résultats montrent que la dispersion passive des vapeurs peut causer une pollution significative de l'eau de la nappe, et ce, malgré la lenteur du processus de diffusion dans la partie inférieure de la frange capillaire suffisamment saturée en eau. Le lessivage des vapeurs par la pluie provoque une pollution de nappe plus importante et plus étendue. La quantification des flux de pollution partant de la zone non saturée vers la nappe a été réalisée dans la première expérience en se servant de la méthode de JOHNSON

et PANKOW (1992), et du code de calcul (HYDRUS) dans la seconde expérience. Les résultats expérimentaux et analytiques mettent en évidence, d'une part, le rôle d'écran joué par la frange capillaire contre le transfert de la pollution vers la nappe, et d'autre part, l'augmentation significative du degré et de l'étendue de la pollution de la nappe en cas de lessivage des vapeurs par les eaux de pluie.

Mots clés : *pollution ; transfert ; eau souterraine ; trichloroéthylène ; vapeurs ; flux ; frange capillaire.*

1. INTRODUCTION

La pollution des eaux souterraines par les Composés Organiques Volatiles (COV) et/ou Organo Halogénés Volatils (COHV) représente à l'heure actuelle une grande menace de détérioration des hydrosystèmes de l'environnement continental. De nombreux cas de pollution par ces produits faiblement miscibles dans l'eau ont été détectés ces dernières décennies, tant en France que dans d'autres pays industrialisés. Dès leur déversement à la surface du sol, ils tendent à pénétrer rapidement dans le sous-sol sous l'effet de leur faible viscosité et de leur densité élevée (SCHWILLE, 1988). Lors de leur traversée de la zone non saturée, une majeure partie passe sous forme gazeuse de par leur forte volatilité. Ces vapeurs se propagent dans la zone non saturée pour constituer un panache de pollution au bout de quelques jours (FALTA *et al.*, 1989; JELLALI *et al.*, 2001; LENHARD *et al.*, 1995). Les processus qui conditionnent leur dynamique en zone non saturée sont l'évaporation du produit en tant que phase pure, la volatilisation de la phase aqueuse, les phénomènes de partage entre les phases gazeuse et aqueuse, l'advection, la diffusion et la dispersion hydrodynamique. L'importance de chacun de ces processus dépend à la fois des caractéristiques physico-chimiques du polluant et des conditions hydrogéologiques du milieu souterrain (FALTA *et al.*, 1989; LENHARD *et al.*, 1995; MENDOZA et FRIND, 1990a et 1990b; RIVETT, 1995; RIVETT *et al.*, 2001; THOMSON *et al.*, 1997; WANG *et al.*, 2003).

Plusieurs expériences ont été réalisées afin de mieux comprendre les mécanismes intervenant dans la contamination de l'eau souterraine à partir du panache des vapeurs. Les résultats montrent que ce transfert de masse peut être important et dépend des paramètres expérimentaux comme le gradient de concentrations dans la frange capillaire (BARBER *et al.*, 1990), le degré d'hétérogénéité du milieu (BISHOP *et al.*, 1990), la vitesse et la dispersivité verticale du milieu (McCARTHY et JOHNSON, 1993), les fluctuations du toit de la nappe (THOMSON *et al.*, 1997). Sur le site réel de Borden (base militaire canadienne), plusieurs études ont été effectuées afin de déterminer les principaux processus intervenant dans le transport des vapeurs dans la zone non saturée (CONANT

et al., 1996; HUGHES *et al.*, 1992) et de localiser la source de pollution ainsi que le panache des traces dissoutes dans la nappe à partir des mesures de concentrations en polluants dans la zone non saturée (RIVETT, 1995). Différents problèmes sont rencontrés dans de telles études expérimentales : elles ne permettent pas un suivi détaillé et rigoureux de ce transfert de masse car les profils de concentrations dans la frange capillaire ne sont généralement pas mesurés (RIVETT, 1995), les dispositifs expérimentaux utilisés sont de tailles réduites (McCARTHY et JOHNSON, 1993), et l'investigation est tardive après le déversement accidentel du polluant (BARBER *et al.*, 1990).

Le transfert de masse de la zone non saturée vers la nappe a été également étudié grâce à des modèles numériques sans prise en compte de l'effet réel de la frange capillaire (McCARTHY et JOHNSON, 1993; MENDOZA et McALARY, 1990; SLEEP et SYKES, 1989). Dans le cas où les précipitations sont prises en compte, tous les modèles numériques utilisés montrent que le transport advectif de la phase aqueuse est le processus dominant et que celui-ci augmente la pollution de la nappe (BAEHR et STACKELBERG, 1999; MENDOZA et McALARY, 1990; PANKOW *et al.*, 1997; SLEEP et SYKES, 1989; THOMSON *et al.*, 1997). MENDOZA et McALARY (1990) ont démontré qu'avec une précipitation annuelle moyenne de 250 mm, la quantité de polluant transférée vers la nappe peut être six fois plus importante que celle transférée par simple dispersion passive des vapeurs.

Pour la quantification des flux de pollution de la zone non saturée vers la nappe, le partage entre l'air du sol chargé en polluant et la phase aqueuse est souvent décrit en supposant un équilibre instantané, ce qui implique que la loi de Henry peut être appliquée (LENHARD *et al.*, 1995; McCARTHY et JOHNSON, 1993; MENDOZA et McALARY, 1990; MENDOZA et FRIND, 1990a et 1990b). D'autres auteurs, au contraire, utilisent une cinétique de transfert entre ces deux phases. SLEEP et SYKES (1989) traitent la volatilisation et le partage eau/air comme un processus de transfert de masse de premier ordre. L'équilibre entre la phase eau infiltrée et l'air peut ne pas être atteint en cas de pluies intenses avec de fortes vitesses d'infiltration (CHO et JAFFÉ, 1990; CHO *et al.*, 1993), ou en cas de front d'infiltration non uniforme (IMHOFF et JAFFÉ, 1994).

Le besoin d'études expérimentales sur des sites réels a été souligné par plusieurs auteurs (FALTA *et al.*, 1989; KLENK et GRATHWOHL, 2002; MENDOZA et McALARY, 1990; SLEEP et SYKES, 1989; THOMSON *et al.*, 1997) afin d'évaluer le risque de contamination de la nappe à partir des vapeurs de COV et de valider les modèles numériques de transport développés à cet effet. Dans ce cadre, l'Institut Franco-Allemand de Recherche sur l'Environnement (IFARE) piloté par l'Institut de Mécanique des Fluides et des Solides

de Strasbourg a mis en œuvre une plate forme expérimentale baptisée SCERES (Site Contrôlé Expérimental de Recherche pour la réhabilitation des Eaux et des Sols). Ce site expérimental est constitué d'un bassin enterré construit en béton armé de dimensions 25 x 12 x 3 m, reconstituant un aquifère alluvial. Ce bassin expérimental offre la possibilité de permettre des acquisitions de données en situation quasi réelle, à une échelle intermédiaire entre le laboratoire et le site réel. Il permet en outre de rendre compte du rôle de la frange capillaire dans les phénomènes de transfert, ce qui est difficilement possible sur des systèmes réduits de laboratoire ou dans les investigations sur site réel. Cet aspect est d'une importance capitale du fait que dans cette zone de transition, la teneur en eau varie avec la profondeur, ce qui cause des changements dans la vitesse d'écoulement horizontal affectant ainsi l'intensité du flux de pollution de la zone non saturée vers la nappe.

L'étude présentée se propose, d'une part, de quantifier de façon expérimentale le flux de pollution partant de la zone non saturée vers la nappe. Deux configurations de transfert sont envisagées : dispersion passive des vapeurs et lessivage du panache des vapeurs par une pluie contrôlée. D'autre part, les principaux mécanismes gouvernant ces transferts sont déterminés. Dans les deux cas, le couplage des mesures de teneurs en polluants effectuées dans la zone non saturée, dans la frange capillaire et dans la nappe de SCERES, permet de prendre en compte l'ensemble des mécanismes intervenants au moins à proximité de la zone source, et cela à une échelle proche d'un problème de pollution réelle.

