

**Titre:** Développement d'une stratégie de contrôle pour le procédé de bioventilation in situ  
Title: bioventilation in situ

**Auteur:** Philippe Vanderby  
Author:

**Date:** 1998

**Type:** Mémoire ou thèse / Dissertation or Thesis

**Référence:** Vanderby, P. (1998). Développement d'une stratégie de contrôle pour le procédé de bioventilation in situ [Mémoire de maîtrise, École Polytechnique de Montréal].  
Citation: PolyPublie. <https://publications.polymtl.ca/8699/>

## Document en libre accès dans PolyPublie

Open Access document in PolyPublie

**URL de PolyPublie:** <https://publications.polymtl.ca/8699/>  
PolyPublie URL:

**Directeurs de recherche:** Réjean Samson, & Michel Perrier  
Advisors:

**Programme:** Non spécifié  
Program:

## **INFORMATION TO USERS**

This manuscript has been reproduced from the microfilm master. UMI films the text directly from the original or copy submitted. Thus, some thesis and dissertation copies are in typewriter face, while others may be from any type of computer printer.

**The quality of this reproduction is dependent upon the quality of the copy submitted.** Broken or indistinct print, colored or poor quality illustrations and photographs, print bleedthrough, substandard margins, and improper alignment can adversely affect reproduction.

In the unlikely event that the author did not send UMI a complete manuscript and there are missing pages, these will be noted. Also, if unauthorized copyright material had to be removed, a note will indicate the deletion.

Oversize materials (e.g., maps, drawings, charts) are reproduced by sectioning the original, beginning at the upper left-hand corner and continuing from left to right in equal sections with small overlaps.

Photographs included in the original manuscript have been reproduced xerographically in this copy. Higher quality 6" x 9" black and white photographic prints are available for any photographs or illustrations appearing in this copy for an additional charge. Contact UMI directly to order.

Bell & Howell Information and Learning  
300 North Zeeb Road, Ann Arbor, MI 48106-1346 USA  
800-521-0600

**UMI<sup>®</sup>**



UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

DÉVELOPPEMENT D'UNE STRATÉGIE DE CONTRÔLE  
POUR LE PROCÉDÉ DE BIOVENTILATION IN SITU

PHILIPPE VANDERBY

DÉPARTEMENT DE GÉNIE CHIMIQUE  
ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

MÉMOIRE PRÉSENTÉ EN VUE DE L'OBTENTION  
DU DIPLÔME DE MAÎTRISE ÈS SCIENCES APPLIQUÉES  
(GÉNIE CHIMIQUE)

JUIN 1998



National Library  
of Canada

Acquisitions and  
Bibliographic Services  
  
395 Wellington Street  
Ottawa ON K1A 0N4  
Canada

Bibliothèque nationale  
du Canada

Acquisitions et  
services bibliographiques  
  
395, rue Wellington  
Ottawa ON K1A 0N4  
Canada

Your file Votre référence

Our file Notre référence

The author has granted a non-exclusive licence allowing the National Library of Canada to reproduce, loan, distribute or sell copies of this thesis in microform, paper or electronic formats.

The author retains ownership of the copyright in this thesis. Neither the thesis nor substantial extracts from it may be printed or otherwise reproduced without the author's permission.

L'auteur a accordé une licence non exclusive permettant à la Bibliothèque nationale du Canada de reproduire, prêter, distribuer ou vendre des copies de cette thèse sous la forme de microfiche/film, de reproduction sur papier ou sur format électronique.

L'auteur conserve la propriété du droit d'auteur qui protège cette thèse. Ni la thèse ni des extraits substantiels de celle-ci ne doivent être imprimés ou autrement reproduits sans son autorisation.

0-612-46665-5

Canadä

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL

Ce mémoire intitulé :

DÉVELOPPEMENT D'UNE STRATÉGIE DE CONTRÔLE  
POUR LE PROCÉDÉ DE BIOVENTILATION IN SITU

présenté par : VANDERBY Philippe

en vue de l'obtention du diplôme de : Maîtrise ès sciences appliquées

a été dûment accepté par le jury d'examen constitué de :

M. KLVANA Danilo, Ph.D., président

M. SAMSON Réjean, Ph.D., membre et directeur de recherche

M. PERRIER Michel, Ph.D., membre et codirecteur de recherche

M. COMEAU Yves, Ph.D., membre

*La véritable découverte ne consiste pas à trouver de nouveaux paysages mais à jeter sur le paysage un regard nouveau.*

*Marcel Proust*

## **REMERCIEMENTS**

Je remercie le professeur Réjean Samson, mon directeur de recherche, pour la confiance qu'il a eue en moi, ses conseils et pour m'avoir permis de travailler sur un sujet si intéressant.

Je remercie également le professeur Michel Perrier, mon codirecteur de recherche, pour son apport si important à ma formation. Les discussions que nous avons eues font partie des plus beaux souvenirs que j'ai de mon projet de maîtrise.

Je tiens à exprimer ma gratitude envers Josée Gagnon pour ses conseils surtout dans les moments les plus difficiles et les plus critiques du projet. Je remercie également le professeur Denis Millette et le D<sup>r</sup> Louise Deschênes pour leurs idées et leur intérêt envers le projet. J'exprime aussi ma reconnaissance envers François Roberge, Manon Leduc, Sandra Estrela, Pierre Gagné et Gino Robin pour leur aide au laboratoire. Des remerciements particuliers doivent être adressés au D<sup>r</sup> Charles Greer, à Claude Masson et Mariama Diallo pour le bon déroulement des travaux portant sur les aspects du projet relatifs à la microbiologie. Je ne saurais oublier la contribution de David Bourbeau et Éric Otis pour leur expertise précieuse lors des essais sur le terrain.

Je tiens à remercier spécialement Robert Delisle, technicien en électronique, pour sa générosité et sa grande disponibilité. Son aide et ses conseils ont été indispensables à la réussite de ce projet. Je veux également remercier Jean Huard pour son excellent soutien technique et pour m'avoir dépanné à plus d'une occasion de situations fâcheuses.

Je ne peux oublier mes collègues au département de génie chimique et mes amis pour leur appui et leurs encouragements. Leur présence lors des bons et mauvais moments m'a été d'une grande aide.

Enfin, je remercie mes parents pour leur patience et compréhension lors des périodes où j'étais moi-même moins agréable ; je leur suis également très reconnaissant du soutien continu qu'ils m'ont donné tout au long de mes études.

## RÉSUMÉ

Ce projet porte sur le développement d'une stratégie de contrôle pour le procédé de bioventilation *in situ*. Les objectifs du travail, au nombre de trois, sont : de caractériser le comportement dynamique du procédé ; de modéliser la dynamique du procédé ; enfin, de concevoir et de faire la mise à l'essai d'un algorithme de contrôle pour ce procédé.

L'atteinte des objectifs du projet est réalisée à l'aide d'essais dynamiques sur deux colonnes de 22 L. Avant de remplir les colonnes de sol, la caractérisation physico-chimique et microbiologique de celui-ci est effectuée pour s'assurer qu'un traitement par bioventilation *in situ* est approprié pour la décontamination du sol. Lors des tests dynamiques, le suivi du débit d'air, des concentrations en phase gazeuse de l'oxygène et du dioxyde de carbone ainsi que de l'humidité et la température du sol est effectué en ligne. De plus, le nombre de bactéries hétérotrophes totales et hydrocarbonoclastes, la quantité d'hydrocarbures en phase gazeuse, les concentrations dans le sol d'hydrocarbures pétroliers et de carbone organique total sont mesurées à différents moments lors des tests.

La stratégie de contrôle proposée a comme variable manipulée le débit d'air et comme variable contrôlée la concentration d'oxygène en phase gazeuse. Le développement d'un modèle entrée-sortie, obtenu à partir de bilans de masse sur l'oxygène, indique qu'il est souhaitable d'identifier les paramètres du modèle à l'aide des techniques d'identification des systèmes.

L'identification du modèle est d'abord réalisée en appliquant des échelons et une séquence binaire pseudo-aléatoire sur le débit d'air. Les paramètres du contrôleur sont évalués par la méthode de la synthèse directe à l'aide du modèle identifié lors de la séquence binaire pseudo-aléatoire. Ensuite, des échelons sur le point de consigne sont appliqués pour vérifier la performance du contrôleur. Le point de consigne est également varié selon une séquence binaire générale qui est conçue pour favoriser l'identification

d'un modèle pour une fréquence donnée. La fréquence choisie correspond à l'inverse de la constante de temps désirée en boucle fermée.

Le modèle entrée-sortie développé à partir des bilans de masse sur l'oxygène et les résultats expérimentaux démontrent que la dynamique du procédé dépend des conditions d'opération. Le gain en régime permanent et le temps de réponse décroissent lorsque le débit d'air augmente.

De plus, les essais en colonnes, sur une période de quatre mois, indiquent que la dynamique du procédé n'est pas stationnaire ; ce résultat était anticipé suite à une revue d'études antérieures sur la biodégradation d'hydrocarbures pétroliers dans un sol. Le débit d'air a dû être graduellement diminué pour obtenir une concentration équivalente ou même supérieure d'oxygène en phase gazeuse. Par exemple, lors du premier mois des essais dynamiques, un débit d'air de 13,9 ml/min donnait une concentration d'oxygène en phase gazeuse de 10 % en régime permanent ; lors du dernier mois, une concentration d'oxygène en phase gazeuse de 15 % était atteinte avec un débit de 10 ml/min.

Par ailleurs, les résultats des essais en régime transitoire révèlent que le modèle dynamique d'entrée-sortie du procédé est convenablement représenté par une fonction de transfert de premier ordre avec délai. Les paramètres de la fonction de transfert sont donc utilisés pour déterminer les paramètres d'un contrôleur proportionnel-intégral. Le contrôleur permet un comportement dynamique robuste en boucle fermée. Les points de consigne, pour des valeurs situées dans un intervalle de 13 jusqu'à 16,5 %, sont atteints avec des temps de réponse satisfaisants. L'essai en boucle fermée lors de l'application de la séquence binaire générale a également permis d'identifier une deuxième constante de temps pour le modèle dynamique d'entrée-sortie du procédé.

Un bilan de masse sur l'oxygène indique que le taux de biodégradation moyen des hydrocarbures est de 19,5 mg/kg-j, ce qui est en accord avec les taux généralement

observés pour le procédé de bioventilation *in situ*. La variabilité entre les différents échantillons de sol étant trop élevée, les conclusions quant aux analyses des concentrations d'hydrocarbures pétroliers dans le sol sont trop difficiles à formuler. Les populations hétérotrophes totales se situent en moyenne entre  $10^5$  et  $10^7$  (NPP/g sol et UFC/g sol) et les dégradeurs d'hexadécane entre  $10^3$  et  $10^5$  (NPP/g sol), ce qui est typique de sols possédant une bonne activité biologique.

L'implantation de la stratégie de contrôle proposée est bénéfique à trois niveaux. Premièrement, le suivi du procédé de bioventilation *in situ* est amélioré et les coûts d'analyses d'échantillons de sol sont réduits. Deuxièmement, en manipulant le débit d'air pour contrôler la concentration d'oxygène en phase gazeuse, la volatilisation des hydrocarbures pétroliers est réduite, ce qui diminue les coûts associés au traitement des rejets gazeux. Enfin, la consommation d'énergie électrique est moindre de même que les coûts d'opération.

## ABSTRACT

This work describes the development of a control strategy for the bioventing process. The goals of the study are to: 1) characterize the dynamic behavior of the process; 2) find a suitable model to describe the process dynamics; 3) design and implement a control algorithm for the process.

Two packed soil columns of 22 L are used to simulate the bioventing process. Before filling the columns, the soil physical, chemical and microbiological properties are evaluated to insure that bioventing would be an appropriate treatment technique for decontamination. While performing dynamic tests, air flow rate, oxygen and carbon dioxide concentrations in the gas phase, soil humidity and temperature are monitored online. In addition, bacterial counts, the quantity of hydrocarbons in the gas phase, soil concentrations of petroleum hydrocarbons and total organic carbon are measured at different stages during the experiments.

The proposed control strategy uses air flow rate as the manipulated variable and concentration of oxygen in the gas phase as the controlled variable. A first principle input/output model derived from an oxygen mass balance shows that it is desirable to identify the model parameters using system identification techniques.

Model identification is accomplished using step changes and a pseudorandom binary sequence on the air flow rate. Controller tuning constants are evaluated with the direct synthesis method with the model identified during the pseudorandom binary sequence. Subsequently, step changes on the set point are implemented to verify control performance. A generalized binary sequence, designed to favor identification results for a single frequency point, is also applied on the set point. The chosen frequency is equal to the reciprocal of the desired time constant in closed-loop.

The input/output model derived from oxygen mass balance and experimental results demonstrate that the dynamics of the process depend on operating conditions. The steady state gain decreases and the speed of the response increases with increasing air flow rates.

Furthermore, the soil column study, over a four-month period, indicates that the dynamics of the process is not stationary; this result was anticipated following a review of previous studies of hydrocarbon biodegradation in soils. The air flow rate had to be gradually lowered to obtain an equivalent or even higher concentration of oxygen in the gas phase. For example, during the first month of dynamic testing, an air flow rate of 13,9 ml/min was required to maintain a concentration of oxygen in the gas phase of 10 % at steady state; during the last month, a gas phase oxygen concentration of 15 % was attained with an air flow rate of 10 ml/min.

Results from the transient tests reveal that the dynamic input/output model of the process is well represented by a first order plus time delay transfer function. The model parameters are then used to obtain the tuning constants of a proportional-integral controller. The controller allows for a robust dynamic performance in closed-loop. Set points ranging from 13 to 16,5 % are attained in satisfactory response times. A second time constant for the dynamic input/output model of the process was identified with the implementation in closed-loop of the generalized binary sequence test.

A mass balance on oxygen indicates that the average biodegradation rate of hydrocarbons is 19,5 mg/kg-d, which is comparable with rates generally observed during the bioventing process. Due to a high variability between soil samples, it is difficult to draw conclusions from soil concentrations of petroleum hydrocarbons. Total heterotrophic populations average between  $10^5$  and  $10^7$  (MPN/g soil and CFU/g soil) and hexadecane degraders between  $10^3$  and  $10^5$  (MPN/g soil), which is typical of biologically active soils.

Implementation of the proposed control strategy is beneficial in three ways. First, better monitoring of the bioventing process is achieved and costs for the analysis of soil samples are lowered. Secondly, control of the oxygen concentration in the gas phase by manipulating the air flow rate reduces volatilization of hydrocarbons, which lowers off-gas treatment costs. Finally, the electrical energy consumed decreases together with operational costs.

