

Utilisation de la désorption thermique pour l'élimination in situ des couches flottantes d'hydrocarbures

Use of thermal desorption for removing in-situ floating oil layers

Saadaoui H., Haemers J., Denecheau P.
TPS Tech, Bruxelles, Belgique

Cédou C.
G.T.S (groupe NGE), Saint Priest, France

RÉSUMÉ : NSRCity™, (breveté par TPSTECH) est une nouvelle technologie de traitement des sols par désorption thermique in situ (sans excavation). La technique utilise le chauffage du sol par conduction (circulation des gaz chauds dans un circuit placé dans le sol) et l'aspiration des vapeurs de contaminants produites dans le sol. Le système comporte des éléments chauffants (deux tubes concentriques) équipés chacun d'un brûleur à gaz, des tubes perforés pour la récupération des vapeurs et un ventilateur pour la circulation des gaz chauds. La technique est déjà utilisée avec succès sur plusieurs sites urbains et industriels en Europe et aux États-Unis. NSRCity™ a été récemment testé sur deux sites : en Belgique et en France. Le site Belge renferme une couche flottante d'hydrocarbures de 0,50 m d'épaisseur (en moyenne) située à 3 m de profondeur. Le site Français renferme une couche flottante d'huiles de moteurs de 2 m d'épaisseur située à 2,50 m de profondeur contaminée par des solvants chlorés. Les résultats obtenus sont très encourageants.

ABSTRACT: NSRCity™ (patented by TPSTECH) is a new technology of soil by thermal in-situ desorption treatment (without excavation). The technique uses the soil heating by conduction (movement of hot gases in a circuit placed in the ground) and the fumes of contaminants produced in the soil. The system consists of heating elements (two concentric tubes) each burner gas tubes perforated for vapour recovery and a fan for the movement of hot gases. The technique is already used successfully on many urban and industrial sites in Europe and the United States. NSRCity™ was recently tested at two sites: one in Belgium and one in France. The Belgian site contains a floating layer of hydrocarbons from 0.50 m of thickness in 3 m deep. The French site has a floating layer of oils for engines of 2 m thick located at a depth of 2.50 m, contaminated by chlorinated solvents. The results are very encouraging.

MOTS-CLÉS : NAPL, couche flottante, traitement thermique in situ, conduction

KEYWORDS: NAPL, floating layer, thermal in-situ desorption, conduction

1 INTRODUCTION

Les NAPL (Non-Aqueous Phase Liquids), tels que les produits pétroliers et les solvants organiques volatils, sont les principaux polluants de l'air, du sol et des eaux souterraines. La pollution du sol par ces produits est généralement accidentelle et provient de plusieurs sources : fuites de réservoir et de tuyauterie de stockage extérieure ou souterraine, flaques d'huile, dépôts des déchets chimiques. Une fois présents dans le sol, ces produits tendent à se déplacer en profondeur par gravité en laissant dans leurs sillages des quantités résiduelles dans la matrice du sol (Power & Abriola, 1992 ; Mayer & Miller, 1992). Une couche flottante apparaît lorsqu'une certaine quantité d'hydrocarbures (plus légère que l'eau) atteint les eaux souterraines. Le liquide s'accumule alors dans la zone capillaire, juste au-dessus du niveau supérieur de la nappe. La couche flottante (ou surnageante) se forme lorsque cette accumulation atteint une valeur critique. Due à la fluctuation de la nappe (sur une saison), le L-NAPL est piégé sous forme de poches séparées et immobiles dans la zone saturée.

Le traitement d'une couche flottante ou/et de la zone saturée présente plusieurs difficultés.

- Accès difficile : généralement, la zone polluée se trouve à des profondeurs considérables ce qui nécessite des moyens d'intervention beaucoup plus sophistiqués et donc très onéreux.
- Présence d'eau : la présence des eaux souterraines limite l'efficacité de l'intervention (temps de traitement plus long, persistance de la pollution dans la zone saturée,...).