2. MATÉRIELS ET MÉTHODES

2.1 Le bassin SCERES

Les expériences ont été réalisées sur la plate-forme expérimentale SCERES dont la description est indiquée sur la figure 1. Dans sa configuration actuelle, il est rempli d'un système bicouche : un milieu principal essentiellement constitué de sable de quartz (conductivité hydraulique $K=8 \times 10^{-4}$ m/s, diamètre moyen de 0,45 mm, porosité totale de 40 %, teneur en carbone organique de 0,09 %, surface spécifique de 0,5 m²/g, coefficient d'uniformité égal à 2,1) qui repose sur une couche plus perméable ($K=6 \times 10^{-3}$ m/s, diamètre moyen de 1 mm) assurant un drainage du fond. Les milieux poreux ont été introduits dans le bassin par couches successives de 25 cm d'épaisseur et après imbibition, ils ont été compactés à l'aide d'une plaque vibrante (densité moyenne de 1,56 après mesures par gamma-densimétrie). L'outil SCERES est muni aux extrémités, à 50 cm des parois transversales, de deux grilles verticales en acier inoxydable délimitant les compartiments amont et aval remplis de galets et dans lesquels les niveaux d'eau de référence peuvent être régulés et contrôlés.

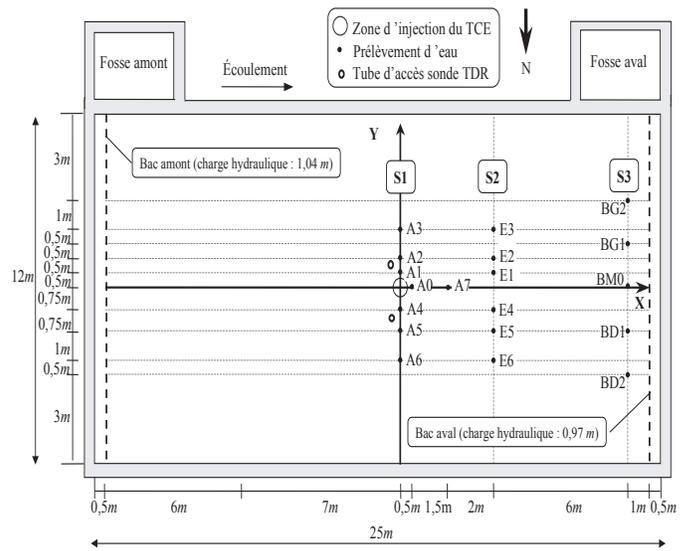


Figure 1 Vue en plan de la localisation des points de prélèvement d'eau dans SCERES
Plan location of water sampling points in SCERES

Des équipements adaptés (déversoirs, pompes, cuves, prises d'échantillons d'eau, piézomètres, etc.) sont installés dans deux fosses techniques jouxtant la structure, et permettent le réglage du gradient hydraulique ainsi que la gestion des expériences.

Le gradient hydraulique de la nappe est fixé à 0,3 %, ce qui correspond à un débit total en sortie de 0,5 m³/h et une vitesse moyenne d'écoulement dans la nappe de 0,4 m/j. L'épaisseur moyenne de la zone non saturée est de 1,75 m, ce qui permet d'assurer le suivi de la propagation des vapeurs dans cette zone. Le toit de la nappe est situé à 2 m de profondeur; la frange capillaire et la zone saturée s'étendent respectivement sur une épaisseur de 0,25 m et 1 m. La grandeur de la frange capillaire et l'épaisseur de la nappe sont déduites des mesures de profil hydrique par explorations de sonde TDR (*Time Domain Reflectometry*).

2.2 Conditions expérimentales

Le polluant choisi est le trichloroéthylène (TCE) technique de marque PHEBUS dont l'indice de pureté est de 99 %, solvant chloré très souvent rencontré dans les cas de pollution sur sites réels. Ses principales caractéristiques physico-chimiques sont données du tableau 1. Étant donné sa forte volatilité, l'injection du TCE a été réalisée sous eau grâce à un dispositif spécifique conçu pour empêcher les pertes par volatilisation lors de la mise en place de la source et assurer une répartition uniforme dans le milieu souterrain. Ce dispositif est constitué d'un réservoir en inox de diamètre 58 cm alimentant 31 tubes de diamètre 8 mm et de longueur 50 cm muni chacun à leur extrémité de quatre trous de diamètre 0,2 mm permettant la sortie du TCE sous forme de jets (JELLALI, 2000; JELLALI *et al.*, 2001).

Tableau 1 Principales propriétés physico-chimiques du TCE à 20 °C ((dans COHEN et MERCER, 1993), (*) valeur obtenue à l'IMFS/IFARE)

Table 1 Main properties of TCE at 20°C (from COHEN and MERCER, 1993), (*) obtained at IMFS/IFARE)

Masse moléculaire (g/mole)	131,39
Densité (g/mL)	1,46
Viscosité absolue (cp)	0,57
Solubilité dans l'eau (mg/L)	1280 (*)
Pression de vapeur (kPa)	7,71
Constante de Henry	0,299
Densité de vapeur (g/L)	5,46
Densité de mélange gaz-vapeur (g/L)	1,52
Coefficient de diffusion aqueux (cm ² /s)	8,3 × 10 ⁻⁶
Coefficient de diffusion gazeux (cm ² /s)	8,11 × 10 ⁻²

L'injection de la source de pollution a été effectuée à 0,35 m de profondeur sur une aire de 58 cm de diamètre. La source se limite à la zone non saturée et est située à 11 m du bac aval du bassin et à 6 m de part et d'autre des parois latérales (Figure 1). Dans la première expérience réalisée en été (juillet-septembre), le volume déversé était de 5 litres. Dans la deuxième expérience, réalisée en automne (octobre-décembre), le volume injecté était de 3 litres afin de garantir une distance plus grande entre la source et le toit de la nappe. Ces volumes ont été déterminés sur la base d'essais préliminaires de détermination de saturations résiduelles en laboratoire réalisés sur des colonnes de milieux poreux (JELLALI, 2000), de façon à ce que la source de pollution soit limitée à la zone non saturée.

La pluie contrôlée appliquée dans l'expérience 2 provient de l'eau du réseau, et a été réalisée 10 jours après le déversement du TCE en utilisant deux arroseurs placés à 1 m de part et d'autre du foyer de pollution et dans le sens transversal à l'écoulement. L'objectif visé dans ce cas est d'apporter des flux d'eau verticaux dans la zone non saturée où l'extension du domaine fortement concentré en vapeurs a été estimée lors des précédents déversements à environ 2 m de rayon (JELLALI *et al.*, 2001; JELLALI *et al.*, 2003). Le suivi des quantités d'eau tombées pendant une durée de 6,5 heures sur le bassin a été effectué au moyen de plusieurs pluviomètres placés à différentes distances du corps d'imprégnation dans l'axe de l'écoulement et dans la direction transversale. Quatre zones de répartition de la pluie appliquée ont été distinguées. Dans la zone 1, la hauteur moyenne d'eau tombée (sur un rayon de 2 m) est de l'ordre de 68 mm, alors que dans la zone 4, la plus éloignée (entre 4 et 5 m par rapport au centre de la pollution), nous avons enregistré une hauteur d'eau diminuée de moitié (Tableau 2).