**TABLE DES MATIÈRES**

CITATION.....	IV
REMERCIEMENTS.....	V
RÉSUMÉ .....	VII
ABSTRACT.....	X
TABLE DES MATIÈRES .....	XIII
LISTE DES TABLEAUX.....	XVII
LISTE DES FIGURES .....	XVIII
LISTE DES ANNEXES .....	XXI
LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS .....	XXII
1 INTRODUCTION.....	1
1.1 Contexte.....	1
1.2 Problématique.....	3
1.3 Hypothèse de recherche et objectifs .....	4
1.4 Contenu et organisation du mémoire.....	6
2 CONCEPTS THÉORIQUES .....	7
2.1 Description du procédé de bioventilation <i>in situ</i> .....	7
2.2 Facteurs influençant un traitement par bioventilation <i>in situ</i> .....	9
2.2.1 Micro-organismes indigènes dégradeurs d'hydrocarbures .....	9
2.2.2 Perméabilité du sol à l'air .....	10
2.2.3 Répartition des contaminants .....	11
2.2.4 Présence d'accepteurs d'électrons.....	13

2.2.5 Humidité du sol .....	14
2.2.6 Potentiel hydrogène .....	15
2.2.7 Température du sol .....	16
2.2.8 Nutriments .....	16
2.2.9 Concentration des contaminants .....	17
2.3 Comportement en régime transitoire du procédé de bioventilation <i>in situ</i> .....	17
2.3.1 Volatilisation des hydrocarbures pétroliers .....	19
2.3.2 Biodégradation des hydrocarbures pétroliers .....	21
2.4 Théorie sur l'identification des systèmes .....	23
2.4.1 Paramétrisation du modèle .....	24
2.4.2 Validation du modèle .....	25
2.4.3 Signal d'entrée .....	27
2.4.4 Fonction de transfert en continu .....	29
2.5 Théorie sur la conception d'un contrôleur par synthèse directe .....	30
<b>3 CONFIGURATION ET ÉLABORATION DU SYSTÈME DE CONTRÔLE .....</b>	<b>33</b>
3.1 Choix de la variable manipulée et contrôlée .....	33
3.1.1 Variable manipulée .....	34
3.1.2 Variable contrôlée .....	34
3.2 Analyse du système asservi proposé .....	36
3.2.1 Modèle entrée-sortie .....	36
3.2.2 Choix du point de consigne .....	40
<b>4 MATÉRIEL ET MÉTHODES .....</b>	<b>42</b>
4.1 Caractérisation initiale du sol .....	42
4.1.1 Concentration des hydrocarbures dans le sol .....	43
4.1.2 Humidité du sol et CRC .....	43
4.1.3 Rapport C/N/P .....	43
4.1.4 pH .....	44
4.1.5 Granulométrie et densité des grains .....	45

4.1.6 Essais de minéralisation en microcosmes .....	45
4.2 Description du montage expérimental .....	46
4.2.1 Description des colonnes.....	47
4.2.2 Préparation du sol en colonnes.....	48
4.2.3 Humidification de l'air à l'entrée des colonnes.....	48
4.3 Suivi des variables .....	49
4.3.1 Débit d'air .....	50
4.3.2 Oxygène et oxyde de carbone en phase gazeuse.....	50
4.3.3 COV .....	52
4.3.4 Humidité du sol (en ligne).....	53
4.3.5 Température du sol et de l'air .....	53
4.3.6 Biomasse .....	54
4.3.7 Concentrations des hydrocarbures, COT et humidité du sol.....	56
4.4 Méthodologie.....	56
4.4.1 Séquences échelons sur le débit d'air et première estimation d'un modèle empirique.....	57
4.4.2 PRBS sur le débit d'air et modélisation empirique.....	58
4.4.3 Essais en boucle fermée .....	60
4.5 Matériels et méthodes pour les essais dynamiques réalisés sur le terrain .....	60
 5 PRÉSENTATION ET ANALYSE DES RÉSULTATS .....	62
5.1 Caractérisation initiale du sol utilisé .....	62
5.1.1 Propriétés physico-chimiques .....	62
5.1.2 Propriétés microbiologiques.....	64
5.1.3 Propriétés du sol en colonnes .....	65
5.2 Suivi de la volatilisation et de la biodégradation.....	66
5.2.1 Volatilisation des hydrocarbures pétroliers.....	66
5.2.2 Biodégradation des hydrocarbures pétroliers.....	67
5.3 Présentation et analyse des résultats en régime transitoire.....	78
5.3.1 Tests échelons .....	78

5.3.2 Test PRBS .....	86
5.3.3 Essais en boucle fermée .....	100
5.4 Résultats des tests dynamiques réalisés sur le terrain.....	109
6 CONCLUSIONS ET RECOMMANDATIONS .....	112
6.1 Conclusions .....	112
6.2 Recommandations .....	114
RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES.....	116
ANNEXES.....	122

**LISTE DES TABLEAUX**

Tableau 1.1 : Exigences relatives des rejets à l'atmosphère lors d'un traitement <i>in situ</i> des sols .....	4
Tableau 5.1 : Caractérisation physico-chimique du sol .....	63
Tableau 5.2 : Concentrations des COV en fonction du débit d'air.....	67
Tableau 5.3 : Variabilité des analyses C <sub>10</sub> -C <sub>50</sub> .....	68
Tableau 5.4 : Concentrations de COT (colonne 2) .....	73
Tableau 5.5 : Pourcentage de dégradeurs d'hexadécane sur les hétérotrophes totaux (méthode NPP) .....	74
Tableau 5.6 : Paramètres de la fonction de transfert de premier ordre avec délai (colonne no 1) .....	78
Tableau 5.7 : Paramètres de la fonction de transfert de premier ordre avec délai (colonne no 2) .....	79
Tableau 5.8 : Paramètres de la fonction de transfert dans le domaine de Laplace trouvés lors du PRBS .....	93
Tableau 5.9 : Paramètres du contrôleur PI.....	100
Tableau 5.10 :Paramètres de la fonction de transfert dans le domaine de Laplace trouvés lors du GBS (colonne 2).....	104

**LISTE DES FIGURES**

Figure 2.1 : Schéma typique d'une installation d'un traitement par bioventilation <i>in situ</i> .	8
Figure 2.2 : Schématisation de la répartition multiphasique des contaminants.....	12
Figure 2.3 : Répartition des différentes phases de contaminants dans un sol.....	12
Figure 2.4 : Schéma bloc du système en boucle fermée.....	31
Figure 3.1 : Volume de contrôle pour le bilan de masse sur l'oxygène.....	37
Figure 4.1 : Microcosme utilisé pour les tests de minéralisation.....	45
Figure 4.2 : Schéma du montage expérimental.....	47
Figure 4.3 : Schéma de l'humidification de l'air à l'entrée des colonnes.....	49
Figure 4.4 : Schéma illustrant l'emplacement des sondes d'oxygène et de l'anémomètre sur le terrain.....	61
Figure 5.1 : Courbe granulométrique du sol.....	63
Figure 5.2 : Courbe de minéralisation de l'hexadécane en microcosmes.....	65
Figure 5.3 : Concentrations des C <sub>10</sub> -C <sub>50</sub> en fonction du temps (colonne 1).....	70
Figure 5.4 : Concentrations des C <sub>10</sub> -C <sub>50</sub> en fonction du temps (colonne 2).....	70
Figure 5.5 : Concentrations des C <sub>10</sub> -C <sub>50</sub> fractionnés en fonction du temps (colonne 1)...	71
Figure 5.6 : Concentrations des C <sub>10</sub> -C <sub>50</sub> fractionnés en fonction du temps (colonne 2)...	72
Figure 5.7 : Évolution de la croissance bactérienne (sur vase de Petri) : (a) colonne 1; (b) colonne 2.....	76
Figure 5.8 : Évolution de la croissance bactérienne (colonne 2, méthode NPP) : (a) hétérotrophes totaux; (b) dégradeurs d'hexadécane.....	77
Figure 5.9 : Séquences échelons sur le débit d'air (colonne 1) : (a) première séquence; (b) deuxième séquence.....	81
Figure 5.10 : Séquences échelons sur le débit d'air (colonne 2) : (a) première séquence; (b) deuxième séquence.....	82
Figure 5.11 : Séquence échelon pour l'application du PRBS (colonne 1).....	84
Figure 5.12 : Séquence échelon pour l'application du PRBS (colonne 2).....	85

Figure 5.13 : Comportement dynamique de l'oxygène en phase gazeuse lors du PRBS sur le débit d'air (colonne 1).....	88
Figure 5.14 : Comportement dynamique de l'oxygène en phase gazeuse lors du PRBS sur le débit d'air (colonne 2).....	89
Figure 5.15 : Graphique de corrélation des résidus lors du test PRBS (colonne 1).....	91
Figure 5.16 : Graphique de corrélation des résidus lors du test PRBS (colonne 2).....	92
Figure 5.17 : Comportement dynamique du bioxyde de carbone en phase gazeuse et de l'humidité du sol lors du PRBS sur le débit d'air (colonne 1). .....	95
Figure 5.18 : Comportement dynamique du bioxyde de carbone en phase gazeuse et de l'humidité du sol lors du PRBS sur le débit d'air (colonne 2). .....	96
Figure 5.19 : Comportement dynamique de la température du sol lors du PRBS sur le débit d'air (colonne 1).....	98
Figure 5.20 : Comportement dynamique de la température du sol lors du PRBS sur le débit d'air (colonne 2).....	99
Figure 5.21 : Changements sur le point de consigne (colonne 1).....	102
Figure 5.22 : Changements sur le point de consigne (colonne 2) : (a) premier changement; (b) deuxième changement.....	103
Figure 5.23 : Test GBS en boucle fermée (colonne 2). .....	106
Figure 5.24 : Graphique de corrélation des résidus lors du test GBS (colonne 2).....	108
Figure 5.25 : Résultats d'essais dynamiques sur le terrain : (a) mise en marche de la pompe; (b) échelons sur le débit d'air.....	110
Figure II.1 : Calibration du débitmètre-contrôleur (0 à 20 ml/min). .....	127
Figure II.2 : Calibration du débitmètre-contrôleur (0 à 200 ml/min). .....	128
Figure II.3 : Calibration de l'analyseur d'oxygène et de bioxyde de carbone en phase gazeuse. ....	129
Figure II.4 : Lectures des concentrations d'oxygène et de bioxyde de carbone en fonction du débit d'air (mélange de gaz avec 10 % d'oxygène et de bioxyde de carbone)....	130

Figure II.5 : Lectures des concentrations d'oxygène et de bioxyde de carbone en fonction du débit d'air (mélange de gaz avec 20,9% d'oxygène et 0 % de bioxyde de carbone).	131
Figure II.6 : Temps de réponse pour l'analyseur d'oxygène et de bioxyde de carbone en phase gazeuse (de 0 à 15 % pour l'oxygène et de 20 à 5 % pour le bioxyde de carbone).....	132
Figure II.7 : Temps de réponse pour l'analyseur d'oxygène et de bioxyde de carbone en phase gazeuse (20,9 à 10 % pour l'oxygène et de 0 et 10 % pour le bioxyde de carbone).....	133
Figure III.1 : Coefficients d'autocorrélation du signal d'entrée lors du PRBS.....	135
Figure III.2 : Coefficients d'autocorrélation du signal d'entrée utilisé pour la modélisation lors du PRBS.....	136

**LISTE DES ANNEXES**

Annexe I : Calcul de la perte de charge pour le sol et le garnissage dans la colonne.....	123
Annexe II : Courbe de calibration et du temps de réponse des appareils .....	126
Annexe III : Coefficients d'autocorrélation pour le débit d'air lors du PRBS.....	134
Annexe IV : Analyses C <sub>10</sub> -C <sub>50</sub> .....	137

## LISTE DES SIGLES ET ABRÉVIATIONS

a <sub>i</sub>	coefficient(s) du polynôme A
A	polynôme de l'équation générale d'un modèle dynamique entrée-sortie
b <sub>i</sub>	coefficient(s) du polynôme B
B	polynôme de l'équation générale d'un modèle dynamique entrée-sortie
c <sub>i</sub>	coefficient(s) du polynôme C
C	polynôme de l'équation générale d'un modèle dynamique entrée-sortie
d <sub>p</sub>	diamètre moyen des particules
d <sub>i</sub>	coefficient(s) du polynôme D
D	polynôme de l'équation générale d'un modèle dynamique entrée-sortie
e	perturbations agissant sur le système
E	erreur moyenne au carré normalisée
f <sub>i</sub>	coefficient(s) du polynôme F
F	polynôme de l'équation générale d'un modèle dynamique entrée-sortie
g	fonction de transfert (consolidé) du procédé dans le domaine de Laplace
g <sub>c</sub>	fonction de transfert du contrôleur dans le domaine de Laplace
G	débit massique superficiel
H <sub>O2</sub>	constante d'Henry de l'oxygène
I <sub>C<sub>re</sub></sub>	intervalle de confiance des coefficients d'autocorrélation des résidus
I <sub>C<sub>reu</sub></sub>	intervalle de confiance des coefficients de corrélation croisé des résidus et de la variable d'entrée
k	indice du point échantillonné
K	gain en régime permanent du procédé
K <sub>c</sub>	gain du contrôleur
K <sub>i</sub>	gain en régime permanent sur le volume de contrôle
K <sub>La</sub>	coefficient de transfert de matière global
L	hauteur du lit
M <sub>sol</sub>	masse de sol dans la colonne

$n_a$	porosité du sol à l'air
$na$	ordre du polynôme A
$nb$	ordre du polynôme B
$nc$	ordre du polynôme C
$nd$	ordre du polynôme D
$n_e$	fraction volumique en eau
$nf$	ordre du polynôme F
$nk$	nombre de période(s) du délai échantillonné
N	nombre de points expérimentaux
$O_{2ge}$	concentration d'oxygène en phase gazeuse à l'entrée du volume de contrôle
$O_{2gi}$	concentration d'oxygène en phase gazeuse dans le volume de contrôle
$O_{2gsi}$	concentration d'oxygène en phase gazeuse en régime permanent dans le volume de contrôle
$O_{2li}$	concentration d'oxygène en phase aqueuse dans le volume de contrôle
p	probabilité que le signal d'entrée demeure constant pour la période d'échantillonnage
$p_i$	pôle(s) de la fonction de transfert échantillonnée
P	pression de l'air ou matrice (asymptotique) de la fonction de covariance des résidus et de la variable d'entrée
q	opérateur de translation arrière ou fonction de transfert de la trajectoire de référence en boucle fermée dans le domaine de Laplace
Q	débit volumique d'air
$Q_s$	débit d'air volumique en régime permanent
R	constante des gaz
$r_e$	coefficients d'autocorrélation des résidus
$R_e$	fonction de covariance des résidus
$r_{eu}$	coefficients de corrélation croisée des résidus et de la variable d'entrée
$R_{eu}$	fonction de covariance des résidus et de la variable d'entrée
$R_u$	fonction de covariance de la variable d'entrée

$R_{O2L}$	taux de consommation d'oxygène en phase aqueuse
$s_i$	pôle(s) de la fonction de transfert dans le domaine de Laplace
$t$	temps
$T$	température
$u$	variable d'entrée ou variable manipulée
$u_i$	valeur initiale de la variable d'entrée (débit d'air)
$u_f$	valeur finale de la variable d'entrée (débit d'air)
$u_m$	variable manipulée lors d'une simulation sans perturbations
$V$	volume de sol dans la colonne
$V_i$	volume de contrôle
$y$	variable de sortie ou variable contrôlée
$y_i$	variable de sortie sur le volume de contrôle
$y_m$	variable de sortie prédictive par le modèle
$y_{sp}$	point de consigne de la variable contrôlée
$\Delta t$	période d'échantillonnage
$\Delta P$	perte de charge
$\alpha$	délai du procédé dans le domaine de Laplace en boucle fermée
$\varepsilon$	erreur de prédiction du modèle (résidus)
$\mu$	viscosité de l'air
$\theta$	délai du procédé dans le domaine de Laplace
$\rho$	densité de l'air
$\rho_g$	densité des grains
$\tau$	constante de temps dominante du procédé
$\tau_i$	constante(s) de temps du procédé
$\tau_I$	constante de temps intégrale
$\tau_{ni}$	constante de temps naturelle sur le volume de contrôle
$\tau_r$	constante de temps en boucle fermée
$\tau_{1i}$	première constante de temps sur le volume de contrôle