Les méthodes de traitement les plus connues actuellement sont l'excavation, le pompage classique «pump and treat» et

l'écrémage. Ces méthodes sont trop coûteuses, peu efficaces et ne sont pas toujours physiquement possibles (Osmer, 2002). Le traitement thermique in situ peut être une alternative possible à ces méthodes. En effet, le chauffage du sol mène à des changements brutaux des conditions thermodynamiques du sol et rend le contaminant beaucoup plus mobile (Lingineni & Dhir, 1992). Les principaux effets sont décrits ci-dessous.

- La pression de vapeur du contaminant augmente nettement avec la température. Le chauffage du sol de 20°C à une température moyenne de 100°C augmente la pression de vapeur du contaminant d'au moins un facteur 10. Ceci améliore le transfert massique de la phase liquide vers la phase gazeuse.

- Dans les endroits où le contaminant et l'eau sont présents, l'ébullition du mélange peut se produire à des températures en dessous de 100°C.

- Les coefficients d'adsorption sont réduits pendant le chauffage, menant au dégagement du contaminant à partir de la matrice de sol ou de roche.

- La viscosité, la densité liquide du contaminant et les tensions capillaires entre le contaminant et l'eau sont réduites par le chauffage, favorisant le déplacement du contaminant.

La technologie NSRCity™ développée récemment par TPS Tech est une nouvelle méthode de traitement thermique in-situ des sols. Un descriptif de la méthode sera exposé ici, ainsi qu'un exemple d'application sur un site en Belgique.

2 DESCRIPTION DE LA TECHNIQUE NSRCITY™

2.1 Principe

La technologie NSRCity™ développée par TPS Tech traite par désorption thermique les zones saturée et non saturée du sol. Elle consiste à chauffer le sol par conduction (utilisation d'éléments chauffants ; figures 1 et 2). Les vapeurs produites dans le sol sont extraites par aspiration. Une partie des vapeurs est détruites in situ par plusieurs mécanismes (cf. §3.1). La technologie s'applique à tout contaminant dont le point d'ébullition à pression atmosphérique n'excède pas les 500°C. Elle est très flexible et peut être mise en œuvre facilement in situ (sans excavation de la terre polluée) ou sur site après excavation par le placement d'un circuit de chauffage constitué d'éléments chauffants. Chaque élément chauffant est constitué de deux tubes concentriques et d'un brûleur à gaz (Figure 1). Les gaz chauds (800°C) produits par le brûleur parcourent le tube interne puis remontent le long du tube externe avant de quitter le circuit. Les vapeurs de contaminant sont récupérées par un tube perforé en acier. Ce tube est placé à côté de l'élément chauffant.

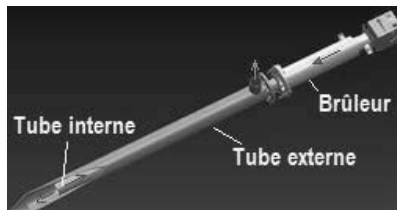


Figure 1. Élément chauffant complet - NSRCity™.

L'installation comporte plusieurs éléments chauffants déposés généralement en triangles isocèles (Figure 2).

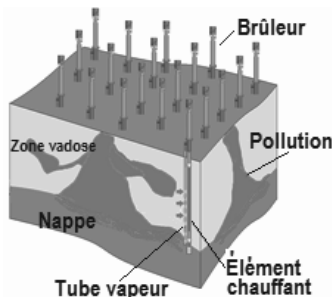


Figure 2. Installation NSRCity™: Traitement du sol et des eaux souterraines polluées par des produits pétroliers (L-NAPL).

2.2 Evolution de la température du sol

Dans la zone non saturée, l'évolution de la température du sol passe par trois phases (Figure 3).