Tableau 2 Zones de répartition de la pluie appliquée sur SCERES
Table 2 Distribution area of controlled rain applied to SCERES

Zone	1	2	3	4
Limites de zone (rayon en m)	0-2	2-3	3-4	4-5
Points de gaz concernés	G7, G8, G9 et G1	G2	G3	G4
Hauteur d'eau moyenne (mm)	68	53	45	34

2.3 Suivi des prélèvements

Pour les deux expériences, la pollution a été suivie dans la zone non saturée, dans la frange capillaire et dans la nappe (Figure 2). Un réseau de capteurs placés selon trois sections S1, S2 et S3 perpendiculaires à l'écoulement et situées respectivement à 0, 4 et 10 m en aval du centre du corps d'imprégnation permet d'effectuer les prélèvements à deux profondeurs (2,05 et 2,15 m) dans la nappe (Figure 1). Des échantillons d'eau sont également prélevés en section S1 dans la frange capillaire à l'aide de bougies poreuses constituées d'un mélange de téflon et de quartz inertes aux produits organiques dissous, et installées à 1,85 et 1,95 m de profondeur où une dépression de l'ordre de 500 mbar est appliquée à l'aide d'une pompe à vide (Figure 2). Les concentrations de traces dissoutes de TCE sont déterminées par chromatographie en phase gazeuse (CPG-FID, Chrompack[®]) après extraction liquide-liquide. En zone non saturée, l'extension du panache de pollution par les vapeurs est contrôlée grâce à un réseau

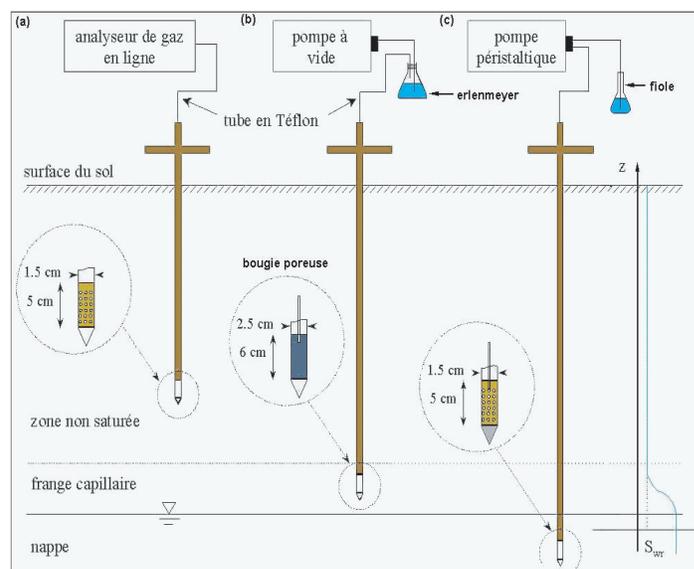


Figure 2 Schéma descriptif des différents types de prélèvement dans SCERES
Schematic description of the water and gas sampling devices implemented in SCERES

de cannes-gaz installées à plusieurs distances (0,75; 1,5; 2,5; 3,5; 4,5; 5,5 et 6,5 m) en aval de la source de pollution et dans la direction transversale à l'écoulement (Figure 3). De plus, dans le but d'avoir une information précise sur les profils de concentrations des vapeurs de TCE, chaque point de prélèvement de gaz (G_i , $i = 1$ à 12, voir Figure 3) nous permet de mesurer les concentrations en TCE aux profondeurs 0,25; 0,5; 1; 1,3 et 1,7 m. La quantification des teneurs en vapeurs est réalisée grâce à un analyseur multigaz (Innova 1312[®]) à détection spectrophotoacoustique infrarouge.

L'humidité du sol a été suivie depuis la surface du sol jusqu'à la nappe grâce à des mesures par sonde TDR (Imko[®]) pouvant être installée dans deux tubes d'accès (Figure 1). Le profil de température dans le sous-sol a été obtenu à l'aide de thermocouples localisés à des profondeurs de 0,2; 0,5; 0,8; 1,1; 1,4 et 1,7 m.

2.4 Quantification du transfert de masse de la zone non saturée vers la nappe

Cas de la dispersion passive

Une méthode semi-expérimentale a été utilisée pour déterminer le transfert de masse par dispersion passive de la zone non saturée vers la nappe via la frange capillaire (JELLALI *et al.*, 2003). Par analogie à la dissolution de plaques de COV (JOHNSON et PANKOW, 1992), nous exprimons le flux diffusif et dispersif de vapeurs partant de la zone non saturée vers la nappe en se fondant sur l'approche analytique proposée par GRATHWOHL (1998) à laquelle nous incorporons les paramètres dus à la frange capillaire :

$$F_{\text{diff/disp}} = 2 C_{\text{FC}} L_k B_k \eta \sqrt{\frac{D_p}{\pi t_c}} \quad (1)$$

avec C_{FC} la concentration dans la phase aqueuse en haut de la frange capillaire. Elle est calculée à partir de la concentration en vapeurs de TCE en supposant l'équilibre entre la phase liquide et la phase gazeuse, η étant la porosité totale.

L_k et B_k désignent respectivement la longueur (parallèle à l'écoulement) et la largeur (perpendiculaire à l'écoulement) de la zone contaminée par les vapeurs.

$$t_c \text{ est le temps de contact} = \frac{L_k}{u} \quad (2)$$

D_p est le coefficient de diffusion – dispersion, il est donné par la formule suivante :

$$D_p = D_{\text{eff}} + \alpha_T u \quad (3)$$

où α_T et u sont respectivement la dispersivité transversale et la vitesse de la nappe, D_{eff} étant le coefficient de diffusion aqueuse du TCE.

Dans notre cas, pour tenir compte de la vitesse horizontale de l'eau dans la frange capillaire, nous remplaçons la vitesse u par une vitesse moyenne dans la frange capillaire u_{FC} (voir § 3.4).

Cas du lessivage par la pluie

Le flux massique partant de la zone non saturée vers la nappe, causé par la pluie, est égal au produit de la vitesse d'infiltration par la concentration relevée en haut de la frange capillaire. La vitesse d'infiltration est calculée au moyen du code de calcul HYDRUS (version 2.0, 1998) qui permet de simuler l'écoulement monodimensionnel en zone non saturée. En plus des propriétés du sol et des conditions de précipitations, ce logiciel nécessite la connaissance des paramètres de calage du modèle de Van Genuchten (cf. § 3.4).

3. RÉSULTATS ET DISCUSSIONS

3.1 Domaine des vapeurs de TCE

La distribution des vapeurs de TCE dans la zone non saturée dépend du profil de température dans le sous-sol. La température moyenne relevée à 1,7 m de profondeur est respectivement 17,1 et 14,4 °C pour les expériences 1 et 2. À une distance de 0,75 m du centre du corps d'impregnation, les concentrations maximales observées sont de l'ordre de 60 000 ppmv pour l'expérience 1 et de 39 000 ppmv pour l'expérience 2 (Figure 4). L'extension du panache de pollution

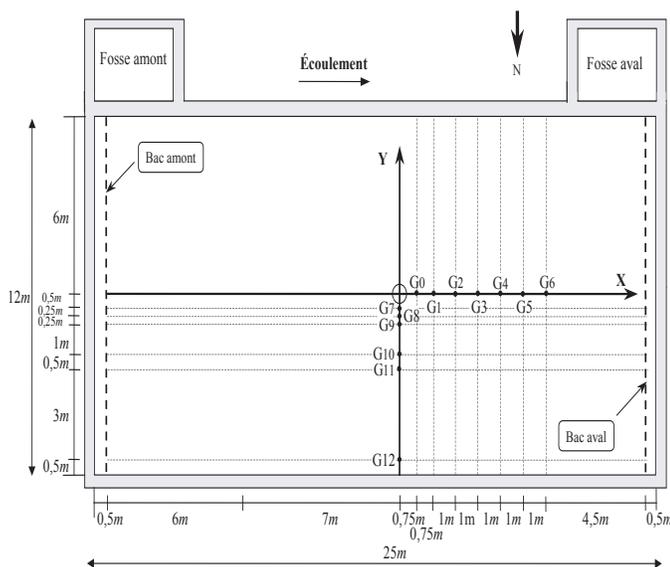


Figure 3 Vue en plan de la localisation des points de prélèvement de gaz dans SCERES
Plan location of gas sampling points in SCERES