$\tau_{2i}$	deuxième constante de temps sur le volume de contrôle
$\omega$	fréquence optée pour l'application de la séquence binaire générale
$\xi_i$	zéro sur le volume de contrôle
$\zeta_i$	coefficent d'amortissement sur le volume de contrôle
ADN	acide désoxyribonucléique
ARMAX	modèle autorégressif à moyenne mobile avec une variable d'entrée exogène
ARX	modèle autorégressif avec une variable d'entrée exogène
BJ	modèle de Box-Jenkins
C/N/P	rapport carbone/azote/phosphore
COT	carbone organique total
COV	composés organiques volatils
CRC	capacité de rétention de l'eau au champ
$C_{10}-C_{20}$	hydrocarbures pétroliers avec une chaîne de 10 à 20 carbones
$C_{10}-C_{50}$	hydrocarbures pétroliers avec une chaîne de 10 à 50 carbones
$C_{20}-C_{30}$	hydrocarbures pétroliers avec une chaîne de 20 à 30 carbones
$C_{30}-C_{40}$	hydrocarbures pétroliers avec une chaîne de 30 à 40 carbones
$C_{40}-C_{50}$	hydrocarbures pétroliers avec une chaîne de 40 à 50 carbones
GBS	séquence binaire générale
GERLED	groupe d'étude et de restauration des lieux d'élimination des déchets dangereux
GERSOL	groupe d'étude et de restauration des sols contaminés
MEF	Ministère de l'Environnement et de la Faune du Québec
MSM	milieu salin minimal
NPP	nombre le plus probable
NTK	azote total Kjeldahl
OE	modèle de sortie avec erreur
PCP	pentachlorophénol

pH	<b>potentiel hydrogène</b>
PI	<b>algorithme de contrôle proportionnel-intégral</b>
PID	<b>algorithme de contrôle proportionnel-intégral-dérivé</b>
PRBS	<b>séquence binaire pseudo-aléatoire</b>
PT	<b>phosphore total</b>
RDT	<b>réflectométrie dans le domaine du temps</b>
UFC	<b>unités formant des colonies</b>
USDA	<b>Ministère de l'Agriculture des États-Unis</b>

## 1 INTRODUCTION

### 1.1 CONTEXTE

Les hydrocarbures peuvent être utilisés comme carburants, solvants ainsi que réactifs dans les procédés industriels pharmaceutiques, de textiles et de plastiques ; l'institut de pétrole américain rapporte une consommation quotidienne de 14 000 000 barils de pétrole brut en 1994 aux États-Unis (Reisinger, 1995). Avec une telle production et utilisation de cette classe de produits pétrochimiques, il n'est pas surprenant de constater la contamination de nombreux sites. Les sources de contamination d'hydrocarbures incluent : les réservoirs désuets et troués, la rupture de tuyaux, les déversements accidentels et l'enfouissement de déchets chimiques.

Au Québec, le ministère de l'Environnement et de la Faune (MEF) administre deux programmes relatifs à la décontamination des sols (Samson, 1994). Le premier est le groupe d'étude et de restauration des lieux d'élimination de déchets dangereux (GERLED), créé en 1983, qui doit voir à l'inventaire des anciens lieux d'élimination de déchets dangereux de même qu'à la caractérisation et à la restauration des ces sites, lorsque requis. Le deuxième, le groupe d'étude et de restauration des sols contaminés (GERSOL), mis sur pied en 1988, a pour objectif principal la réhabilitation des terrains contaminés en vue d'en permettre une réutilisation sécuritaire.

En mai 1993, la banque de données de GERSOL comportait quelques 800 lieux contaminés et le GERLED identifiait 346 lieux en avril 1991. De plus, un inventaire des terrains fédéraux potentiellement contaminés a porté sur 246 installations comprenant 391 sites. Par ailleurs, le ministère des Ressources naturelles estime à 17 500 le nombre de réservoirs laissant échapper des hydrocarbures (Samson, 1994).

La fuite d'hydrocarbures dans les sols est un problème environnemental important. En effet, lorsqu'un liquide s'écoule dans une formation géologique tel un sol, il percole vers le bas et s'étend latéralement. Pour de faibles volumes de contaminants, ceux-ci peuvent être retenus dans les interstices des particules de sol ; mais pour des fuites importantes, les contaminants peuvent atteindre la nappe phréatique et ainsi polluer les eaux souterraines. De plus, l'accumulation de vapeurs d'hydrocarbures près de sous-sol d'édifices peut causer des risques d'explosion. La dégradation de lignes d'utilités est aussi possible lorsque mises en contact avec des hydrocarbures s'écoulant dans le sol. C'est pourquoi le ministère des Ressources naturelles exige d'ici 2001, le remplacement de tous les réservoirs souterrains en acier non protégé contre la corrosion.

La restauration des sites contaminés peut s'effectuer par des technologies thermiques, physico-chimique et biologiques. Pour les terrains contaminés aux hydrocarbures pétroliers, le traitement biologique est souvent utilisé (Samson, 1994 ; Reisinger, 1995 ; Alexander, 1994).

Les procédés biologiques de décontamination des sols sont basés sur la capacité qu'ont les micro-organismes d'utiliser les polluants comme substrat pour leur croissance. Ces polluants sont généralement transformés en composés moins toxiques. Lors d'un traitement biologique des sols, le processus de biodégradation est accéléré en procurant aux micro-organismes un environnement favorable à leur développement.

Des traitements de type *ex situ* et *in situ* peuvent s'appliquer. Le traitement *ex situ*, après excavation des sols, s'effectue sur le site ou à l'extérieur de ce dernier, tandis que le traitement *in situ* est accompli sur le site même sans aucune excavation du sol. Un traitement biologique *in situ* est souvent la seule alternative technique viable puisque dans bien des cas, la profondeur de sol contaminé est trop grande, des infrastructures ne permettent pas l'excavation des sols et parfois les volumes à excaver sont trop grands.

Une technique *in situ* éprouvée pour le traitement des sols contaminés aux hydrocarbures est la bioventilation *in situ*. L'Agence de Protection Environnementale des États-Unis a réalisé une importante étude portant sur la bioventilation *in situ* sur plus de 120 sites contaminés aux hydrocarbures pétroliers (U.S.EPA, 1995a ; U.S.EPA, 1995b). Cette étude a démontré la faisabilité d'un traitement par bioventilation *in situ* pour la majorité des sites contaminés aux hydrocarbures volatils et semi-volatils.

## 1.2 PROBLÉMATIQUE

La bioventilation *in situ*, quoique reconnue comme une technique de décontamination efficace, comporte cependant certains aspects problématiques. Les deux principales difficultés rencontrées lors d'un traitement par bioventilation *in situ* sont le suivi des niveaux de contamination dans le sol et la volatilisation des hydrocarbures.

La première difficulté, relative au suivi des niveaux de contamination dans le sol, est en général inhérente aux techniques de traitement biologique *in situ*. Le volume de sol contaminé à traiter étant souvent très grand, il est difficile de faire un suivi représentatif de la biodégradation et des niveaux de contamination du sol dans le temps. En effet, la distribution des contaminants et la nature du sol sont hétérogènes. Par conséquent, un nombre considérable d'échantillons de sol doit être prélevé pour démontrer qu'il y a (ou n'a plus) d'activité de biodégradation ou bien que les critères de décontamination soient atteints.

Le deuxième aspect problématique du procédé de bioventilation *in situ* est dû à la volatilisation d'une fraction d'hydrocarbures. En effet, une proportion importante de composés organiques volatils (COV) est souvent volatilisée et non biodégradée lors d'un traitement par bioventilation *in situ*. Les exigences sur les concentrations d'hydrocarbures des rejets gazeux pour un traitement *in situ* sont données au tableau 1.1 ; il est à noter qu'elles portent seulement sur le benzène, le toluène et les xylynes. Ces

composés sont utilisés comme paramètres de référence pour les rejets gazeux d'un traitement *in situ* des sols.

Tableau 1.1 : Exigences relatives des rejets à l'atmosphère lors d'un traitement *in situ* des sols

Composé	Concentration des rejets ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )
benzène	40
toluène	200
xylènes	230

(tiré de MEF, 1996)

Ces exigences très sévères, quant aux concentrations permises dans les rejets gazeux, ont pour but d'obliger l'utilisation d'un système de traitement de l'air très performant, souvent le charbon activé (MEF, 1996). Le traitement de ces rejets gazeux peut occasionner des dépenses supplémentaires importantes.

Il serait donc intéressant de réduire la volatilisation des hydrocarbures ainsi que d'effectuer un meilleur suivi de l'activité de biodégradation et des niveaux de contamination dans le sol. Dans le but de pallier ces deux aspects problématiques, le présent projet porte sur l'étude d'un système de contrôle qui serait incorporé au procédé de bioventilation *in situ*. Dans les chapitres subséquents du mémoire, il sera expliqué comment l'ajout d'un système de contrôle devrait remédier aux deux aspects problématiques mentionnés plus haut.

### 1.3 HYPOTHÈSE DE RECHERCHE ET OBJECTIFS

L'hypothèse de recherche de ce projet de maîtrise suggère que l'ajout d'un système de contrôle au procédé de bioventilation *in situ* permette de favoriser la biodégradation tout en réduisant la volatilisation des hydrocarbures pétroliers.

Afin de vérifier l'hypothèse de recherche, les trois objectifs suivants sont avancés, soit :

1. caractériser le comportement en régime transitoire (la dynamique) pour un procédé de bioventilation *in situ* ;
2. modéliser la dynamique du procédé ;
3. concevoir et faire la mise à l'essai d'un algorithme de contrôle pour ce procédé.

L'implantation d'un système de contrôle au procédé de bioventilation *in situ* doit commencer par l'objectif premier. Il sera nécessaire *a priori* de choisir un système (à l'échelle de laboratoire) représentant d'une manière satisfaisante le procédé de bioventilation *in situ*. Pour ce, il faudra définir ce système et choisir la ou les variables manipulée(s) et contrôlée(s) du procédé pour le système asservi désiré. Une fois ces variables sélectionnées, des changements sur la ou les variables manipulée(s) seront effectués pour perturber le système. Ceci permettra une variation dans le temps de la ou des variable(s) (potentiellement) contrôlée(s). Ainsi, la caractérisation de la dynamique du système pourra être réalisée, permettant donc l'atteinte du premier objectif du projet. La caractérisation de la dynamique du système facilite le choix du type d'algorithme de contrôle.

Ensuite, le deuxième objectif du projet consiste à représenter la dynamique du système selon un modèle mathématique. Ce modèle devra représenter adéquatement le comportement du système en régime transitoire afin de quantifier la dynamique du système.

À la suite de l'atteinte des deux objectifs précédents, la réalisation du troisième objectif sera possible : la conception et la mise à l'essai de l'algorithme de contrôle sur un système représentatif du procédé de bioventilation *in situ*. Ainsi, pour le type d'algorithme de contrôle choisi, les paramètres du contrôleur seront déterminés à l'aide

du modèle mathématique. La stratégie de contrôle sera conçue de manière à satisfaire l'hypothèse de recherche.

#### **1.4 CONTENU ET ORGANISATION DU MÉMOIRE**

Le présent mémoire est construit en quatre parties. Le chapitre 2 inclut les principes théoriques pertinents sur le procédé de bioventilation *in situ*, d'une part, ainsi que la théorie sur l'identification des systèmes et sur la conception d'un contrôleur, d'autre part. Le choix des variables manipulée et contrôlée ainsi que l'analyse du système de contrôle proposé sont présentés au chapitre 3.

Le chapitre 4 décrit le matériel et les méthodes employés pour les travaux. Les méthodes analytiques, une description du montage et la méthodologie suivie pour atteindre les objectifs du projet sont fournies. Le chapitre 5 contient les résultats obtenus pour les travaux réalisés et comprend une analyse portant sur : la caractérisation du sol, le suivi de la volatilisation et de la biodégradation ainsi que les essais en régime transitoire effectués au laboratoire et sur le terrain.

## 2 CONCEPTS THÉORIQUES

Ce chapitre résume les concepts théoriques relatifs au projet et permet de mieux comprendre la démarche conduisant à l'atteinte des objectifs du projet. La première section décrit le procédé de bioventilation *in situ* ; la deuxième, les facteurs à considérer lors d'un traitement par bioventilation *in situ*. La troisième section comprend une description du comportement en régime transitoire du procédé de traitement, selon les études réalisées jusqu'à ce jour. La quatrième section relate les principes théoriques portant sur l'identification des systèmes. Enfin, la cinquième section détaille l'approche utilisée pour concevoir l'algorithme de contrôle.

### 2.1 DESCRIPTION DU PROCÉDÉ DE BIOVENTILATION *IN SITU*

Il est bien connu que certains micro-organismes présents dans le sol ont les capacités de biodégrader plusieurs composés organiques (Alexander, 1994 ; Atlas, 1991). Cependant, l'oxygène est souvent l'élément limitant le taux de biodégradation des contaminants dans le sol (U.S.EPA, 1995a).

La bioventilation *in situ* consiste à fournir de l'air dans la zone vadose (zone non saturée d'eau) afin de permettre le transfert d'oxygène pour stimuler la biodégradation aérobie des contaminants par la microflore indigène du sol. Le débit d'air est alimenté à l'aide d'un système de pompe(s) soufflante(s) et de puits. Une illustration du procédé est donnée à la figure 2.1. Il est à souligner que l'air dans la zone vadose peut être injecté ou aspiré par les pompes et ensuite réinjecté dans les puits. De plus, l'air à la sortie des pompes ou des puits est généralement traité.

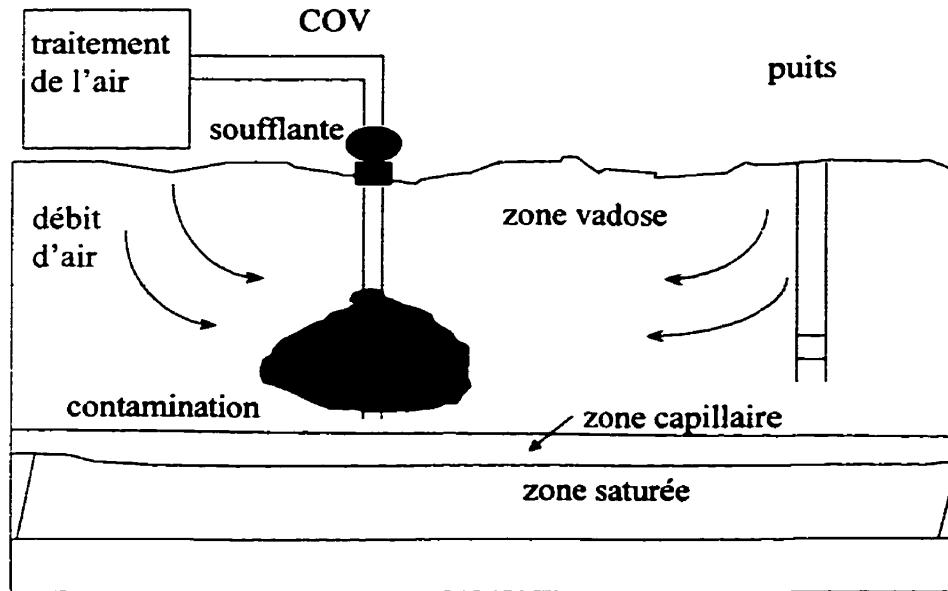


Figure 2.1 : Schéma typique d'une installation d'un traitement par bioventilation *in situ*.