- Chauffage jusqu'à 100°C (T°C d'ébullition de l'eau),
- Evacuation de l'humidité du sol à 100°C,
- Chauffage du sol jusqu'à la température finale de traitement.

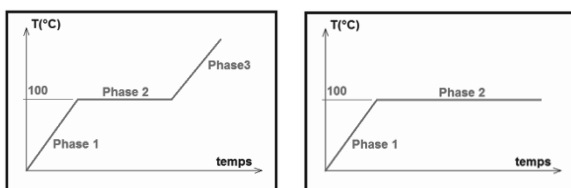


Figure 3. Evolution théorique de la température dans la zone du sol non saturée (à droite) et zone saturée en eau (à gauche).

En présence d'une quantité importante d'eau (présence de la nappe phréatique) et à cause de la vapeur d'eau, la température du sol se stabilise à 100°C (cf. Figure 3).

3 LES MECANISMES DE TRAITEMENT

3.1 Les différents mécanismes

Quand le sol est chauffé, les contaminants organiques sont évaporés ou détruits par plusieurs mécanismes qui sont fonction de la température du sol. Ces mécanismes comprennent :

Pour T < 100°C

- Evaporation
- Traitement à la vapeur d'eau
- Ebullition (pour certains contaminants avec T_{éb} < 100°C)

Pour T > 100°C

- Ebullition
- Pyrolyse
- Hydrolyse
- Oxydation

Pendant le traitement, le contaminant sous forme liquide se vaporise par ébullition, par évaporation dans l'air, ou par entraînement à la vapeur d'eau. Dans la zone à haute température (près des tubes; épaisseur quelques cm), des réactions de destruction sont mises en œuvre (Hydrolyse/Pyrolyse/Oxydation). Le chauffage du sol conduit aussi au rabattement de la nappe tout près des tubes (Figure 4), favorisant ainsi l'acheminement de la couche flottante vers la zone de destruction (Figure 4).

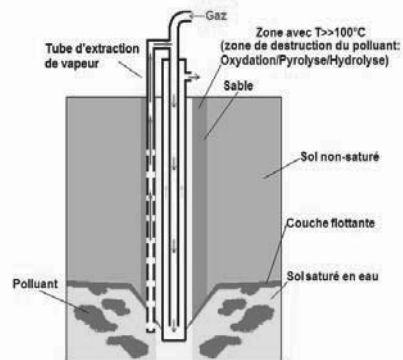
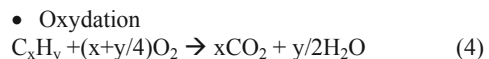
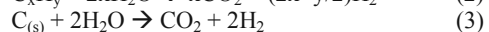
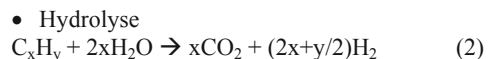


Figure 4. Régime stable de fonctionnement de la technique NSRCity™ en présence d'une couche flottante.

A haute température (T >> 100°C), la destruction du polluant se fait par pyrolyse, hydrolyse et en présence d'oxygène. Les réactions suivantes résument les processus de destruction :



En présence de la nappe et en dehors de la zone de haute température (zone autour de l'élément chauffant), la température du sol se stabilise à 100°C à cause de la présence de la vapeur d'eau en permanence. Dans cette zone, le mécanisme de dépollution est principalement l'évaporation et/ou l'entraînement à la vapeur d'eau. Cette technique est largement répandue dans les raffineries de pétrole et dans les procédés pétrochimiques, où elle est désignée généralement sous le nom de "Stripping vapeur".