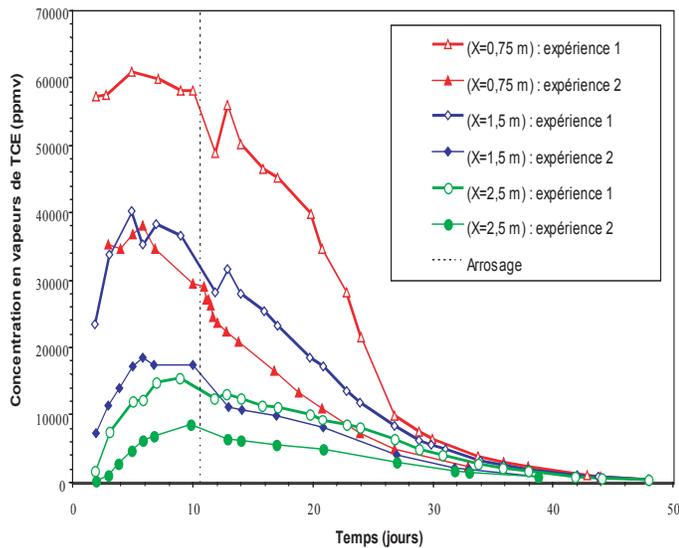


Figure 4 Concentrations en gaz mesurées à 1,7 m de profondeur
Measured TCE vapor concentrations at a depth of 1.7 m

par les vapeurs est respectivement de l'ordre de 6 m pour l'expérience 1 et 5 m pour l'expérience 2 avec une distribution assez symétrique et une augmentation des concentrations en vapeurs de TCE avec la profondeur. À titre d'exemple, pour l'expérience 1, les concentrations à une profondeur de 1,7 m sont neuf fois plus élevées que celles observées à une profondeur de 0,25 m. Ce phénomène est dû à la densité du mélange de vapeur de TCE avec l'air (FALTA *et al.*, 1989; JOHNSON *et al.*, 1992) qui provoque un fort gradient de concentrations et contribue à favoriser les fuites vers l'atmosphère (JELLALI *et al.*, 2001; JELLALI *et al.*, 2003).

3.2 Rôle de la frange capillaire dans le transfert de masse

Les saturations moyennes en eau relevées à 1,85 et 1,95 m de profondeur dans la frange capillaire sont respectivement de 57 % et de 90 %. Les figures 5 et 6 donnent les profils de concentrations aqueuses du TCE en zone non saturée (profondeurs 1,3 et 1,7 m), dans la frange capillaire (1,85 et 1,95 m) et dans la nappe (2,05 et 2,15 m) au point de prélèvement A2. Les concentrations ont été normalisées par rapport à la solubilité du TCE que nous avons déterminée au laboratoire à 1 280 mg/L à 20 °C. Par ailleurs, les concentrations aqueuses en zone non saturée sont déterminées à partir des résultats de mesures de concentrations en vapeurs dans cette zone en supposant l'équilibre instantané entre les phases air et eau, et en se basant sur la loi de Henry.

Pour l'expérience 1, au point de prélèvement A2, la concentration maximale à une profondeur de 1,85 m a été observée neuf jours après la mise en place de la source; elle représente 75 % de la concentration relevée à 1,7 m de profondeur (Figure 5). Un fort gradient de concentration est noté à travers la frange capillaire où la concentration en

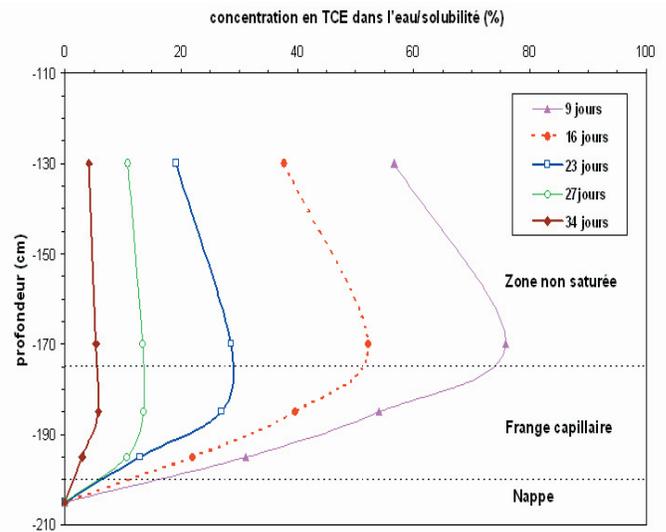


Figure 5 Concentrations en TCE relevées au point A2 ($X = 0$ m; $Y = 1$ m) dans l'expérience 1
Dissolved TCE concentrations at sampling point A2 ($X = 0$ m; $Y = 1$ m) for experiment 1

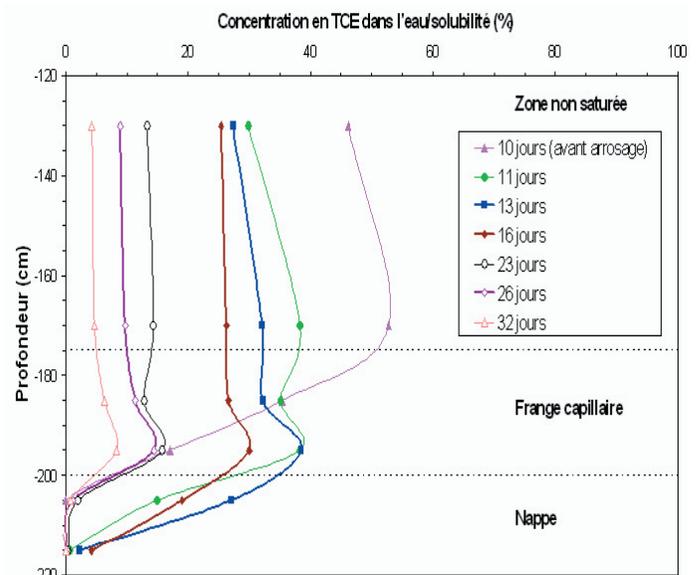


Figure 6 Concentrations en TCE relevées au point A2 ($X = 0$ m; $Y = 1$ m) dans l'expérience 2
Dissolved TCE concentrations at sampling point A2 ($X = 0$ m; $Y = 1$ m) for experiment 2

TCE relevée à 1,95 m de profondeur représente 40 % de la concentration observée 25 cm plus haut à 1,7 m. Ce fort gradient est dû essentiellement à la lenteur du processus de diffusion dans la phase aqueuse, surtout dans la partie basse de la frange capillaire. En effet, le coefficient de diffusion du TCE dans la phase aqueuse est 104 fois plus faible que celui dans la phase gazeuse (Tableau 1). Cet effet de barrière joué par la frange capillaire contre la propagation de la pollution vers la nappe est confirmé par le fait que tous les points de

prélèvements de la première section dans la nappe indiquent l'absence de contamination (teneurs inférieures au seuil de détection).

Pour l'expérience 2, les concentrations en TCE en haut de la frange capillaire sont systématiquement plus faibles que celles observées dans l'expérience 1. À titre d'exemple, au point A2, la concentration maximale observée est de l'ordre de 55 % de la solubilité en TCE (Figure 6), alors que pour l'expérience 1, elle est de 75 %. Ceci est principalement dû à la différence de profils de température et à la quantité initialement injectée qui est plus importante dans l'expérience 1 (voir § 2.2 et 3.1). Avant l'effet de la pluie, la frange capillaire joue à nouveau son rôle de frein dans le transport de la pollution vers la nappe du fait du fort gradient de concentration observé. Juste après la pluie, une augmentation significative des concentrations en TCE dans la frange capillaire a été observée. Ceci a été accompagné par une forte baisse de concentrations en gaz au-dessus de la frange capillaire (Figure 6). D'un autre côté, il apparaît que la vitesse d'infiltration du front d'eau est assez rapide puisqu'une forte amplification des concentrations a été enregistrée aux profondeurs de 1,85 et 1,95 m au bout de 1,4 jours après la pluie. Au point A2, par exemple, la concentration à 1,95 m est passée de 200 à 500 mg/L après le passage de la pluie (Figure 6). Les concentrations à 1,85 m sont restées quasi stables du fait que, dans cette zone moyennement saturée en eau, un équilibre entre les deux phases serait atteint. Les concentrations à 1,85 m sont légèrement plus faibles que celles observées à 1,95 m. Il se peut qu'à la profondeur de 1,85 m, il y ait eu un transfert de masse de l'eau chargée en TCE vers le gaz fortement appauvri en vapeurs lors du passage du front. Il est à noter également que, sur tous les points de mesure, les concentrations relevées à 1,95 m de profondeur sont plus élevées par rapport à celles observées pour l'expérience 1 (Figures 5 et 6). Cette situation signifie qu'après le passage du front d'eau vertical, la masse de TCE qui va passer dans la nappe par dispersion passive sera plus conséquente. En effet, les conditions de transfert de masse vers la nappe sont cette fois-ci plus favorables que celles de l'expérience 1 puisque la partie inférieure de la frange capillaire est fortement polluée en TCE dissous.