La bioventilation *in situ* est une des techniques les moins coûteuses et des plus efficaces pour la décontamination de la zone vadose (U.S.EPA, 1995a). La technique, jusqu'à ce jour, est utilisée surtout pour les sites contaminés aux hydrocarbures pétroliers ; la bioventilation *in situ* s'applique particulièrement aux hydrocarbures semi-volatils qui se retrouvent principalement dans le diesel, le kérósène, l'huile à chauffage et l'essence à avion. En d'autres termes, la bioventilation *in situ* est appropriée pour des composants :

- se biodégradant à des taux résultant en une consommation d'oxygène supérieure au taux de diffusion d'oxygène provenant de l'atmosphère ;
- se biodégradant à des taux suffisamment élevés pour permettre leur biodégradation *in situ* avant leur volatilisation.

De plus, la perméabilité du sol à l'air doit être suffisante pour permettre la circulation d'une quantité suffisante d'air interstiel, donnant ainsi une bonne distribution de

l'oxygène dans la zone contaminée. C'est pourquoi les sols ayant des fractions importantes d'argiles ne sont pas souvent appropriés pour le traitement par bioventilation *in situ*.

Il convient de mentionner que le procédé d'extraction des vapeurs *in situ* est très semblable au procédé de bioventilation *in situ*. Le schéma donné à la figure 2.1 est aussi valide pour un traitement par extraction des vapeurs *in situ*. Cependant, l'objectif principal du procédé d'extraction des vapeurs *in situ* est de volatiliser les contaminants à la phase gazeuse. Ceux-ci sont ainsi emportés avec l'air circulant dans la zone vadose pour ensuite être rejetés à l'atmosphère et/ou traités.

C'est pourquoi des débits d'air plus élevés sont appliqués pour un traitement par extraction des vapeurs *in situ* par rapport à un traitement par bioventilation *in situ* (Dupont, 1993). L'extraction des vapeurs *in situ* est surtout utilisée pour le traitement de sites contaminés aux hydrocarbures volatils, tels ceux retrouvés en partie dans l'essence (Johnson *et al.*, 1990a ; Johnson *et al.*, 1990b).

En conséquence, les processus de décontamination dominants sont la volatilisation des contaminants pour le procédé d'extraction des vapeurs *in situ* et leur biodégradation pour le procédé de bioventilation *in situ*. Évidemment, la volatilisation et la biodégradation ont lieu pour les deux méthodes de traitement.

## 2.2 FACTEURS INFLUENÇANT UN TRAITEMENT PAR BIOVENTILATION *IN SITU*

### 2.2.1 Micro-organismes indigènes dégradeurs d'hydrocarbures

La première condition à la biodégradation des hydrocarbures est la présence d'une microflore indigène capable d'utiliser la molécule organique comme source de carbone et/ou comme source d'énergie pour sa synthèse cellulaire. En général, les concentrations

en biomasse retrouvées dans le sol sont de l'ordre de  $10^6$  NPP / g sec (Atlas et Bartha, 1946). Les bactéries pouvant dégrader les hydrocarbures pétroliers représentent de 1 à 10 % de la population microbienne totale (Atlas, 1991).

Par ailleurs, les populations bactériennes exposées à des hydrocarbures peuvent s'adapter aux nouvelles conditions et la proportion de bactéries hydrocarbonoclastes augmente généralement. Bien sûr la quantité de bactéries pouvant dégrader des hydrocarbures est également sensible à différents facteurs environnementaux. Par conséquent, dû à la nature transitoire des populations microbiennes, il est difficile d'évaluer avec précision les taux cinétiques de biodégradation d'hydrocarbures pétroliers lors d'un traitement par bioventilation *in situ*.

De plus, il est considéré en général, que la biodégradation des hydrocarbures se produit en phase aqueuse (U.S.EPA, 1995a). C'est pourquoi l'évaluation de la cinétique de biodégradation basée sur la concentration de substrat (p.ex. de type Monod) est très difficile. En effet, la cinétique de biodégradation est compliquée par la biodisponibilité des hydrocarbures et régie au moins en partie par leur solubilité.

### 2.2.2 Perméabilité du sol à l'air

La perméabilité intrinsèque d'un sol peut être définie comme étant la capacité qu'a un sol pour l'écoulement d'un fluide. En assumant que la microflore indigène puisse dégrader les contaminants retrouvés sur le site, la perméabilité du sol à l'air est probablement le facteur le plus important pour que la bioventilation *in situ* soit efficace pour la décontamination de la zone vadose (U.S.EPA, 1995a).

Tel que mentionné à la section 2.1, le sol doit être assez perméable à l'air pour assurer une bonne distribution de l'oxygène dans la zone contaminée. La perméabilité du sol à l'air dépend de la taille des particules, la structure, la porosité et l'humidité du sol. En

général, lorsque la perméabilité du sol à l'air est supérieure à 0,1 Darcy, l'échange d'air interstiel sera adéquat pour un traitement par bioventilation *in situ* (U.S.EPA, 1995a).

### **2.2.3 Répartition des contaminants**

Il est important de connaître la répartition possible des contaminants dans la zone vadose pour mieux comprendre les processus de décontamination lors d'un traitement par bioventilation *in situ*. Suite à un déversement d'hydrocarbures, les contaminants peuvent se retrouver sous quatre phases dans la matrice de sol :

1. sorbée aux particules de sol ;
2. en phase gazeuse dans l'air interstiel ;
3. en phase aqueuse ;
4. et en phase libre résiduelle d'hydrocarbures pétroliers.

Les contaminants peuvent migrer d'une phase à l'autre selon les conditions retrouvées dans la zone vadose et les figures 2.2 et 2.3 illustrent la répartition possible des contaminants.

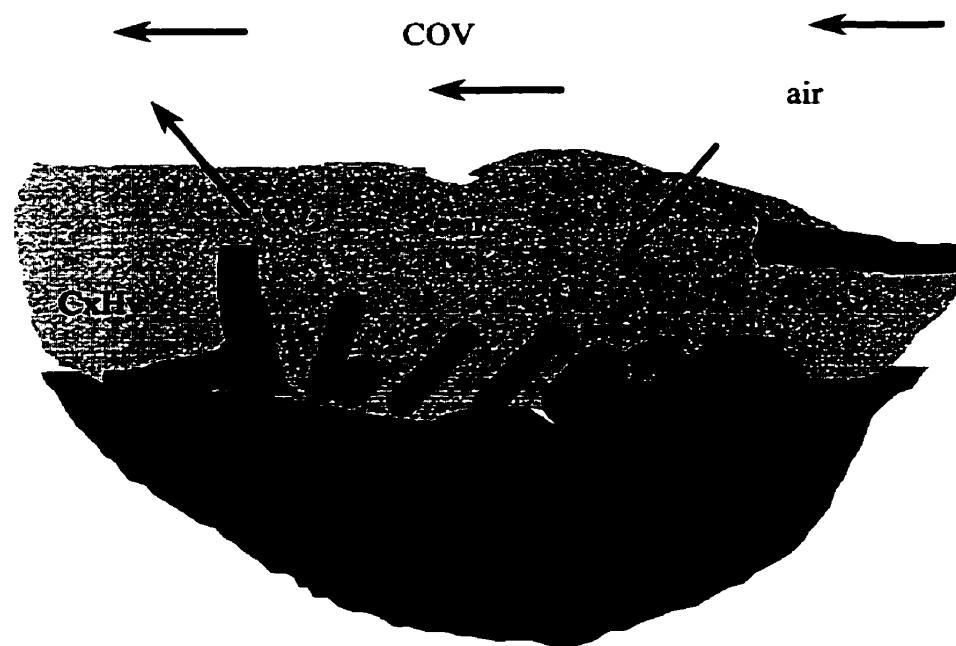


Figure 2.2 : Schématisation de la répartition multiphasique des contaminants.

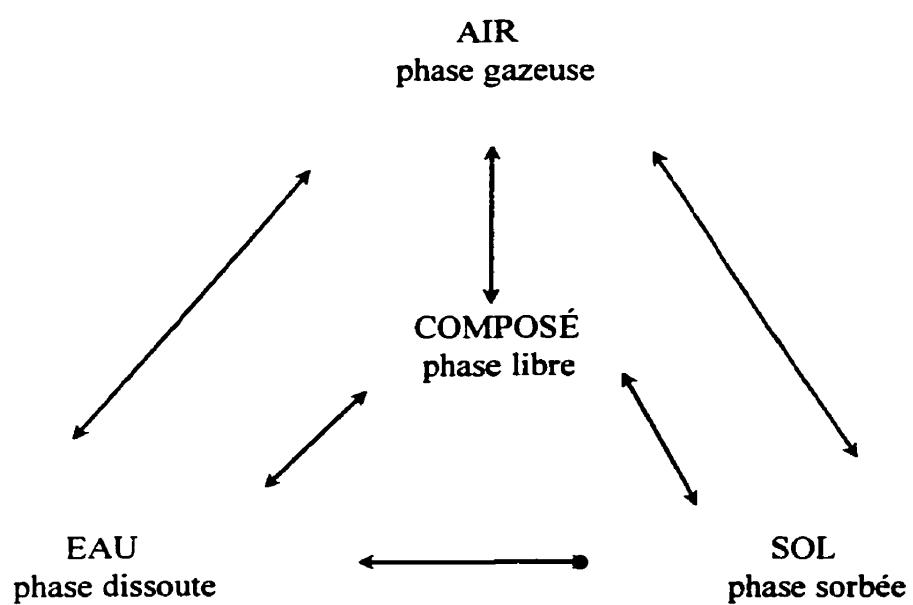


Figure 2.3 : Répartition des différentes phases de contaminants dans un sol.

Lorsqu'il y a équilibre local des phases dans la matrice du sol, des relations connues peuvent être utilisées pour décrire la répartition des composants. En effet, plusieurs modèles multiphasiques de transport des contaminants font appel à certaines des relations décrites ci-dessous (Benson *et al.*, 1993 ; Rathfelder *et al.*, 1991).

Entre la phase libre d'hydrocarbures et la phase gazeuse, les lois de Raoult et des gaz parfaits sont habituellement utilisées (Johnson *et al.*, 1990a ; Hayden *et al.*, 1994). Pour les phases libre et aqueuse, la concentration en phase aqueuse peut être évaluée en multipliant la fraction de contaminant par sa solubilité aqueuse (U.S.EPA, 1995a).

La loi d'Henry décrit la partition des composants entre les phases gazeuse et aqueuse. Johnson *et al.* (1990a) évaluent qu'à des concentrations d'hydrocarbures dans le sol supérieures à 500 mg/kg, la concentration d'hydrocarbures en phase gazeuse pour un équilibre local est déterminée par la loi de Raoult et par la loi d'Henry pour des concentrations d'hydrocarbures dans le sol inférieures à 500 mg/kg. Des concentrations de 100 à 1000 mg/kg sont données par U.S.EPA (1995a).

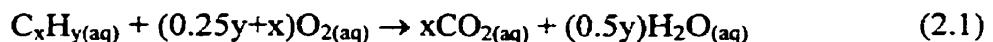
La sorption des contaminants aux particules de sols est un phénomène complexe qui est habituellement décrit par des isothermes de sorption. Les isothermes d'adsorption linéaire ou non-linéaire de Langmuir ou de Freundlich peuvent être considérés. Généralement une isotherme linéaire reliant la quantité de contaminant sorbée à la matrice de sol avec la concentration en phase aqueuse du contaminant est utilisée (U.S.EPA, 1995a ; Rathfelder *et al.*, 1991 ; Benson *et al.*, 1993).

#### 2.2.4 Présence d'accepteurs d'électrons

Le processus de biodégradation des hydrocarbures pétroliers se produit principalement en condition aérobie (Cookson, 1995 ; U.S.EPA, 1995a). L'oxygène, jouant le rôle d'accepteur d'électrons, doit donc être accessible aux micro-organismes. Tel qu'indiqué

plus haut, celui-ci est souvent l'élément limitant la biodégradation des contaminants. Pour maintenir des conditions aérobies lors du traitement d'un sol, on suggère des concentrations d'oxygène en phase gazeuse (vol/vol) variant de 2 % (Dupont, 1993), 5% (U.S.EPA, 1995b) à 10% (U.S.EPA, 1991).

Pour une quantité de biomasse constante, une réaction de minéralisation peut décrire la biodégradation des hydrocarbures :



On peut constater qu'environ 3,3 à 3,5 g d'oxygène sont consommés pour la minéralisation d'un g d'hydrocarbures, et ce pour la plupart des hydrocarbures.

Par ailleurs, pour vérifier si la microflore indigène d'un sol a la capacité de dégrader les contaminants cibles, il est généralement suggéré d'effectuer l'analyse des concentrations d'air interstiel pour déterminer si le site contaminé est limité en oxygène (U.S.EPA, 1995b). Si les concentrations d'oxygènes interstitiels sont faibles (p.ex. moins de 5%), ceci révèle dans bien des cas que les micro-organismes indigènes utilisent l'oxygène retrouvé dans les pores du sol et peuvent dégrader certains contaminants retrouvés sur le site. Dans ce cas la bioventilation *in situ* pourrait s'avérer être la technique appropriée pour la décontamination du site.

## 2.2.5 Humidité du sol

L'humidité du sol joue un rôle particulier sur le procédé de bioventilation *in situ* au niveau de la biodégradation des hydrocarbures pétroliers et sur la perméabilité du sol à l'air. D'une part, une quantité minimale d'eau est nécessaire pour rendre efficace la solubilisation des hydrocarbures pétroliers et maintenir une humidité suffisante dans la cellule bactérienne. D'autre part, l'humidité du sol influence la perméabilité du sol à l'air et donc la distribution de l'oxygène.

La capacité de rétention de l'eau au champ (CRC) est le paramètre de référence en ce qui à trait au contenu en eau d'un sol. En effet, contrairement au pourcentage d'humidité, le pourcentage de la CRC tient compte de la texture du sol. Ainsi, un pourcentage donné de la CRC a la même signification, en terme d'eau disponible à la biodégradation, pour un sol argileux que pour un sol sablonneux.

À ce jour une corrélation reliant l'humidité du sol à l'utilisation d'oxygène par les micro-organismes indigènes est difficile à évaluer (U.S.EPA, 1995a). D'une manière générale, le contenu en eau du sol devrait être de 50 à 80% de la CRC pour assurer la faisabilité de la biodégradation des hydrocarbures pétroliers (Dupont, 1993).