3.2 Traitement à la vapeur d'eau

La présence d'eau en abondance permet le traitement par entraînement à la vapeur d'eau. Le mécanisme fonctionne de la façon suivante : Lorsqu'un mélange de deux liquides pratiquement non miscibles est chauffé tout en étant agité pour exposer les surfaces des deux liquides à la phase vapeur, chaque constituant exerce indépendamment ses propres pressions de vapeur en fonction de la température, comme si l'autre constituant n'était pas présent. En conséquence, la pression de vapeur du système entier augmente. L'ébullition commence quand la somme des pressions partielles des deux liquides non miscibles excède la pression atmosphérique (approximativement 101,3 kPa au niveau de la mer). De cette façon, beaucoup de composés organiques insolubles dans l'eau peuvent être bien épurés à une température au-dessous du point auquel la décomposition se produit.

La quantité du contaminant présente dans la vapeur d'eau peut être évaluée de la manière suivante. Pour les liquides non miscibles, la fraction molaire d'un composant en phase gazeuse est donnée par la loi de Dalton :

$$Y_i = \frac{n_i}{n_t} = \frac{P_i^0}{P_t} = \frac{P_i^0}{\sum_i P_i^0} \text{ avec } 1 = \sum_i Y_i \text{ et } P_t = \sum_i P_i^0 \quad (7)$$

d'où, pour un mélange gazeux de N composants, on a :

$$y_{i,m} = \frac{1}{1 + \frac{M_1 P_1^0}{M_i P_i^0} + \dots + \frac{M_{i-1} P_{i-1}^0}{M_i P_i^0} + \frac{M_{i+1} P_{i+1}^0}{M_i P_i^0} + \dots + \frac{M_N P_N^0}{M_i P_i^0}} \quad (8)$$

La pression partielle (ou de saturation), P_i^0 , d'un composant peut être obtenue à partir de la loi de Clapeyron :

$$\ln P_i^0 = A + \frac{B}{C + T} \quad (9)$$

avec A, B et C : des constantes propres à chaque composant.

Pour un mélange binaire (par exemple C_xH_y /Eau), on a :

$$y_{C_xH_y,m} = \frac{1}{1 + \frac{M_{eau} P_{eau}^0}{M_{C_xH_y} P_{C_xH_y}^0}} \quad (10)$$

Le Tableau 1 donne les fractions massiques d'un mélange eau/composé organique à 100°C et à pression atmosphérique.

Tableau 1. Fractions massiques en phase vapeur à 100°C d'un mélange Eau/Benzo-cyclopentane et Eau/N-Hexadécane.

Composé	T _{eb} (°C) à 1 atm	M _{C_xH_y} (g/mole)	T (°C)	Y _{C_xH_y} (%)
Benzo-cyclopentane (C ₉ H ₁₀)	177	118	100	40,60
n-Hexadécane (C ₁₆ H ₃₄)	287	226	100	1,10

Dans le cas des liquides miscibles, les mêmes équations seront utilisées en rajoutant la loi de Raoult qui corrige la pression partielle d'un composant par sa fraction molaire en phase liquide :

$$P_i = \sum_i P_i = \sum_i x_i P_i^0 \quad (11)$$

4 CAS D'ÉTUDE SUR UN SITE BRUXELLOIS

4.1 Présentation du site et du pilote

Le site se localise sur le terrain d'une entreprise belge qui a des activités de distribution de voiture en Belgique et dans le monde. Suite à des activités de l'entreprise (nettoyage de voitures, traitement de carrosseries, etc.) et à l'utilisation de produits chimiques, des quantités importantes d'hydrocarbures ont été versées sur le sol. Après des années d'exploitation, une couche flottante s'est formée à la surface de la nappe phréatique présente à 3 m de profondeur. Cette couche flottante, de hauteur variable selon l'endroit (0,20 à 0,80 m), s'étend sur une superficie de 2000 m². En plus de la couche flottante, les analyses effectuées sur des échantillons du sol et des eaux souterraines ont révélé la présence d'huiles minérales, des BTEX et des HAP (Tableau 2).

Un test pilote par désorption thermique in situ est réalisé sur site courant de l'année 2010. L'objectif principal de ce test était de vérifier l'efficacité de la technologie pour ce type de pollution, d'évaluer la consommation énergétique et le temps de traitement.