3.3 Extension de la pollution de la nappe

Dans la section de mesure S1, pour l'expérience 1, aucune trace de pollution de la nappe n'a été détectée sur les points de prélèvements situés à 0,05 m en dessous du toit de la nappe. Par contre, pour l'expérience 2, la pluie a engendré une pollution sérieuse de la nappe (Figure 6, point A2) où les concentrations maximales ont été enregistrées à la profondeur 2,05 m, trois jours après la pluie. À titre d'exemple, pour le point de prélèvement A2, la concentration mesurée dans la nappe à cette profondeur était de 240 mg/L, ce qui correspond à environ 20 % de la solubilité du TCE. L'extension latérale au niveau de cette section se chiffre entre 2 et 2,5 m, ce qui correspond aux

dimensions de la zone assez fortement concentrée en vapeurs de TCE. Pour l'expérience 1, au niveau de la section S2 située à 4 m en aval de la source de pollution et à la profondeur 2,05 m, des concentrations assez fortes ont été mesurées. Elles varient entre 5 et 95 mg/L selon le positionnement du point de prélèvement (Figure 7). Aucune trace de pollution n'a pu être détectée à une profondeur de 2,15 m. L'apparition de la pollution à la section S2 est principalement due au flux dispersif (dispersion passive) partant de la frange capillaire vers la nappe. Au niveau de cette section, ce phénomène est favorisé par le temps de contact entre les traces dissoutes de TCE contenues dans la partie basse de la frange capillaire et l'eau de la nappe. Pour une vitesse moyenne d'écoulement de la nappe de 0,4 m/j, ce temps est estimé à environ 20 jours. L'analyse des échantillons d'eau prélevés au niveau de la dernière section S3 située à 10 m à l'aval de la source montre clairement qu'il y a eu une pollution provenant des vapeurs (Figure 8). Les concentrations maximales observées sont de l'ordre de 15 mg/L à 1,5 m de part et d'autre de l'axe central de l'écoulement et de 4 mg/L à une distance latérale de 3 m. Ceci confirme l'effet de la dispersivité transversale sur le transport de la pollution vers la nappe.

Pour l'expérience 2, les concentrations mesurées au niveau de la section S2 indiquent une pollution significative de la nappe où la largeur du domaine contaminé dépasse 2,5 m et les pics de concentrations atteignent des valeurs très élevées par rapport à celles de l'expérience 1 (Figure 7). L'extension verticale de la pollution dépasse 0,2 m d'épaisseur, et la pollution provoquée par l'infiltration de flux verticaux d'eaux a été observée pendant plus de 70 jours (Figure 8). Cette situation

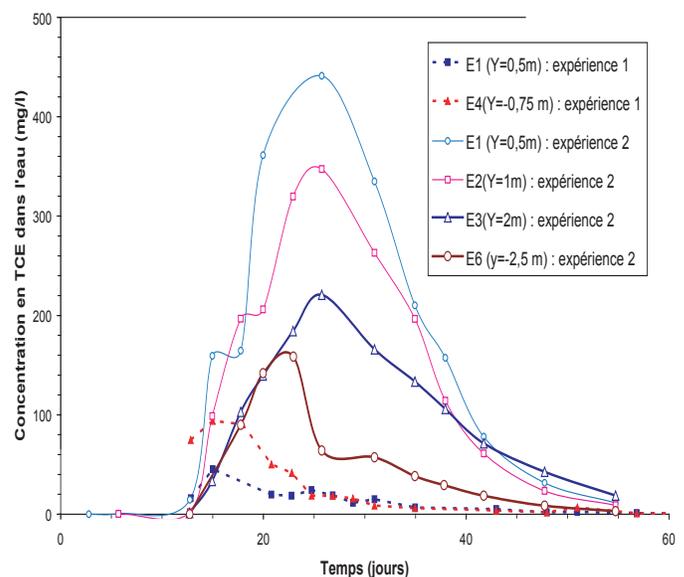


Figure 7 Concentrations en TCE relevées au niveau de la section S2 à la profondeur de 2,05 m dans la nappe
Dissolved TCE concentration monitored at section S2 at a depth of 2.05 m in groundwater

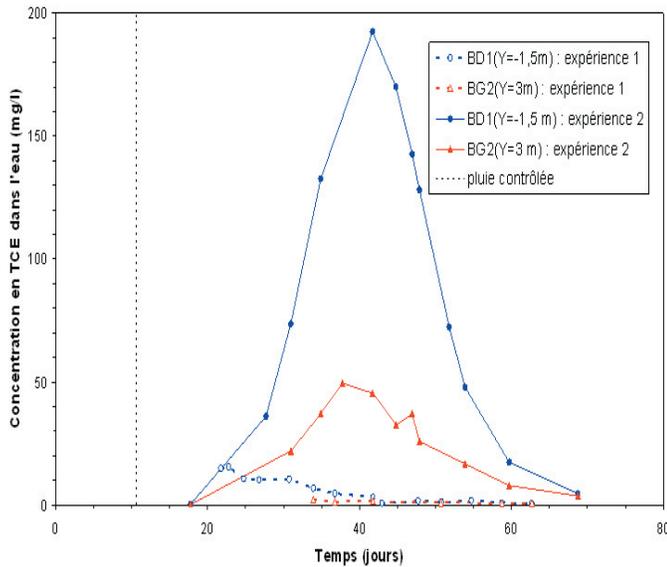


Figure 8 Concentrations en TCE relevées au niveau de la section S3 à la profondeur de 2,05 m dans la nappe
Dissolved TCE concentrations monitored at section S3 at a depth of 2.05 m in groundwater

est également observée au niveau de la section S3 où l’extension latérale mesurée est de plus de 3 m, avec des concentrations mesurées de l’ordre de 190 mg/L au point latéral BD1 et de 40 mg/L au point latéral BG2 qui sont distants respectivement de 1,5 m et 3 m de l’axe central de l’écoulement (Figure 8). La forte diminution de concentrations observée entre les sections de mesure S2 et S3 ne peut pas s’expliquer uniquement par un effet dispersif du milieu, mais également par une évaporation des traces dissoutes de la nappe vers la zone non saturée.

3.4 Quantification du transfert de masse de la zone non saturée vers la nappe

Expérience 1

La méthode théorique utilisée pour la détermination du flux de TCE passant dans la nappe se fonde sur l’application de la solution semi-expérimentale donnée par JOHNSON et PANKOW (1992) (cf. § 2.4). Vu la difficulté pour estimer les dimensions caractéristiques (L_k et B_k) du domaine contaminé par les vapeurs (variation en fonction de l’espace), nous avons déterminé le flux transféré vers la nappe en l’appliquant d’abord à un élément de surface (dS) (Figure 9), et ce flux est ensuite intégré sur la totalité du domaine (JELLALI, 2000; JELLALI *et al.* 2003).

Ainsi le flux total passant à travers tout le domaine de rayon R et à une concentration équivalente C_{FC} est :

$$\phi = 2\sqrt{2} N C_{FC} \int_0^R (R^2 - B_k^2)^{1/4} d(B_k) = 2\sqrt{2} N C_{FC} I_R \quad (4)$$

avec $N = 2 \eta \sqrt{\frac{D_p u}{\pi}}$ et I_R est une intégrale fonction du domaine contaminé de rayon R .