Par ailleurs, lors d'un traitement par ventilation, si l'humidité de l'air est supérieure à l'humidité de saturation pour une température locale du sol, il y a condensation de l'eau dans la matrice de sol. Ceci peut changer la répartition des contaminants miscibles et influencer les taux d'évaporation des contaminants (Lingineni et Dhir, 1992). De plus, pour des contaminants immiscibles, une couche d'eau peut se former sur ceux-ci et ralentir leur volatilisation. Évidemment, l'évaporation de l'eau du sol influence également la répartition des contaminants.

## 2.2.6 Potentiel hydrogène

La plupart des micro-organismes qui dégradent les hydrocarbures pétroliers sont des neutrophiles. La plupart des sols possèdent un potentiel hydrogène (pH) entre 5 et 9 et l'utilisation de l'oxygène par les micro-organismes lors d'un traitement par bioventilation *in situ* est très peu influencée pour des sols dans cet intervalle de pH (U.S.EPA, 1995a). En général, une valeur de pH entre 6.5 et 7.5 (qui est près du pH intracellulaire de plusieurs bactéries) est favorable aux micro-organismes dégradeurs d'hydrocarbures pétroliers (Nyer, 1996).

Enfin, le pH d'un sol influence la quantité de bioxyde de carbone retrouvée en phase gazeuse lors d'un traitement par bioventilation *in situ*. En effet, une corrélation significative entre la valeur du pH d'un sol et la production de bioxyde de carbone en phase gazeuse a pu être trouvée (U.S.EPA, 1995a). Ceci peut résulter de la formation de carbonates due à l'évolution du bioxyde de carbone produit lors de la biodégradation.

### **2.2.7 Température du sol**

La température du sol peut influencer les taux de biodégradation d'hydrocarbures pétroliers. Elle intervient sur la biodisponibilité des contaminants en affectant leur répartition dans la matrice de sol, d'une part, et sur le métabolisme microbien, d'autre part. La plage de température favorable à la biodégradation des hydrocarbures pétroliers est située entre 30 et 40°C (Atlas, 1991).

Les intervalles de températures pour la croissance des micro-organismes sont très larges. Les bactéries sont généralement divisées selon trois groupes : les thermophiles qui croissent à des températures supérieures à 55°C ; les mésophiles qui vivent à des températures situées entre 20 et 45°C ; et les psychrophiles qui croissent entre 0 et 20°C. Pour chaque micro-organisme il existe une température minimale et maximale où la croissance n'est pas possible, et une température où la croissance est généralement maximale. Cette croissance la plus forte a presque toujours lieu près de la température maximale permettant encore la croissance du micro-organisme (Nyer, 1996).

### **2.2.8 Nutriments**

Pour assurer la croissance des micro-organismes, des nutriments doivent être présents en quantité suffisante. Les nutriments sont requis comme composant de la biomasse microbienne. L'azote et le phosphore sont les nutriments les plus importants et ceux qui peuvent le plus limiter la croissance microbienne (U.S.EPA, 1995a). Généralement, pour

s'assurer que les nutriments ne limitent pas la croissance microbienne, le rapport carbone/azote/phosphore (C/N/P) de 100:10:1 doit être respecté (Dupont, 1993).

#### **2.2.9 Concentration des contaminants**

La concentration des contaminants peut influencer leur biodégradation. Des concentrations trop élevées d'hydrocarbures pétroliers peuvent résulter en une diminution du taux de biodégradation due à un effet de toxicité. En général, des concentrations d'hydrocarbures pétroliers en excès de 25 000 mg/kg sont considérées toxiques pour les bactéries aérobies (U.S.EPA, 1995c). Par ailleurs, des concentrations d'hydrocarbures pétroliers très faibles peuvent aussi causer une diminution du taux de biodégradation.

Il est difficile de relier et quantifier les taux de biodégradation pour le procédé de bioventilation *in situ* à la concentration d'hydrocarbures pétroliers (U.S.EPA, 1995a). Par contre, pour des concentrations d'hydrocarbures pétroliers supérieures à environ 100 à 1000 mg/kg, la biodisponibilité des hydrocarbures est probablement limitée par leur solubilisation (U.S.EPA, 1995a). De surcroît, il a été observé que les taux de biodégradation diminuent avec le temps, probablement dû au fait que les fractions d'hydrocarbures changent aussi avec le temps puisque les composés plus dégradables et mobiles sont enlevés en premier lieu (U.S.EPA, 1995a).

### **2.3 COMPORTEMENT EN RÉGIME TRANSISTOIRE DU PROCÉDÉ DE BIOVENTILATION *IN SITU***

Une revue des expériences réalisées et des divers modèles mathématiques développés pour les procédés d'extraction des vapeurs *in situ* et de bioventilation *in situ* peut être utile à l'élaboration du système de contrôle. En effet, des renseignements judicieux sur la dynamique de la volatilisation et de la biodégradation des hydrocarbures pétroliers peuvent découler d'études antérieures.

L'écoulement des fluides, le transport, le transfert de masse et la disparition des contaminants retrouvés dans la zone vadose sont des phénomènes extrêmement complexes. Les équations représentant ces phénomènes sont difficiles à résoudre et requièrent la connaissance de nombreuses propriétés physiques de la matrice du sol, des fluides en écoulement et des contaminants retrouvés dans la zone vadose (Lang *et al.*, 1997 ; Nyer, 1996).

Les modèles développés pour les procédés d'extraction des vapeurs *in situ* et de bioventilation *in situ* sont basés sur l'écoulement de l'air en milieu poreux ou sur le transport multiphasique des contaminants (Nyer, 1996). Les deux phénomènes peuvent aussi être inclus dans des modèles plus sophistiqués.

Les modèles d'écoulement de l'air permettent de simuler les profils (en deux ou trois dimensions) de distribution de l'air dans la zone vadose. L'utilisateur doit fournir un débit d'air minimal qu'il juge suffisant pour l'application envisagée. Selon les résultats des simulations, l'utilisateur peut choisir les distances entre les puits et le type de crêpines appropriées.

Certains modèles permettent aussi d'estimer la quantité hydrocarbures pétroliers volatilisés pour une phase libre de composition connue ou posée (Nyer, 1996). Ainsi, pour un profil d'écoulement d'air dans la zone vadose, la concentration d'hydrocarbures en phase gazeuse peut être déterminée avec la loi de Raoult ; la quantité d'hydrocarbures enlevée par volatilisation de la phase libre peut alors être estimée (Mohr et Mezr, 1995).

Les modèles de transport multiphasique permettent la simulation des procédés d'extraction des vapeurs *in situ* et de bioventilation *in situ* pour suivre la concentration des contaminants dans le temps selon une configuration de traitement donnée. L'objectif de ces modèles est généralement de prédire le temps requis pour atteindre les critères de décontamination d'un site.

### 2.3.1 Volatilisation des hydrocarbures pétroliers

Lingineni et Dhir (1992) ont simulé le procédé d'extraction des vapeurs *in situ* avec un modèle multicomposant, non-isotherme, pour un écoulement unidimensionnel par advection ne considérant pas la dispersion des contaminants. Seule la phase gazeuse est mobile et le transfert de masse des composants était restreint entre les phases organique et gazeuse. Ils ont également réalisé des expériences en colonne. La comparaison entre les prédictions du modèle et les données expérimentales était bonne.

Les essais au laboratoire étaient effectués sur une colonne de 19 L et les débits d'air ont été variés entre 35 et 234 L/min. Les résultats expérimentaux démontrent que la concentration d'alcool éthylique en phase gazeuse atteint l'équilibre rapidement au contact de l'air. De plus, la phase gazeuse était saturée en alcool éthylique même pour un débit d'air de 234 L/min. Des observations similaires ont aussi été notées par Johnson *et al.* (1990b) ainsi que Hayden *et al.* (1994). Lingineni et Dhir (1992) expliquent ceci, en partie, par le fait que l'aire interfaciale occupée par la phase libre dans le milieu poreux est très élevée.

Rathfelder *et al.* (1991) ont développé un modèle pour le procédé d'extraction des vapeurs *in situ* pouvant simuler le transfert des contaminants pour les phases libre, aqueuse, sorbée et gazeuse. Seule la phase gazeuse était considérée mobile et les termes d'advection et de dispersion étaient considérés. La répartition des contaminants dans les autres phases était régie selon les lois d'équilibres retrouvées à la section 2.2.3. Les résultats de modélisation se comparent bien avec des données expérimentales de tests en colonnes. Ils ont aussi effectué des études de sensibilité sur le coefficient de transfert de masse entre les phases libre organique et gazeuse qui démontraient que les concentrations des hydrocarbures pétroliers en phase gazeuse atteignaient l'équilibre (local) rapidement.

Ho *et al.* (1994) ont développé un modèle de transport isotherme multicomposant d'écoulement unidimensionnel pour simuler le procédé d'extraction des vapeurs *in situ* et

prédir la variation temporelle et spatiale d'un mélange liquide d'hydrocarbures pétroliers. Le modèle a été comparé avec des données expérimentales pour des tests en colonnes.

Les résultats démontrent qu'il y a une évaporation sélective des hydrocarbures plus volatils ce qui crée plusieurs fronts d'évaporation le long de la colonne. La vitesse du front d'évaporation spatial des hydrocarbures dépend de la volatilité de ceux-ci dans le mélange liquide (loi de Raoult). De plus, à chaque front d'évaporation la condensation d'hydrocarbures moins volatils a lieu, ce qui cause, après un certain temps, leur accumulation en aval de la colonne. Ho *et al.* (1994) expliquent ce phénomène par la présence d'hydrocarbures plus volatils dans la matrice de sol en aval des fronts d'évaporation ; ce qui a pour effet de réduire la pression partielle des composés moins volatils. Enfin, ceci implique que pour des conditions d'équilibre local, la concentration gazeuse de l'effluent d'hydrocarbures pétroliers sera régie par la loi de Raoult, et ce pour les compositions de liquide organique retrouvées dans la zone contaminée en aval de la colonne.

Il convient de rappeler que les concentrations des hydrocarbures pétroliers en phase gazeuse peuvent généralement atteindre l'équilibre local, selon la loi de Raoult, pour des concentrations d'hydrocarbures dans le sol supérieures à 500 mg/kg, tel qu'indiqué à la section 2.2.3. Pour des concentrations inférieures à 500 mg/kg, l'équilibre local entre la phase libre d'hydrocarbures pétroliers n'est généralement plus valide (Johnson *et al.*, 1990a).

Hayden *et al.* (1994) croient que, pour des faibles concentrations d'hydrocarbures dans le sol, les hétérogénéités spatiales du milieu poreux les rendent moins disponibles au contact de l'air. Ils avancent aussi la possibilité d'une limitation due au transfert de masse des phases aqueuse ou sorbée à la phase gazeuse.

Armstrong *et al.* (1994) ont développé un modèle pour simuler le procédé d'extraction des vapeurs *in situ* en l'absence d'une phase pure d'hydrocarbures pétroliers, en tenant compte du transfert de masse entre les phases gazeuse, aqueuse et sorbée. Leur modèle tenait compte de l'advection et de la dispersion des contaminants pour un écoulement unidimensionnel de la phase gazeuse. Ils ont calibré leur modèle à l'aide de données expérimentales d'un projet pilote.

Les résultats des simulations démontrent que passé une valeur seuil, l'augmentation du débit d'air a un effet négligeable sur la récupération de COV. Ils démontrent en outre que l'utilisation d'un faible débit d'air en continu est généralement plus efficace qu'un pompage pulsé où il y a mise en marche et arrêt de la pompe à différents intervalles, et ce même si le débit d'air moyen sous régime pulsé et le débit d'air en continu sont égaux. Ils expliquent ce résultat par le fait que le transfert de masse entre les phases par diffusion est maximisé puisque le gradient de concentration du contaminant de la phase aqueuse à gazeuse est maximisé en tout temps pour un débit d'air faible mais continu. Ce gradient n'est pas maximal lorsque la pompe est arrêtée et que le système tend vers l'équilibre, ce qui les porte à conclure que le scénario optimal pour une opération pulsée est donc le cas limite où la période d'arrêt est de zéro (c.-à-d. avec un débit continu).

### 2.3.2 Biodégradation des hydrocarbures pétroliers

Widrig et Manning (1995) ont étudié la biodégradation d'un sol contaminé au diesel. Ils ont réalisé des études en colonnes pour comparer quatre types de traitement sur une durée de presque un an. Les quatre types de traitement comprenaient :

1. deux colonnes servant de témoin abiotique ;
2. deux colonnes traitées en continu avec une solution de nutriments ;
3. deux colonnes traitées avec la solution de nutriments en (2) suivi d'une période d'aération ;

4. deux colonnes traitées selon le même cycle que décrit précédemment sauf que la solution de nutriments comprenait un amendement de sels cationique divalent (pour vérifier l'effet sur la conductivité hydraulique) ;
5. une colonne sans traitement (atténuation naturelle).

Le suivi de la biodégradation a été effectué à l'aide d'analyses sur l'oxygène et le bioxyde de carbone en phase gazeuse, de comptes bactériens, d'hydrocarbures pétroliers dans le sol et adsorbés sur charbon activé, ainsi que sur les concentrations d'hydrocarbures pétroliers, d'oxygène dissous et de nutriments de l'effluent liquide à la sortie des colonnes.

Le suivi des concentrations d'oxygène et de bioxyde de carbone en phase gazeuse à différentes périodes du traitement semble confirmer que les composants plus facilement biodégradables sont consommés par les micro-organismes dans les premiers cycles d'aération. En effet, les concentrations de bioxyde de carbone ont graduellement décliné pour des périodes successives d'aération.

Les auteurs de l'étude croient que les concentrations d'oxygène et de bioxyde de carbone en phase gazeuse sont de bons indicateurs de l'activité de biodégradation. Qui plus est, ils avancent que la concentration de bioxyde de carbone pourrait être utilisée comme paramètre de contrôle pour fixer la durée de cycles d'irrigation et d'aération pour la restauration de la zone vadose.

Chen *et al.* (1992) ont développé un modèle unidimensionnel pour simuler la biodégradation et le transport du benzène et du toluène dans un aquifère. Les processus modélisés comprennent le transfert de masse entre les phases, le transport par advection et diffusion, la biotransformation des contaminants ainsi que la production de biomasse. Les équations résultantes incluent cinq équations différentielles partielles non-linéaire, cinq équations algébriques non-linéaire et deux équations différentielles ordinaires.

L'utilité et la validité de l'approche de modélisation sont explorées en comparant les résultats avec des données expérimentales provenant de tests en laboratoire. Cependant, les prédictions du modèle demeurent très sensibles aux paramètres cinétiques et à la concentration initiale de biomasse.

Gomez-Lahoz *et al.* (1994) ont développé un modèle pour simuler le procédé d'extraction des vapeurs *in situ* en incluant les phénomènes de biodégradation. Le modèle utilise une cinétique de type Monod et tient compte du transfert de masse entre les phases aqueuse et gazeuse. La phase aqueuse est immobile et l'écoulement de l'air unidimensionnel comprend l'advection des contaminants, mais pas leur dispersion.

Le but du travail était d'effectuer des études de sensibilité sur certains paramètres du modèle. Les résultats des simulations démontrent qu'il est possible, pour un transfert de masse relativement faible, que l'oxygène soit l'élément limitant la cinétique de biodégradation, et ce même si la concentration d'oxygène en phase gazeuse est très élevée. Par ailleurs, leur modèle indique que pour des débits d'air plus faibles, la fraction du contaminant volatilisée est réduite et la fraction biodégradée augmentée.