4.2 Les polluants du site

Comme mentionné ci-dessus, le polluant est composé d'un mélange d'huiles minérales, des BTEX et des HAP. Le Tableau 2 regroupe les résultats d'analyses effectuées sur des échantillons du sol et des eaux souterraines, prélevés avant traitement.

Tableau 2. Analyse des polluants présents sur le site (sol + eau).

Echan.	BTEXS (mg/kg-ms)	C10-C40 (mg/kg-ms)	HAP (16) (mg/kg-ms)
Sol (1m)	< 0,25	997,40	0,06<x<0,81
Sol (2m)	< 0,25	-	<0,80
Sol (4m)	< 0,25	848	1,46<x<1,91

Echan.	BTEXS (µg/L)	C10-C40 (g/L)	HAP (16) (µg/L)
Liq. (eau)	414	1,3	740

4.3 Installation du pilote

L'installation pilote, utilisée pour ce test, comporte 3 tubes de chauffages verticaux (4 m de long chacun). Ces tubes sont placés en triangle équilatéral à 1,5 m de distance. La surface totale de la zone traitée est de 5,3 m². Les tubes externes sont placés à 4 m de profondeur (niveau du sol). Les tubes internes sont placés à 3,5 m de profondeur (niveau du sol). L'ensemble est connecté à un réseau de tubes horizontaux (pour la circulation des gaz), et au ventilateur de circulation (Figure 5).

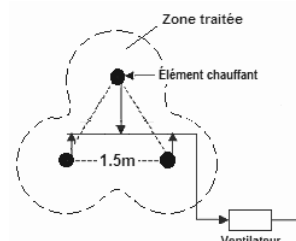


Figure 5. Installation du pilote test sur le site (Bruxelles / Belgique).

Pour réduire les pertes thermiques, l'ensemble de l'installation-sol a été isolé. Une couche de 0,15 m de béton a été mise en place sur le sol en surface, afin d'empêcher des fuites de gaz vers l'extérieur.

4.4 Mesures et suivi du pilote test

Huit thermocouples sont placés sur le circuit de gaz et sept thermocouples dans le sol à différentes profondeurs (1, 2 et 4 m). Les thermocouples sont de type K. Les températures sont enregistrées avec une fréquence de 12 mesures par heure. L'acquisition des données est effectuée via la carte Microlink 751. Les gaz sont analysés trois fois par jour à différents endroits du circuit. Les gaz analysés sont: les oxydes d'azote (NO et NO₂), le monoxyde de carbone (CO), le dioxyde de carbone (CO₂), l'oxygène (O₂), le dioxyde de soufre (SO₂) et les hydrocarbures (HCT). L'appareil utilisé est l'MRU Varioplus.

Pour suivre l'évolution de la couche flottante, trois puits de 5 m de profondeur sont creusés. Le premier est situé au centre du triangle formé par les tubes, les deux autres sont à l'extérieur de la zone de traitement (à 1 et 5 m de l'installation). La température des gaz et la concentration en oxygène à la sortie de la chambre de combustion constituent les paramètres les plus importants de fonctionnement du procédé. Les valeurs choisies devraient permettre d'avoir un bon rendement de combustion et une température élevée des gaz à l'entrée des tubes de chauffage. Le réglage du brûleur (débits d'air et de carburant) permet de mieux contrôler ces paramètres. Vu la longue durée de traitement (plusieurs semaines), l'installation est équipée en permanence d'un système de surveillance. En cas d'arrêt, un message SMS d'alerte est envoyé automatiquement.

5 RÉSULTATS ET DISCUSSION

Le test pilote a duré au total et sans interruptions 70 jours.

5.1 Evolution de la température

La Figure 6 donne la température du sol traité.