Pour le calcul du flux total passant dans la nappe, nous avons distingué 8 zones (Figure 9). À chacune de ces zones, nous avons attribué la concentration mesurée au point G_i . Ainsi, le flux total passant dans la nappe à une date donnée est :

$$\begin{aligned} \phi_{tot} = 2\sqrt{2} N [& C_{FC}^{G_5} I_{6m} + (C_{FC}^{G_4} - C_{FC}^{G_5}) I_{5m} + (C_{FC}^{G_3} - C_{FC}^{G_4}) I_{4m} + \\ & (C_{FC}^{G_2} - C_{FC}^{G_3}) I_{3m} + (C_{FC}^{G_1} - C_{FC}^{G_2}) I_{2m} + \\ & (C_{FC}^{G_9} - C_{FC}^{G_1}) I_{1,25m} + (C_{FC}^{G_8} - C_{FC}^{G_9}) I_{0,875m} + \\ & (C_{FC}^{G_7} - C_{FC}^{G_8}) I_{0,625m}] \end{aligned}$$

où $C_{FC}^{G_i}$ est la concentration au niveau de la fringe capillaire relevée au point G_i .

Dans la fringe capillaire, la variation de la teneur en eau selon la profondeur implique une modification de la perméabilité relative et, par conséquent, de la vitesse de l’eau. Dans la partie supérieure de la fringe capillaire, la vitesse peut être négligée, par contre, dans la partie inférieure, la quasi-totalité des pores sont saturés en eau et par conséquent l’eau se déplace à une vitesse équivalente à celle de la nappe. Pour le cas de SCERES, le calage de la courbe de la pression capillaire (fonction de la saturation en eau) sur la fonction de VAN GENUCHTEN (1980) donne des valeurs des paramètres de Van Genuchten α et η égaux à $9,7 \times 10^{-4} Pa^{-1}$ et 2,42 respectivement. L’utilisation

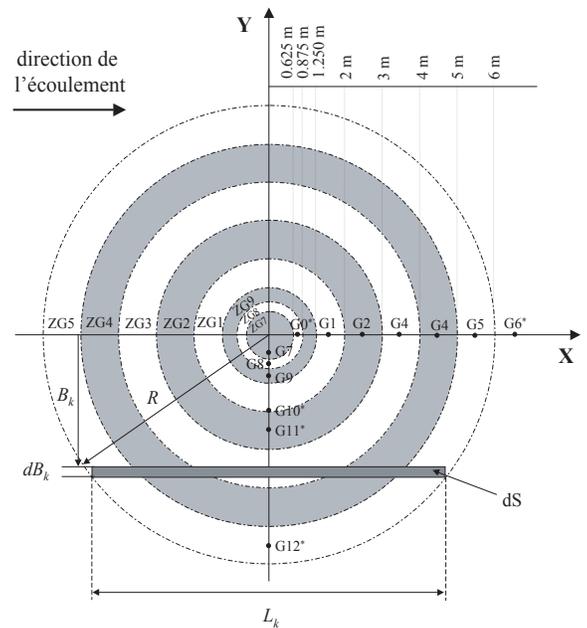


Figure 9 Schéma de la méthode utilisée pour la détermination de l’élément de flux de TCE
Schematic description of the domain used to determine the TCE flux in the theoretical approach

de la loi de Darcy et l'application de la courbe de perméabilité relative dans le modèle de Mualem-Van Genuchten nous ont permis d'établir un profil de vitesse dans la frange capillaire (PARKER *et al.*, 1987). L'exploitation de ce profil donne une valeur de vitesse moyenne de 0,1 m/j dans la frange capillaire.

Expérimentalement, la masse totale de TCE récupérée à la sortie du modèle a été déterminée à 283 g avec un flux maximum de 14 g/j. En supposant que le transfert de masse vers la nappe s'effectue seulement par diffusion moléculaire pure, l'application de la méthode théorique de JOHNSON et PANKOW (1992) donne une masse totale de 122 g, ce qui représente 40 % de la quantité expérimentalement mesurée avec un flux maximum de l'ordre de 5 g/j. Ceci prouve que le transfert de masse de la zone non saturée vers la nappe n'est pas seulement régi par la diffusion moléculaire mais également par la dispersion verticale. La valeur de la dispersivité verticale optimale donnant le moins d'écart par rapport à la courbe expérimentale est de 0,43 mm (Figure 10). Pour cette dispersivité, la masse totale passant dans la nappe à partir de tout le domaine contaminé est de 256 g, soit moins de 10 % d'écart avec la masse totale expérimentale. Le flux maximum correspondant qui vaut 11 g/j est proche de celui obtenu expérimentalement. Il est à remarquer que la valeur de la dispersivité obtenue par calage est ici du même ordre de grandeur que le diamètre moyen du milieu poreux principal dans SCERES.

Notons également que, malgré la faible part transférée vers la nappe (moins de 4 % de la quantité initialement déversée), elle peut provoquer une pollution significative de la nappe, vu les faibles seuils de potabilité de l'eau de boisson (d'après la

directive européenne 98/83/CE, la concentration maximale admissible pour la somme du TCE et du Perchloréthylène (PCE) est de 10 µg/L).

Expérience 2

L'évolution de la saturation en eau montre que le front d'eau s'est infiltré très rapidement et atteint la frange capillaire après une durée de l'ordre de 15 à 22 heures (Figure 11). Dans le but de déterminer les champs de vitesses au niveau de la section située à 1,7 m de profondeur pour les différentes zones explorées (Tableau 2), la comparaison des profils hydriques mesurés avec ceux simulés à l'aide du code de calcul HYDRUS indique une assez bonne concordance (Figure 11).

L'évolution spatio-temporelle des vitesses calculées par le code de calcul est donnée à la figure 12, et ceci pour les

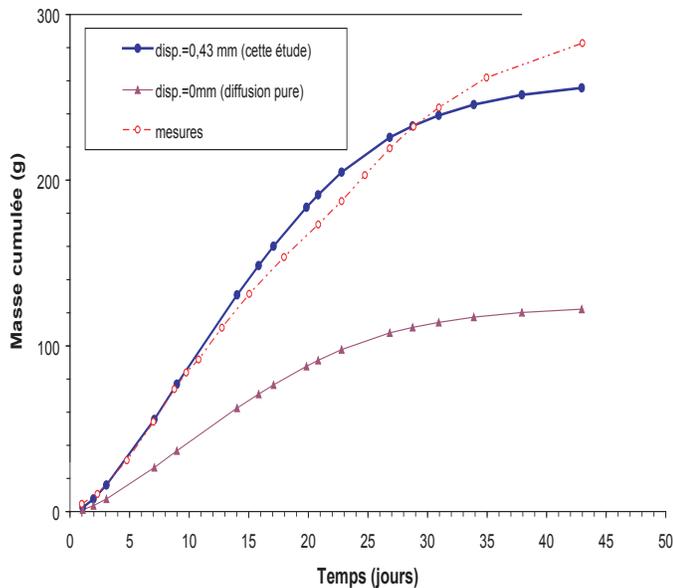


Figure 10 Masse cumulée de TCE transféré vers la nappe dans l'expérience 1
Cumulated mass of TCE transferred to groundwater for experiment 1

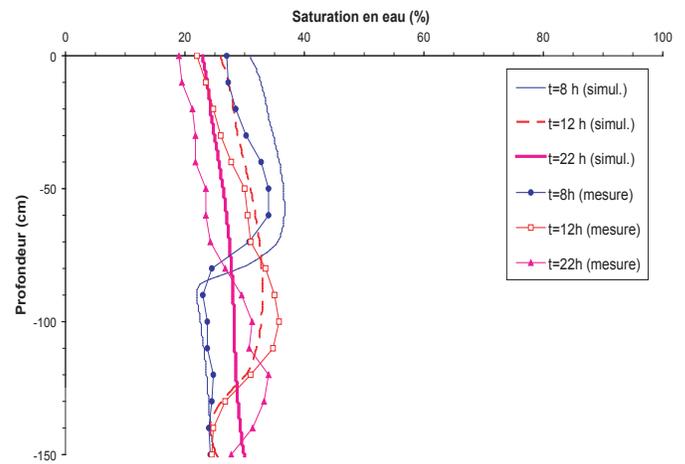


Figure 11 Profils de saturations en eau simulés et mesurés après l'infiltration de pluie dans l'expérience 2
Measured and simulated water saturation profiles after rain infiltration in experiment 2