## 2.4 THÉORIE SUR L'IDENTIFICATION DES SYSTÈMES

Cette section, divisée en quatre parties, décrit quelques principes théoriques sur l'identification des systèmes. Il sera expliqué au chapitre 3 pourquoi un modèle dynamique empirique de type entrée-sortie sera utilisé pour atteindre les objectifs du projet. Notons que les références principales utilisées pour cette section sont Ljung (1987) ainsi que Söderström et Stoica (1989).

### 2.4.1 Paramétrisation du modèle

L'identification de systèmes consiste à modéliser le comportement dynamique de systèmes à partir de données expérimentales. Les valeurs des variables de sortie d'un système sont dictées par des variables d'entrée (qui peuvent être manipulées) et des perturbations. Le procédé étudié sera représenté par des modèles mathématiques de type entrée-sortie pour un système linéaire invariant.

La structure générale des modèles peut être représentée par une équation discrétisée dans le domaine du temps :

$$A(q)y(t) = q^{-nk} \frac{B(q)}{F(q)} u(t) + \frac{C(q)}{D(q)} e(t) \quad (2.2)$$

où :

$$\begin{aligned} A(q) &= 1 + a_1q^{-1} + \dots + a_{na}q^{-na} \\ B(q) &= b_1 + b_2q^{-1} + \dots + b_{nb}q^{-nb+1} \\ C(q) &= 1 + c_1q^{-1} + \dots + c_{nc}q^{-nc} \\ D(q) &= 1 + d_1q^{-1} + \dots + d_{nd}q^{-nd} \\ F(q) &= 1 + f_1q^{-1} + \dots + f_{nf}q^{-nf} \end{aligned} \quad (2.3)$$

et  $q^{-k}$  est l'opérateur de translation arrière, p. ex.  $q^{-k}u(t) = u(t-k)$

Les valeurs de na, nb, nc, nd et nf sont les ordres des polynômes respectifs. La valeur de nk est le nombre de périodes de délai échantillonné entre l'entrée et la sortie du système. Pour le type de modèle représenté à l'équation 2.2, il est assumé que le terme e(t) est une séquence de variables aléatoires indépendantes et de moyenne zéro.

Les paramètres du modèle de l'équation 2.2 sont évalués de manière à minimiser l'erreur de prédiction. Les méthodes pour estimer ces paramètres sont relativement sophistiquées et les calculs sont généralement effectués à l'aide d'algorithmes disponibles sur des logiciels commerciaux.

Il convient de mentionner qu'en général la structure de l'équation 2.2 est rarement utilisée. Un ou plusieurs des cinq polynômes (équation 2.3) sont fixés à 1. Les structures les plus communes incluent des modèles de type :

- ARX, modèle autorégressif avec une variable d'entrée exogène ( $nc=nd=nf=0$ ) ;
- ARMAX, modèle autorégressif à moyenne mobile avec une variable d'entrée exogène ( $nd=nf=0$ ) ;
- OE, modèle de sortie avec erreur ( $na=nc=nd=0$ ) ;
- BJ, modèle de Box-Jenkins ( $na=0$ ).

Ces structures de modèles relient la variable de sortie à la variable manipulée selon diverses hypothèses posées sur les perturbations agissant sur le système.

#### 2.4.2 Validation du modèle

Deux approches sont utilisées pour valider le modèle représentant la dynamique du système étudié. La première consiste à comparer les données expérimentales avec le modèle trouvé ; la deuxième, d'appliquer des tests statistiques sur les erreurs de prédiction du modèle, souvent appelées les résidus  $\varepsilon(t)$  (ceux-ci sont aussi fonction des paramètres estimés, mais pour ne pas alourdir le texte ceux-ci seront omis dans la notation de  $\varepsilon(t)$ ). La méthodologie relative au choix de la structure et de l'ordre du modèle sera expliquée au chapitre 4.

Pour la première approche, on évalue l'erreur moyenne au carré normalisée ( $E$ ) entre la variable de sortie d'un modèle  $y_m(t)$  lorsque simulée avec les valeurs expérimentales de la variable manipulée  $u(t)$ , et les données expérimentales correspondantes de la variable de sortie  $y(t)$ . La valeur de  $E$  est définie comme étant égale à :

$$E = \left( \frac{\sum (y - y_m)^2}{N} \right)^{1/2} \quad (2.4)$$

avec N égal au nombre de points expérimentaux.

Pour la deuxième approche, on vérifie si  $\varepsilon(t)$  est un bruit blanc de moyenne zéro et si  $\varepsilon(t)$  est indépendant de  $u(t)$ . D'une part, les estimés de la fonction de covariance des résidus  $R_e(k)$  tendront vers zéro si  $\varepsilon(t)$  est un bruit blanc. Les valeurs de  $R_e(k)$  sont estimées par :

$$R_e(k) = \frac{1}{N} \sum_{t=1}^{N-k} \varepsilon(t+k) \varepsilon(t) \quad (2.5)$$

La fonction de covariance est évaluée pour des valeurs de k allant de 0 à  $N/4$  (Pankratz, 1983). Il est d'usage d'appliquer un test normalisé et de vérifier si les coefficients d'autocorrélation  $r_e(k)$  sont compris dans un intervalle de confiance. Les valeurs de  $r_e(k)$  sont évaluées par :

$$r_e(k) = \frac{R_e(k)}{R_e(0)} \quad (2.6)$$

Les intervalles de confiance bilatéraux, pour une distribution standard normale (où N est grand), sont calculés pour un niveau de confiance de 99 % :

$$IC_{re(k)} = \frac{2.58}{\sqrt{N}} \quad (2.7)$$

D'autre part, les estimés de la fonction de covariance entre les résidus et la variable d'entrée  $R_{eu}(k)$  tendront vers zéro si  $\varepsilon(t)$  est indépendant de  $u(t)$  et N est grand. Les valeurs de  $R_{eu}(k)$  sont évaluées par l'expression suivante :

$$R_{eu}(k) = \frac{1}{N} \sum_{t=k}^N \varepsilon(t) u(t-k) \quad (2.8)$$

Soulignons que k varie de  $-N/4$  à  $N/4$ . Il est vérifié si les coefficients de corrélations croisés  $r_{eu}(k)$  sont compris dans l'intervalle de confiance choisi. Les valeurs de  $r_{eu}(k)$  sont calculées à l'aide de l'équation suivante :

$$r_{eu}(k) = \frac{R_{eu}(k)}{\sqrt{R_e(0)R_u(0)}} \quad (2.9)$$

Soulignons que  $R_u(0)$  est évalué avec l'expression de l'équation 2.5, sauf que le vecteur  $u(t)$  est utilisé au lieu de  $\varepsilon(t)$ . Les intervalles de confiance bilatéraux sont évalués pour un niveau de confiance de 99 %, en supposant une distribution normale standard où  $N$  est grand :

$$IC_{r_{eu}(k)} = \frac{2.58\sqrt{P/N}}{\sqrt{R_e(0)R_u(0)}} \quad (2.10)$$

et  $P$  est évalué selon :

$$P = \sum_{k=-N/4}^{N/4} R_e(k)R_u(k) \quad (2.11)$$

### 2.4.3 Signal d'entrée

Un signal d'entrée doit être varié pour identifier un modèle d'entrée-sortie représentant la dynamique du système étudié. Les signaux d'entrées utilisés lors de cette étude comprennent des échelons, une séquence binaire pseudo-aléatoire (PRBS, «pseudorandom binary sequence») et une séquence binaire générale (GBS, «General Binary Sequence») favorisant l'identification d'un modèle pour une fréquence choisie.

Un échelon consiste à changer l'amplitude du signal d'entrée après un certain temps. Les variables de sortie du système atteignent une nouvelle valeur et certaines caractéristiques dynamiques du système peuvent être évaluées à l'aide des modèles décrits ci-dessus.

Un PRBS est un signal qui alterne entre deux niveaux selon une probabilité de 50 %. L'intervalle de temps, pour qu'il y ait possibilité d'un changement du signal d'entrée, devrait être assez long pour permettre à la variable de sortie d'atteindre d'environ 63 % de sa valeur en régime permanent (Marlin, 1995). Pour une fonction de transfert de premier ordre avec délai, cet intervalle de temps serait égal à la constante de temps additionnée au

délai. Par ailleurs, il peut être démontré qu'un PRBS, de durée suffisamment longue, a essentiellement les caractéristiques d'un bruit blanc. C'est pourquoi la fonction de corrélation d'un PRBS ressemble à celle d'un bruit blanc, d'où la partie pseudo-aléatoire incluse dans son appellation.

Le GBS utilisé pour les expériences d'identification diffère du PRBS de deux façons. D'une part, la période où il y a possibilité de changement de signal d'entrée est égale à la période d'échantillonnage ( $\Delta t$ ). D'autre part, la probabilité ( $p$ ) que le signal d'entrée demeure le même est fonction d'une fréquence ( $\omega$ ) d'intérêt. Chen et Yu (1997) ont démontré que la valeur optimale de  $p$  peut être évaluée pour une valeur de  $\omega$  spécifiée selon la relation suivante :

$$p = \frac{1}{1 + \tan(\omega\Delta t / 2)} \quad (2.12)$$

où  $\omega \in [0, \pi/\Delta t[$

Il convient de mentionner que les modèles (de systèmes linéaires invariants) trouvés avec le type d'équation donné par 2.2 sont une approximation de la réalité car la dynamique de la plupart des procédés est non-linéaire. Ainsi, la linéarisation du comportement dynamique du procédé étudié ne demeure valide que près d'un point d'opération en régime permanent. C'est pourquoi la variation d'amplitude sur le signal d'entrée ne doit pas être trop large pour l'estimation des paramètres du modèle linéarisé. Par contre, lorsque l'amplitude du signal d'entrée sera large, le ratio entre celui-ci et le bruit sera plus élevé et l'effet de certaines perturbations sera atténué. Par conséquent, on peut s'attendre à ce que l'exactitude des estimés soit améliorée. Il y a donc un compromis à réaliser sur la variation d'amplitude du signal d'entrée.

#### 2.4.4 Fonction de transfert en continu

Un modèle trouvé par l'équation 2.2 est donné sous forme d'équation discrétisée dans le domaine du temps. Tel qu'indiqué à la section suivante, la conception du contrôleur est réalisée avec la fonction de transfert entre la variable de sortie et d'entrée en continu ou encore dans le domaine de Laplace. Par conséquent, les relations mathématiques permettant d'évaluer les paramètres de la fonction de transfert dans le domaine de Laplace à partir des paramètres de l'équation 2.2 seront donnés. Notons que la procédure décrite ci-dessous est détaillée en partie dans Ogunnaike et Ray (1994).

En premier lieu, il s'agit d'exprimer uniquement les termes de l'équation 2.2 relatifs à  $y(t)$  et  $u(t)$ . En appliquant l'opérateur de la transformée en  $z$ , on trouve la fonction de transfert échantillonnée (exprimée en fonction de l'argument complexe  $z$ ). En deuxième lieu, on évalue les racines du dénominateur (les pôles,  $p_i$ ) de la fonction de transfert échantillonnée. Les  $p_i$  de la fonction de transfert échantillonnée (pour une valeur constante de  $u(t)$  sur la période d'échantillonnage) sont reliés aux pôles  $s_i$  de la fonction de transfert dans le domaine de Laplace par la relation suivante :

$$p_i = \exp(s_i \Delta t) \quad (2.13)$$

et l'expression du gain en régime permanent ( $K$ ) pour un modèle ARX ou ARMAX est donnée par :

$$K = \frac{\sum_{i=1}^{nb} b_i}{1 + \sum_{i=1}^{na} a_i} \quad (2.14)$$

Notons que pour des modèles OE ou de BJ, les coefficients  $a_i$  sont remplacés par les coefficients  $f_i$  (voir équation 2.3).

On peut donc évaluer les paramètres d'une fonction de transfert dans le domaine de Laplace (sans zéros). Soulignons que les constantes de temps ( $\tau_i$ ) sont trouvées à l'aide des valeurs de  $s_i$  (où  $-1/\tau_i = s_i$ ). Il n'existe pas de relations générales pour déterminer les

zéros dans le domaine de Laplace à partir des zéros de la fonction de transfert échantillonnée. Des calculs spécifiques seront effectués pour évaluer les zéros dans le domaine de Laplace à partir des zéros de la fonction de transfert échantillonnée, si nécessaire.

## 2.5 THÉORIE SUR LA CONCEPTION D'UN CONTRÔLEUR PAR SYNTHÈSE DIRECTE

Les essais en boucle fermée sont réalisés pour un algorithme de contrôle de type proportionnel-intégral (PI). Ce choix sera justifié au chapitre cinq. L'approche par synthèse directe est utilisée pour le réglage des paramètres du contrôleur. Notons que les principes pour le réglage d'un contrôleur par synthèse directe sont donnés par Ogunnaike et Ray (1994).

La conception du contrôleur est réalisée dans le domaine de Laplace, même si l'algorithme est implanté sous forme discrète (commande par ordinateur digital). Cependant, si la période d'exécution du contrôleur est faible par rapport à la dynamique du système, l'approximation d'un PI dans le domaine de Laplace par un PI discrétilisé est valide (Marlin, 1995). Ainsi, les paramètres du contrôleur trouvé par synthèse directe peuvent être utilisés pour l'algorithme de contrôle implanté sur ordinateur.

L'approche par synthèse directe consiste à utiliser directement le modèle du procédé pour synthétiser le contrôleur requis pour imposer le comportement voulu sur  $y(t)$  en boucle fermée. Si l'on considère le schéma bloc donné à la figure 2.4, où  $g_c$  est la fonction de transfert du contrôleur et  $g$  représente la fonction de transfert consolidé du procédé, des éléments de mesures et de contrôle final ; on trouve la fonction de transfert en boucle fermée égale à :

$$y(s) = \frac{g(s)g_c(s)}{1 + g(s)g_c(s)} y_{sp}(s) \quad (2.15)$$

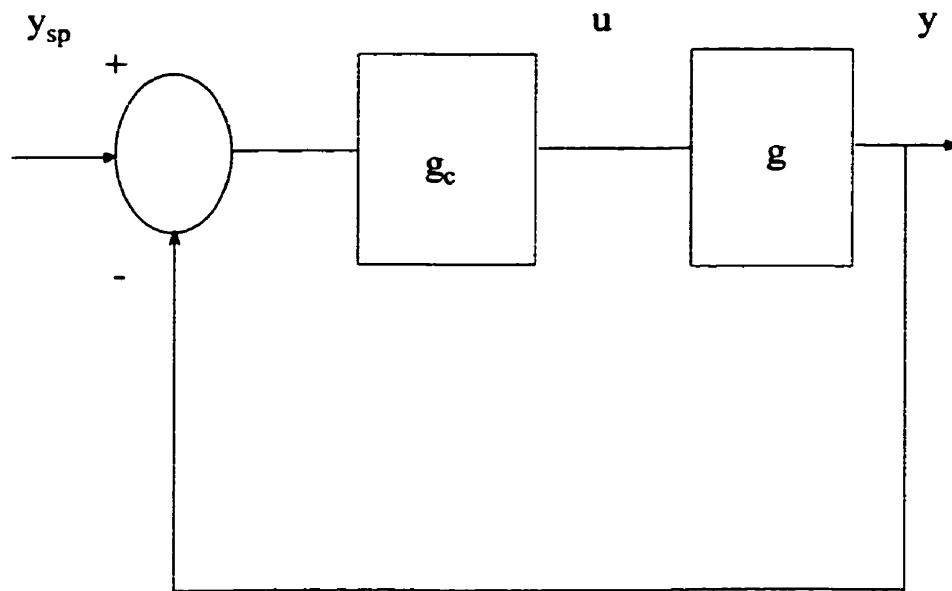


Figure 2.4 : Schéma bloc du système en boucle fermée.