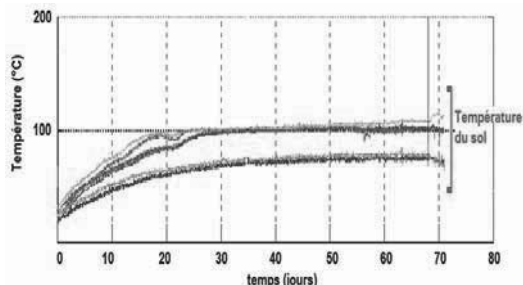


Figure 6. Evolution de la température du sol traité.

On distingue clairement deux phases de chauffage.

- Une première phase de 20 jours pendant laquelle la température du sol augmente jusqu'à 100°C (température d'ébullition de l'eau).

- Une deuxième phase de 50 jours où la température se stabilise à 100°C (sauf pour la zone autour des tubes). Pendant cette phase, l'énergie transmise au sol est utilisée pour l'évaporation de l'eau et du contaminant. Cette phase constitue la phase de traitement (entraînement par la vapeur d'eau).

5.2 Evolution de la couche flottante

Pendant le traitement, et pour suivre l'évolution de la couche flottante, des mesures sont effectuées dans les trois puits de contrôles. Seul le puits central présentait une diminution de la couche flottante. Après 70 jours de traitement, la couche flottante est totalement éliminée (Figure 7).

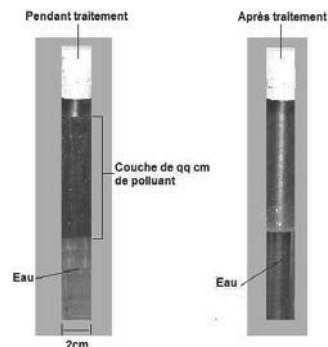


Figure 7. Echantillons liquides du puits central, pendant et après traitement.

5.3 Analyse des sols

Le Tableau 3 regroupe les résultats d'analyses effectuées sur des échantillons du sol et des eaux souterraines, prélevés avant et après traitement.

Table 3. Comparaison des résultats des polluants (sol + eau) avant et après traitement.

Echan.	BTEXS (mg/kg-ms)	C10-C40 (mg/kg-ms)	HAP (16) (mg/kg-ms)
Sol (1m) Avant	<0,25	997,40	0,06<x<0,81
Sol (1m) Après	-	<50	0,10
Sol (2m) Avant	<0,25	-	<0,80
Sol (2m) Après	-	240	<0,05
Sol (4m) Avant	<0,25	848	1,46<x<1,91
Sol (1m) Après	-	180	<0,80
Echan.	BTEXS (µg/L)	C10-C40 (µg/L)	HAP (16) (µg/L)
Liq(eau) Avant	414	1 300	740
Liq(eau) Après	-	6,40	-

6 CONCLUSION

Ces travaux ont démontré l'efficacité de la technologie NSRCityTM de désorption thermique in situ pour le traitement des sols pollués en présence d'une couche flottante. Dans le site étudié, avec une distance entre tubes de 1,50 m, 70 jours étaient suffisants pour l'élimination totale d'une couche de polluants d'épaisseur 50 cm. L'entraînement par la vapeur d'eau provenant de la nappe et la création d'une zone de haute température près des tubes ont permis ce traitement.

7 REFERENCES

Lingineni, S. & Dhir, V. 1992. Modelling of soil venting processes to remediate unsaturated soils. *J. Environmental Engineering*, 118(1): 135-152.

Mayer A. S., Miller C. T. 1992. The influences of porous medium characteristics and measurement scale on pore-scale distributions of residual nonaqueous phase liquids. *J. Contam. Hydrol.*, 11, 189-213.

Osmer, P. 2002. Elements for Effective Management of Operating Pump and Treat Systems. November 2002. OSWER 9355.4-27FS-A.

Power S. E., Abriola L. M., Weber W. J. 1992. An experimental investigation of NAPL dissolution in saturated subsurface systems: study state mass transfer rates. *Water Resours. Res.*, 28, 2691-2705.