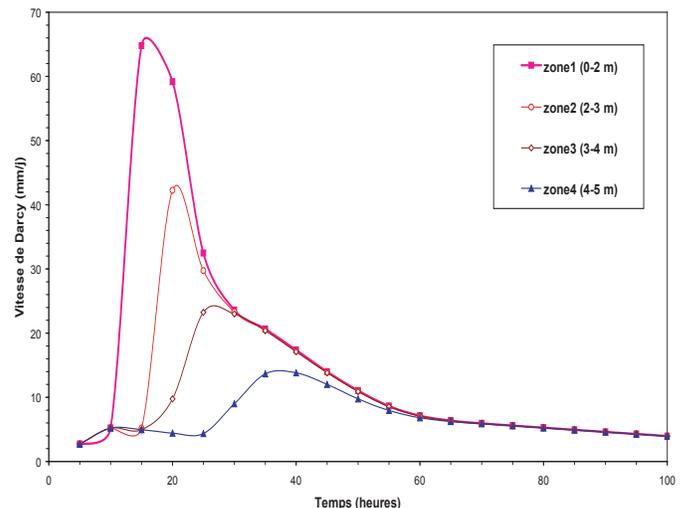


Figure 12 Évolution spatio-temporelle des champs de vitesses simulées par le code HYDRUS à 1,7 m de profondeur dans l'expérience 2
Water velocity infiltration calculated by HYDRUS at a depth of 1.7 m for experiment 2

différentes zones de répartition uniforme de la pluie appliquée sur SCERES. L'effet de l'intensité d'arrosage se répercute à la fois sur la vitesse de Darcy et le temps d'arrivée du front d'eau à la profondeur de 1,7 m. À titre d'exemple, la vitesse maximale au niveau de la zone 1 (0-2 m) est de l'ordre de 65 mm/j et est atteinte entre 10 et 15 heures. Cependant dans la zone 4 (4-5 m), la valeur maximale de l'ordre de 1 mm/j est observée après 35 heures (Figure 12). Après ces pics de vitesses, une phase de ressuyage assez lente se met en place avec une vitesse moyenne de l'ordre de 5 mm/j.

Le flux et la masse de TCE passant dans la nappe à partir de la zone non saturée ont été calculés pour les différentes zones distinguées sur SCERES (cf. Tableau 2) pendant une durée de l'ordre de quatre jours. Le flux est considéré comme étant le produit des vitesses déterminées à l'aide d'HYDRUS à la profondeur de 1,7 m par la concentration équivalente en TCE dans la phase aqueuse, en supposant l'équilibre entre les phases aqueuse et gazeuse. Le flux maximum occasionné par le passage du front d'eau de pluie calculé par l'intégration sur les quatre zones de SCERES est de l'ordre de 600 g/j. Il a été observé après une durée de 20 heures correspondant à une masse totale passant dans la nappe de l'ordre de 680 g (Figure 13) et qui représente 66 % de la quantité totale existante dans SCERES sous forme vapeur avant l'application de la pluie. Ce flux et cette masse correspondent à l'unique effet de la pluie puisqu'ils ont été déterminés pendant une durée proche de quatre jours (100 heures, Figure 13) alors que l'expérience a duré plus de deux mois (Figure 8). La masse calculée représente donc seulement 60 % de la quantité totale récupérée à la sortie du bassin au niveau du déversoir aval. Cette différence est

supposée provenir du ressuyage par la pluie, mais surtout d'une dispersion passive dans la nappe à partir de la frange capillaire. Ce dernier phénomène, démontré dans l'expérience 1, peut avoir un impact significatif sur la nappe. Dans l'expérience 2, ce phénomène doit être encore plus important du fait de la présence de fortes concentrations à une profondeur de 1,95 m occasionnées par le lessivage des vapeurs de la zone non saturée suite à l'infiltration de la pluie.

La masse récupérée à la sortie du bassin est de l'ordre de 27 % de la quantité de TCE initialement déversée dans le bassin, ce qui prouve qu'après le passage de l'événement pluvieux, le processus dominant est le transfert de masse de la zone non saturée vers l'atmosphère.

4. CONCLUSION

Les deux expériences réalisées dans des conditions contrôlées sur la plate-forme expérimentale SCERES, ont permis d'acquérir des données sur le transfert de masse du TCE depuis la zone non saturée vers la nappe. Le rôle de la frange capillaire a été pris en compte en cas de dispersion passive des vapeurs du polluant en zone non saturée (expérience 1), ou en cas de lessivage des vapeurs par les eaux de pluie (expérience 2).

Les résultats des deux expériences mettent en évidence l'influence de la température sur l'intensité et l'extension du domaine contaminé par les vapeurs. Une température plus importante se traduit par une volatilisation plus rapide de la source et des concentrations plus élevées impliquant une étendue plus conséquente. Par ailleurs, le phénomène d'advection et les fuites vers l'atmosphère influencent la répartition en profondeur des teneurs en vapeurs de TCE dans la zone non saturée de SCERES où les concentrations au-dessus de la frange capillaire sont nettement plus élevées que celles observées juste en-dessous de la surface du sol.

Dans le cas d'une dispersion passive des vapeurs, la quantité de TCE transférée vers la nappe est de l'ordre de 4 % de la quantité initialement mise en place avec un flux maximum de l'ordre de 14 g/j. La frange capillaire joue le rôle d'écran contre le transport de la pollution vers la nappe. Si, dans la partie supérieure de cette zone de transition, de fortes concentrations dues au partage entre les phases gazeuse et aqueuse sont observées dans l'eau, dans la partie inférieure quasiment saturée en eau, le transport de la pollution dans la nappe est très ralenti à cause de la lenteur du processus de diffusion. Il a été mis en évidence une contamination significative de la nappe malgré la difficulté de passage à travers la frange capillaire. L'application de la méthode analytique de JOHNSON et PANKOW (1992) montre que ce transfert de masse est non seulement régi par le phénomène de diffusion mais également par la dispersion verticale.

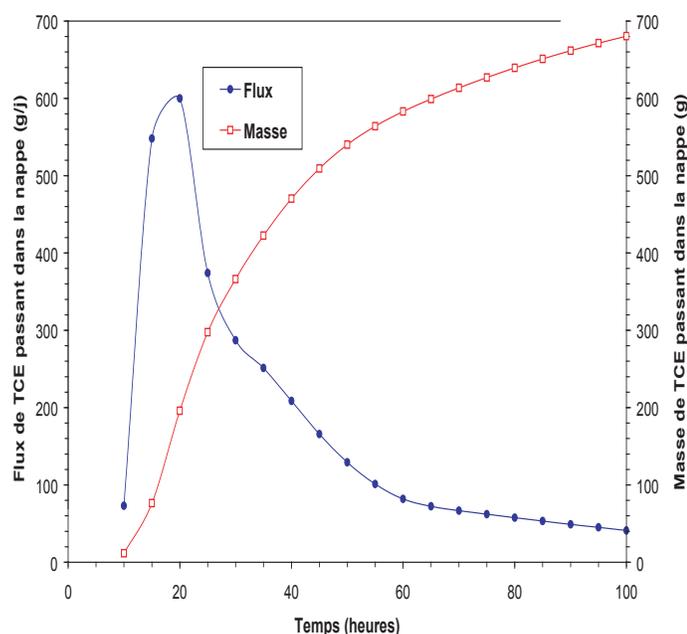


Figure 13 Flux journalier et masse cumulée de TCE transféré vers la nappe dans l'expérience 2
Cumulated mass and flux of TCE transferred to groundwater in experiment 2

Le lessivage des vapeurs par les flux d'eau verticaux a provoqué une pollution beaucoup plus intense et a créé un vaste panache de pollution de l'eau de la nappe sous-jacente. Le flux de pollution transféré vers la nappe a augmenté d'un facteur 40 au regard de celui observé dans le cas d'une dispersion passive des vapeurs, et après le passage de l'épisode pluvieux, le flux de pollution continue à migrer en profondeur dans la nappe depuis la partie basse de la frange capillaire qui a été fortement chargée en traces dissoutes sous l'effet de la pluie.