Si l'on veut imposer une trajectoire de référence en boucle fermée, représentée par la fonction de transfert  $q(s)$ , on a :

$$y(s) = q(s)y_{sp}(s) \quad (2.16)$$

À l'aide des deux équations précédentes, on trouve la forme que doit prendre le contrôleur en fonction de  $g(s)$  et de  $q(s)$  :

$$g_c(s) = \frac{1}{g(s)} \left( \frac{q(s)}{1 - q(s)} \right) \quad (2.17)$$

Par exemple, si l'on suppose que la fonction de transfert entre  $y(s)$  et  $u(s)$  est de premier ordre avec retard :

$$g(s) = \frac{Ke^{-\alpha s}}{\tau s + 1} \quad (2.18)$$

et que l'on impose la trajectoire de référence en boucle fermée suivante :

$$q(s) = \frac{e^{-\alpha s}}{\tau_r s + 1} \quad (2.19)$$

en choisissant  $\alpha$  égal à  $\theta$ , et en approximant le terme du retard par une série de Taylor de premier ordre ( $e^{-\theta s} = 1 - \theta s$ ), on trouve les paramètres d'un contrôleur PI, soit :

$$K_c = \frac{\tau}{K(\tau_r + \theta)} \quad (2.20)$$

$$\tau_I = \tau \quad (2.21)$$

Ainsi, pour un procédé ayant une fonction de transfert de premier ordre avec délai où les paramètres  $K$ ,  $\tau$  et  $\theta$  sont connus, et en imposant une constante de temps en boucle fermée ( $\tau_r$ ), les paramètres d'un algorithme de contrôle PI peuvent être déterminés. Cependant, l'échantillonnage du signal introduit un délai additionnel d'environ  $\Delta t/2$  lorsque la valeur de  $u(t)$  est maintenue constante sur  $\Delta t$  (Marlin, 1995 ; Ogunnaike et Ray, 1994). Il faudra donc en tenir compte dans l'équation 2.20.

### **3 CONFIGURATION ET ÉLABORATION DU SYSTÈME DE CONTRÔLE**

Ce chapitre, divisé en deux parties, traite de la stratégie de contrôle adoptée et de l'analyse du système asservi proposé. La première section comprend le choix de la variable manipulée et de la variable contrôlée. La deuxième section englobe une analyse du modèle entrée-sortie et quelques remarques sur la valeur du point de consigne proposé.

#### **3.1 CHOIX DE LA VARIABLE MANIPULÉE ET CONTRÔLÉE**

À la suite de l'analyse des sections 2.1 à 2.3, on constate que plusieurs paramètres peuvent agir sur la biodégradation et sur la volatilisation des hydrocarbures pétroliers. Tel que mentionné par l'hypothèse de recherche, l'ajout d'un système de contrôle au procédé de bioventilation *in situ* devra permettre de favoriser la biodégradation tout en réduisant la volatilisation des hydrocarbures pétroliers.

L'objectif de contrôle étant défini, le choix des variables manipulée(s) et contrôlée(s) doit être réalisé. On peut constater que plusieurs facteurs peuvent être considérés pour atteindre l'objectif de contrôle. Par contre, un nombre restreint de variables peuvent être mesurées en ligne, celles-ci incluent :

- les débit d'air et de liquide ;
- les concentrations d'oxygène, de bioxyde de carbone et des COV en phase gazeuse ;
- l'humidité et la température du sol.

Par conséquent, le choix des variables manipulées et contrôlées doit évidemment tenir compte des appareils et instruments disponibles pour le système de contrôle envisagé.

### 3.1.1 Variable manipulée

Le choix du débit d'air comme variable manipulée s'impose naturellement. En effet, le maintien de conditions aérobies, inhérent au procédé de bioventilation *in situ*, est directement relié au débit d'air utilisé. De plus, la quantité d'hydrocarbures volatilisés dépend aussi du débit d'air.

Il convient de mentionner que l'apport de liquides, soit de l'eau ou des solutions de nutriments peuvent aussi être envisagés comme des variables manipulées. L'ajout de liquides dans la zone vadose peut influencer l'activité de biodégradation et la volatilisation des hydrocarbures pétroliers. Cependant, cette étude ne considérera que le débit d'air comme variable manipulée.

### 3.1.2 Variable contrôlée

Étant donné que seul le débit d'air est retenu comme variable manipulée, une seule variable peut être contrôlée à un instant donné. Toutefois, même si le nombre de variables contrôlées est supérieur au nombre de variables manipulées, il existe des structures de contrôle (p. ex. à signaux sélectifs) qui permettent de pallier cette difficulté. Ces algorithmes de contrôle changent de variable contrôlée à différents moments selon les objectifs de contrôle.

Les variables contrôlées d'intérêt sont les concentrations d'oxygène, de bioxyde de carbone et des COV en phase gazeuse. Cependant, suite à l'analyse réalisée au deuxième chapitre sur le procédé de bioventilation *in situ*, une structure de contrôle très simple devrait permettre d'atteindre l'objectif de contrôle énoncé dans l'hypothèse de recherche.

En effet, en choisissant l'oxygène en phase gazeuse comme variable contrôlée, le débit d'air peut être manipulé pour favoriser la biodégradation des hydrocarbures pétroliers tout en réduisant leur volatilisation. Le point de consigne pour l'oxygène en phase gazeuse est

fixé de manière à s'assurer que des conditions aérobies sont maintenues dans la zone contaminée afin de favoriser la biodégradation des hydrocarbures pétroliers. De plus, en respectant le point de consigne donné pour l'oxygène en phase gazeuse, le débit d'air fourni n'est pas excessif ce qui réduit la volatilisation des hydrocarbures pétroliers.

Rappelons qu'en général la quantité d'hydrocarbures pétroliers volatilisée est plus grande pour des débits d'air élevés. La concentration des hydrocarbures pétroliers en phase gazeuse peut être plus faible pour des débits élevés, mais en général, tel qu'indiqué à la section 2.3, celle-ci est souvent à l'équilibre. Ainsi, pour un débit d'air excessif une fraction plus importante d'hydrocarbures est volatilisée. Le terme débit d'air excessif désigne une situation où l'oxygène est en excès aux micro-organismes et ne limite plus la biodégradation des hydrocarbures pétroliers.

Il convient de mentionner que le bioxyde de carbone en phase gazeuse pourrait également être choisi comme variable contrôlée. Cependant, dû aux sources abiotiques, l'oxygène en phase gazeuse semble être une variable plus fiable que le bioxyde de carbone en phase gazeuse pour estimer les taux de biodégradation (U.S.EPA, 1995a). Rappelons que la concentration de bioxyde de carbone dépend du pH du sol (voir section 2.2.6). De plus, le bioxyde de carbone peut aussi être produit par l'activité microbienne aérobie et anaérobique (Dupont, 1993).

Par conséquent, l'oxygène en phase gazeuse semble être le meilleur choix pour la variable contrôlée. Par ailleurs, ce choix est cohérent si l'on se fie à la définition du procédé de bioventilation *in situ* donné à la section 2.1.

## 3.2 ANALYSE DU SYSTÈME ASSERVI PROPOSÉ

### 3.2.1 Modèle entrée-sortie

Afin de mieux comprendre la dynamique du système étudié et de déterminer une structure de modèle pour la fonction de transfert entre les variables contrôlée et manipulée, des bilans de matière simples sur l'oxygène sont effectués. L'approche employée est nécessairement une simplification de la réalité, mais elle permet de mieux saisir l'influence de certains phénomènes sur la dynamique de la variable contrôlée en relation avec la variable manipulée.

En effectuant un bilan de matière, sur un volume de contrôle parfaitement mélangé et isotherme (voir la figure 3.1), pour l'oxygène en phase gazeuse et aqueuse respectivement, on trouve :

$$\frac{dO_{2gi}}{dt} = \frac{Q}{V_i n_a} (O_{2ge} - O_{2gi}) - K_L a \frac{n_e}{n_a} \left( \frac{O_{2gi}}{(Ho2/RT)} - O_{2li} \right) \quad (3.1)$$

$$\frac{dO_{2li}}{dt} = K_L a \left( \frac{O_{2gi}}{(Ho2/RT)} - O_{2li} \right) - R_{o2L} \quad (3.2)$$

La nomenclature utilisée est la suivante :

$V_i$  est le volume de contrôle [V]

$O_{2gi}$  la concentration d'oxygène en phase gazeuse dans  $V_i$  [M/V]

t le temps [t]

Q le débit volumique d'air [V/t]

$n_a$  la porosité du sol à l'air [V/V]

$O_{2ge}$  la concentration d'oxygène en phase gazeuse à l'entrée de  $V_i$  [M/V]

$K_L a$  le coefficient de transfert de matière global [1/t]

$n_e$  fraction volumique en eau [V/V]

$Ho2$  est la constante d'Henry de l'oxygène [P.V/M]

R la constante des gaz [P.V/(M.T)]

T la température [T]

$O_{2li}$  la concentration d'oxygène en phase aqueuse dans  $V_i$  [M/V]

$R_{O2L}$  le taux de consommation d'oxygène en phase aqueuse [M/(V.t)]

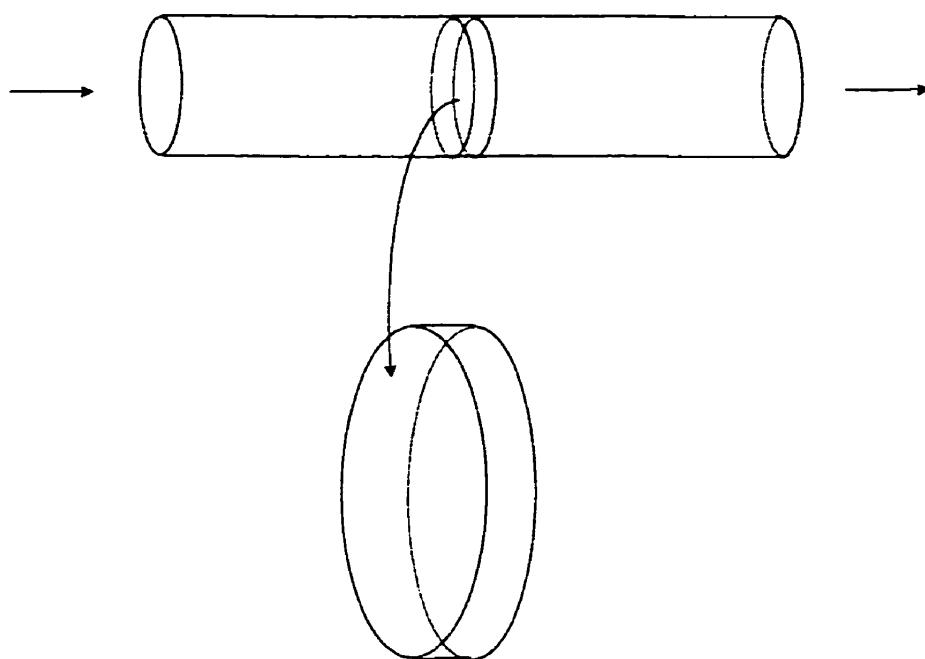


Figure 3.1 : Volume de contrôle pour le bilan de masse sur l'oxygène.

Il est assumé que le transfert de masse est adéquatement représenté par un modèle de premier ordre. Gierke *et al.*, (1992) ont utilisé un modèle de transfert de masse plus complexe incorporant la diffusion de composants à travers des micropores saturés en eau pour des particules sphériques immobiles. Ils ont conclu que la géométrie des pores avait très peu d'effets et qu'un modèle de premier ordre donnait des résultats similaires. De plus, il est considéré que la résistance au transfert est uniquement dans la phase aqueuse puisque la constante d'Henry de l'oxygène est assez élevée.

Pour déterminer la fonction de transfert dans le domaine de Laplace entre  $y$  et  $u$ , en considérant  $K_{La}$ ,  $n_e$ ,  $n_a$   $Ho_2$ ,  $O_{2ge}$  et  $R_{O2L}$  constants, il faut :

1. Linéariser le terme  $QO_{2gi}$  dans l'équation 3.1 avec l'approximation de Taylor autour d'un point d'opération en régime permanent.
2. Exprimer les équations différentielles sous forme de variable de déviation par rapport au régime permanent.
3. Appliquer la transformée de Laplace sur chaque terme des équations et résoudre.

La procédure pour trouver une fonction de transfert à partir d'équations différentielles est donnée dans plusieurs ouvrages traitant sur la commande des procédés (Marlin, 1995 ; Ogunnaike et Ray, 1994).

On trouve donc la fonction de transfert, sur  $V_i$ , entre l'oxygène en phase gazeuse à la sortie du volume de contrôle ( $y_i$ ) et le débit d'air ( $u$ ) :

$$\frac{y_i(s)}{u(s)} = \frac{K_i(\xi_i s + 1)}{(\tau_{1i}s + 1)(\tau_{2i}s + 1)} = \frac{K_i(\xi_i s + 1)}{\tau_{ni}^2 s^2 + 2\xi_i \tau_{ni} s + 1} \quad (3.3)$$

où :

$$K_i = \left( \frac{O_{2ge} - O_{2gsi}}{Qs} \right) \quad (3.4)$$

$$\xi_i = \frac{1}{K_L \alpha} \quad (3.5)$$

$$\tau_{1i}, \tau_{2i} = \frac{\tau_{ni}}{\zeta_i \pm \sqrt{\zeta_i^2 - 1}} \quad (3.6)$$

$$\tau_{ni} = \sqrt{\frac{V_i n_a}{Q_s K_L \alpha}} \quad (3.7)$$

$$\zeta_i = \frac{1/K_L \alpha + V_i n_e RT / H_o 2 Qs + V_i n_a / Qs}{2 \tau_{ni}} \quad (3.8)$$

$Qs$  est le débit d'air volumique en régime permanent [V/t]

$O_{2gsi}$  la concentration d'oxygène en phase gazeuse en régime permanent dans  $V_i$  [M/V]

Si le volume global du système est cylindrique (les essais sont réalisés en colonnes, voir chapitre 4), on constate que les volumes de contrôle ( $V_i$ ) forment un système en série. La fonction de transfert pour N volume de contrôle, entre la concentration d'oxygène en phase gazeuse à la sortie de la colonne ( $y$ ) et le débit d'air ( $u$ ), est donc :

$$\frac{y(s)}{u(s)} = \prod_{i=1}^N \frac{K_i(\zeta_i s + 1)}{(\tau_{1i}s + 1)(\tau_{2i}s + 1)} \quad (3.9)$$

On observe que l'expression du gain en régime permanent sur  $V_i$  (équation 3.4) est fonction de la différence de concentration en régime permanent d'oxygène en phase gazeuse à l'entrée et à la sortie de  $V_i$ . On retrouve donc implicitement que le gain en régime permanent dépend de  $R_{O2L}$  ou du  $K_{La}$  (si la biodégradation est limitée par le transfert de masse de l'oxygène) puisque la concentration d'oxygène en phase gazeuse en régime permanent est fonction de ces paramètres. De plus, on observe que le gain en régime permanent décroît pour un débit d'air plus élevé.