Les données issues de ces expériences seront exploitées pour la validation de modèles numériques de transport et de transfert de masse avec échanges entre phases.

5. REMERCIEMENTS

Ce travail de recherche a bénéficié du soutien financier du Contrat de Plan État Région Alsace, de l'Agence de l'Eau Rhin Meuse, et du Programme National de Recherche en Hydrologie (PNRH/INSU-CNRS). Les auteurs remercient pour leur contribution tout le personnel scientifique et technique de l'IMFS et de l'IFARE, en particulier Paul Muntzer, Gerhard Schäfer et Hocine Benremita, ainsi que la collaboration du BURGEAP et de l'IFP.

6. RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- BAEHR A. L., STACKELBERG P. E., 1999. Evaluation of the atmosphere as a source of volatile organic compounds in shallow groundwater. *Water Resour. Res.*, 35:1, 127-136.
- BARBER C., DAVIS G.B., BRIEGEL D., WARD J. K., 1990. Factors controlling the concentration of methane and other volatiles in groundwater and soil-gas around a waste site. *J. of Contam. Hydrol.*, 5, 155-169.
- BISHOP P. K., BURSTON M. W., LERNER D. N., EASTWOOD P. R., 1990. Soil gas surveying of chlorinated solvents in relation to groundwater pollution studies. *Q. J. Eng. Geol.*, 23, 255-265.
- CHO H. J., JAFFÉ P. R., 1990. The volatilization of organic compounds in unsaturated porous media during infiltration. *J. of Contam. Hydrol.*, 6, 387-410.
- CHO H. J., JAFFÉ P. R., SMITH J. A., 1993. Simulating the volatilization of solvents in unsaturated soils during laboratory and field infiltration experiments. *Water Resour. Res.*, 29, 10, 3329-3342.
- COHEN R. M., MERCER J. W. 1993. DNAPL Site Evaluation, C. K. Smoley (Éditeurs), CRC Press, Florida, USA, 200 p.
- CONANT E. H., GILLHAM R. W., MENDOZA C. A., 1996. Vapor transport of trichloroethylene in the unsaturated zone: Field and numerical modeling investigations. *Water Resour. Res.*, 32:1, 9-22.
- FALTA R. W., JAVANDELI, PRUESS K., WITHERSPOON P. A., 1989. Density-driven flow of gas in the unsaturated zone due to evaporation of volatile organic compounds. *Water Resour. Res.*, 25:10, 2159-2169.
- GRATHWOHL P., 1998. Diffusion in natural porous media: contaminant transport, sorption/desorption and dissolution kinetics. Topics in Environmental Fluid Mechanics, Kluwer Academic Publishers, 207 p.
- HUGHES B. M., GILLHAM R. W., MENDOZA C. A., 1992. Transport of trichloroethylene vapours in the unsaturated zone: A field experiment. Dans : Proceedings of Subsurface Contamination by Immiscible Fluids, K. U. Weyer (Éditeurs), Balkema, Rotterdam, 81-88.
- IMHOFF P. T., JAFFÉ P., 1994. Effect of liquid distribution on gas-water phase mass transfer in an unsaturated sand during infiltration, *J. Contam. Hydrol.*, 16, 359-380.
- JELLALI S., 2000. Pollution d'aquifères poreux par les solvants chlorés : Mécanismes de transport avec échanges entre phases. Expérimentations sur site contrôlé avec le trichloroéthylène. Thèse de Doctorat de l'ULP, Strasbourg, 217 p.
- JELLALI S., MUNTZER P., RAZAKARISOA O., SCHÄFER G., 2001. Large scale experiment on transport of trichloroethylene in a controlled aquifer. *Transport Porous Med.*, 44, 145-163.
- JELLALI S., BENREMITA H., MUNTZER P., RAZAKARISOA O., SCHÄFER G., 2003. A large scale experiment on mass transfer of trichloroethylene from the unsaturated zone of a sandy aquifer to its interfaces. *J. Contam. Hydrol.*, 60, 31-53.
- JOHNSON R. L., MC CARTHY K. A., PERROTT M., MENDOZA C. A., 1992. Density-driven vapor transport: Physical and numerical modeling. Proceedings of Subsurface Contamination by Immiscible Fluids. K. U. Weyer (Éditeurs), Balkema, Rotterdam, 19-27.

- JOHNSON R. L., PANKOW J. F., 1992. Dissolution of dense chlorinated solvents into groundwater. 2- Source functions for pools of solvent. *Environ. Sci. Technol.*, 26:5, 896-901.
- KLENK I. D., GRATHWOHL P., 2002. Transverse vertical dispersion in groundwater and the capillary fringe. *J. Contam. Hydrol.*, 58, 111-128.
- LENHARD R. J., OOSTROM M., SIMMONS, C. S., WHITE M. D., 1995. Investigation of density-dependent gas advection of trichloroethylene: Experiment and a model validation exercise. *J. Contam. Hydrol.*, 19, 47-67.
- Mc CARTHY K. A., JOHNSON R. L., 1993. Transport of volatile organic compounds across the capillary fringe. *Water Resour. Res.*, 29:6, 1675-1683.
- MENDOZA C. A., FRIND E. O., 1990a. Advective-dispersive transport of dense organic vapors in the unsaturated zone, 1. Model development. *Water Resour. Res.*, 26:3, 379-387.
- MENDOZA C. A., FRIND E. O., 1990b. Advective-dispersive transport of dense organic vapors in the unsaturated zone, 2. Sensitivity analysis. *Water Resour. Res.*, 26:3, 388-398.
- MENDOZA C. A., Mc ALARY T. A., 1990. Modelling of groundwater contamination caused by organic solvents vapors. *Ground Water*, 28:2, 199-206.
- PANKOW J. F., THOMPSON N. R., JOHNSON R. L., BAEHR A. L., ZOGORSKI J. S., 1997. The urban atmosphere as a non-point source for the transport of MTBE and other volatile organic compounds, (VOCs) to shallow groundwater. *Environ. Sci. Technol.*, 31:10, 2821-2828.
- PARKER J. C., LENHARD R. J., KUPPUSAMI T., 1987. A parametric model for constitutive properties governing multiphase flow in porous media. *Water Resour. Res.*, 23:4, 618-624.
- RIVETT M. O., 1995. Soil-gas signatures from volatile chlorinated solvents: Borden field experiments. *Ground Water*, 33:1, 84-98.
- RIVETT M.O., FEENSTRA S., CHERRY J.A., 2001. A controlled field experiment on groundwater contamination by a multicomponent DNAPL: creation of the emplaced-source and overview of dissolved plume development. *J. Contam. Hydrol.*, 49, 111-149.
- SCHWILLE F., 1988. Dense chlorinated solvents in porous and fractured media model experiments. Transcrit par Pankow J. F., English Language Edition, Lewis publishers, Chelsea, Michigan, 146 p.
- SLEEP B. E., SYKES J. F., 1989. Modeling the transport of volatile organics in variably saturated media. *Water Resour. Res.*, 25:1, 81-92.
- THOMSON N. R., SYKES J. F., VAN VLIET, 1997. A numerical investigation into factors affecting gas and aqueous phase plumes in the subsurface. *J. Contam. Hydrol.*, 28, 39-70.
- VAN GENUCHTEN M. TH., 1980. A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 44, 892-898.
- WANG, G., RECKHORN, S.B.F., GRATHWOHL, P. 2003. Volatilization of VOC from multicomponent mixtures in unsaturated porous media. *Vadose Zone J.*, 692-701.