Par ailleurs, on s'aperçoit que l'expression des constantes de temps ( $\tau_{1i}, \tau_{2i}$ ) pour  $V_i$  sont relativement complexes. Celles-ci sont fonction de plusieurs paramètres. Selon l'équation 3.8, il est difficile de conclure quant à l'influence du débit d'air sur le coefficient d'amortissement ( $\zeta_i$ ) sur  $V_i$ . Toutefois, selon l'équation 3.7, on constate que la constante de temps naturelle ( $\tau_{ni}$ ) sur  $V_i$  sera plus petite pour un débit d'air élevé. On peut donc sous certaine réserve (le raisonnement est plutôt basé sur l'influence du débit d'air sur le temps de résidence) affirmer que  $\tau_{1i}$  et  $\tau_{2i}$  seront plus faibles pour des débits d'air plus élevés.

Il est difficile de conclure quant à l'influence du  $K_{La}$  sur la dynamique du système. En effet, celui-ci a un effet sur chacun des paramètres de l'équation 3.9.

On constate que l'expression donnée par l'équation 3.9 n'est pas très pratique pour effectuer le réglage d'un contrôleur. Ce modèle qui est déjà une simplification de la

réalité requiert la connaissance de plusieurs paramètres. De surcroît, ceux-ci peuvent varier dans le temps. Pour atteindre les objectifs du projet, il sera plus approprié d'effectuer une étude d'identification de système selon les principes énoncés à la section 2.4. Le but des tests d'identification sera d'obtenir un modèle qui inclue les composantes principales représentant la dynamique du système.

À titre d'exemple, les composantes dynamiques dominantes du modèle entrée-sortie du procédé peuvent être représentées dans bien des cas par une fonction de transfert de premier ordre avec délai (équation 2.18). De plus, le réglage d'un contrôleur PI par un modèle donné par l'équation 2.18 donne souvent de bons résultats en boucle fermée (Marlin, 1995 ; Ogunnaike et Ray, 1994).

### 3.2.2 Choix du point de consigne

Le choix du point de consigne permettant de favoriser la biodégradation tout en réduisant la volatilisation des hydrocarbures pétroliers n'est pas facile. D'une part, une quantité suffisante d'oxygène doit être fournie pour accélérer la biodégradation des hydrocarbures pétroliers. D'autre part, cette quantité ne doit pas être excessive puisque son influence sur le taux de biodégradation peut devenir négligeable et de surcroît, dû au débit d'air excessif fourni, la quantité d'hydrocarbures pétroliers volatilisée augmente.

Le choix du point de consigne peut être basé sur au moins deux phénomènes : le taux de transfert de masse de l'oxygène de la phase gazeuse à la phase aqueuse et le taux de consommation de l'oxygène. À cet égard, les équations 3.1 et 3.2 permettent de mieux comprendre les difficultés associées au choix d'un point de consigne pour l'oxygène en phase gazeuse.

D'une part, si le taux de transfert de masse est limitant, la concentration en oxygène devra être maximale (voir la section 2.3.2 le résumé de l'étude de Gomez-Lahoz *et al.* (1994)). Le point de consigne de l'oxygène en phase gazeuse devrait alors être près de 21 %.

D'autre part, si le taux de consommation de l'oxygène est limitant, le choix est plus difficile. En effet, l'oxygène fourni dépend alors de la valeur de  $R_{O2L}$ . Cependant, la valeur de  $R_{O2L}$  est difficile à évaluer et varie dans le temps. Ainsi, la valeur du point de consigne pour l'oxygène en phase gazeuse varie également dans le temps.

Le choix d'un point de consigne pour la concentration d'oxygène en phase gazeuse est donc souvent basé sur des valeurs de  $R_{O2L}$  typiques ou spécifiques au site. En général, il est considéré que le taux de consommation de l'oxygène est l'élément limitant la biodégradation lors du procédé de bioventilation *in situ*. Effectivement, selon les valeurs d'oxygène en phase gazeuse données à la section 2.2.4 (2, 5 et 10 %), il semble que l'oxygène ne sera plus limitant pour des concentrations d'environ 10 %.

Par conséquent, le point de consigne pour la concentration d'oxygène en phase gazeuse choisi sera de 10 %. Ainsi, dans la mesure du possible, les conditions d'opération choisies pour caractériser la dynamique du système correspondront à des débits d'air donnant des concentrations en régime permanent d'oxygène en phase gazeuse d'environ 10 %. Ce choix, assez conservateur (du moins selon la littérature), devrait permettre de maintenir des conditions aérobies pour les micro-organismes dans toutes les zones des colonnes.

## 4 MATÉRIEL ET MÉTHODES

Ce chapitre, divisé en cinq parties, décrit le matériel et les méthodes employés pour réaliser le projet. La première partie comprend une description des méthodes utilisées pour effectuer la caractérisation du sol servant pour les expériences subséquentes. La deuxième partie détaille le montage conçu pour réaliser les essais en laboratoire, et la troisième partie les méthodes recourues pour accomplir le suivi des variables. La quatrième partie contient la méthodologie appliquée pour atteindre les objectifs fixés à la section 1.3. La dernière partie fournit des spécifications sur des essais dynamiques réalisés sur le terrain.

### 4.1 CARACTÉRISATION INITIALE DU SOL

Tel qu'indiqué au deuxième chapitre, plusieurs facteurs influencent un traitement par bioventilation *in situ*. Il est donc nécessaire de s'assurer que les valeurs des paramètres du sol choisi soient dans les plages permettant la biodégradation des hydrocarbures pétroliers. En conséquence, les caractéristiques suivantes du sol doivent être connues :

1. concentration des hydrocarbures pétroliers ;
2. humidité et CRC ;
3. rapport C/N/P et pH ;
4. granulométrie et densité des grains ;

Si les valeurs des paramètres mentionnés ci-dessus sont favorables pour un traitement par bioventilation *in situ*, des essais en microcosmes peuvent être réalisés pour vérifier si la microflore indigène du sol a la capacité de biodégrader des hydrocarbures semi-volatils.

#### **4.1.1 Concentration des hydrocarbures dans le sol**

Les échantillons de sol sont envoyés au laboratoire Zénon (Anjou, Québec). L'échantillon solide est d'abord déshydraté avec du sulfate de magnésium anhydre puis extrait avec de l'hexane à l'aide d'un bain ultrason. Par la suite, du gel de silice est ajouté à l'extrait afin d'adsorber la presque totalité des substances polaires puis le surnageant est analysé par chromatographie en phase gazeuse couplée à un détecteur à ionisation de flamme.

#### **4.1.2 Humidité du sol et CRC**

La mesure de l'humidité du sol s'effectue en quatre étapes. La première étape consiste à peser une cupule d'aluminium, ensuite environ dix grammes de sol sont ajoutés à la cupule et la masse de la cupule et du sol ajouté est mesurée. Par suite, le sol est séché dans un four à 105 °C au moins seize heures. Enfin, on mesure la masse de la cupule et du sol sec. La différence de masse entre la cupule de sol humide et de sol sec permet d'évaluer l'humidité du sol.

La mesure de la CRC du sol est basée sur la méthode donnée par Carter (1993). Environ 100 grammes de sol et 150 ml d'eau sont mélangés dans un bécher pour saturer en eau l'échantillon de sol. Par la suite, l'échantillon est filtré sous Büchner à pression atmosphérique jusqu'à la dernière goutte passante. L'humidité du sol, après filtration, est mesurée selon la méthode décrite ci-dessus, ce qui permet d'évaluer la CRC du sol.

#### **4.1.3 Rapport C/N/P**

Les concentrations en carbone organique total (COT), en azote total Kjeldahl (NTK) et de Phosphore Total (PT) permettent de déterminer le rapport C/N/P d'un sol. L'analyse de ces trois paramètres a été réalisée au laboratoire ECO-CNFS (Pointe-Claire, Québec) ou Zénon (Anjou, Québec).

Le COT est mesuré par élimination des carbonates (référence LECO). L'analyse consiste à transformer le COT en oxyde de carbone soit par combustion catalytique soit par oxydation chimique. Le oxyde de carbone formé est alors mesuré directement par un détecteur infrarouge ou transformé en méthane, qui est alors mesuré par un détecteur à flamme ionisé. La quantité de oxyde de carbone ou de méthane mesurée est proportionnelle à la quantité de COT dans l'échantillon de sol.

L'analyse du NTK consiste à transformer l'azote en sels d'ammonium par digestion de l'échantillon de sol avec un mélange d'acide sulfurique, de sulfate de potassium et de sulfate mercurique. Ces sels sont ensuite décomposés dans une solution d'acide sulfurique diluée d'où l'azote ammoniacal est récupéré par distillation et mesuré par dosage acide-base (no de méthode 12-008-95).

L'analyse du PT s'effectue en transformant les formes complexes de phosphore dans le sol sous forme d'ortho-phosphate par calcination. Les ortho-phosphates sont ensuite extraits avec de l'acide chlorhydrique puis analysés par colorimétrie (no de méthode 12-030-95).

#### 4.1.4 pH

La mesure du pH est basée sur la méthode ASTM D 4972-95. La procédure consiste à tamiser 10 g de sol avec un tamis ayant une ouverture de 2 mm ; rajouter 10 ml d'eau distillée au 10 g de sol dans un tube à centrifugation ; passer le tube au Vortex (Fisher Vortex Génie 2<sup>TM</sup>) pendant une minute ; laisser décanter une heure ; mesurer le pH du surnageant avec un pH-mètre (Accumet® model 25, pH/ion meter).

#### 4.1.5 Granulométrie et densité des grains

L'analyse granulométrique et la densité des grains du sol ont été réalisés au département de génie minéral de l'École Polytechnique de Montréal à l'aide des méthodes ASTM D421, D422, D1140, D2217 et E11.

#### 4.1.6 Essais de minéralisation en microcosmes

Chacun des microcosmes est constitué d'une bouteille sérologique de 120 ml contenant une éprouvette (tube de verre de cinq ml) avec une solution 1N d'un ml de KOH et 20 g de sol. Un schéma de microcosme est présenté à la figure 4.1.

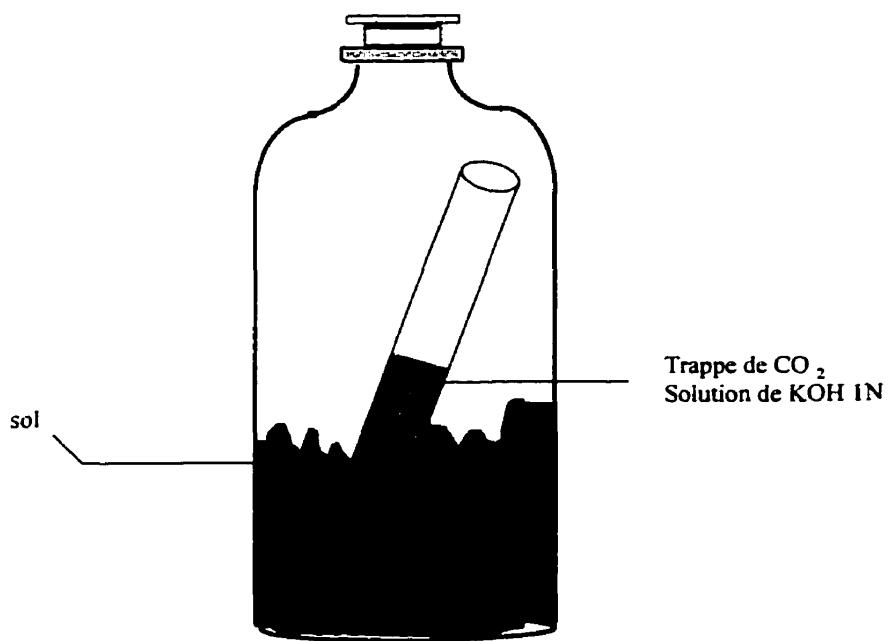


Figure 4.1 : Microcosme utilisé pour les tests de minéralisation.

Les essais sont réalisés, en triplicata, pour des microcosmes contenant seulement le sol ; le sol et deux ml d'eau distillée ; le sol et deux ml de milieu salin minimal (MSM). Un

témoin abiotique contenant 0,02 % p/p d'azoture de sodium (Anachemia, Montréal, Québec) est aussi préparé pour les essais. Au total dix microcosmes sont suivis.

La composition du MSM est de (en mg/l d'eau distillée) :  $\text{NaH}_2\text{PO}_4$  : 883 ;  $\text{K}_2\text{HPO}_4$  : 2260 ;  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$  : 1100 ;  $\text{MgSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$  : 200 et  $\text{NaNO}_3$  : 1000. Le MSM comprenait également 1 ml/l de la solution de métaux traces suivante (mg/l) :  $\text{Co}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$  : 0,3 ;  $\text{Al}(\text{SO}_4)_2 \cdot 12\text{H}_2\text{O}$  : 0,77 ;  $\text{CuSO}_4$  : 0,17 ;  $\text{ZnSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$  : 0,19 ;  $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$  : 2,78 ;  $\text{MnSO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$  : 1,7 et  $\text{Na}_2\text{MoO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$  : 0,5. Le pH du MSM est de 6,8.

Une concentration de 100 000 dpm d'hexadécane (représentatif des hydrocarbures semi-volatils) marqué au carbone-14 (pureté >98 %, activité spécifique : 2,2mCi/mmol, Sigma, É.-U) est injectée dans chacune des bouteilles. Les éprouvettes de KOH permettent de capter le  $\text{CO}_2$  dégagé au cours de la minéralisation. Une fois la solution de KOH recueillie, l'éprouvette est rincée à l'aide d'un ml d'une solution de KOH 1N puis rempli à nouveau par un ml de cette même solution fraîche. La solution de KOH (deux ml) recueillie est mélangée à dix ml de cocktail à scintillation (Wallac Optiphase, Turku Finlande) et la quantité de  $^{14}\text{CO}_2$  est mesurée à l'aide d'un compteur à scintillation (Wallac 1409, Turku, Finlande).

#### 4.2 DESCRIPTION DU MONTAGE EXPÉRIMENTAL

Pour vérifier l'hypothèse de recherche avancée pour ce projet, des essais sur deux colonnes sont réalisés. Le système ainsi étudié représentera le procédé de bioventilation *in situ* pour un écoulement d'air unidimensionnel. Tel que discuté au second chapitre, l'étude des procédés d'extraction des vapeurs *in situ* et de la bioventilation *in situ* est souvent accomplie à l'aide d'expériences en colonnes (Lingineni et Dhir, 1992 ; Widrig et Manning, 1995 ; Karan *et al.*, 1995 ; Ho *et al.*, 1994 ; Hayden *et al.*, 1994 ; Shah *et al.*, 1995). Le montage utilisé pour l'étude du comportement dynamique du système représentant le procédé de bioventilation *in situ* est illustré à la figure 4.2.

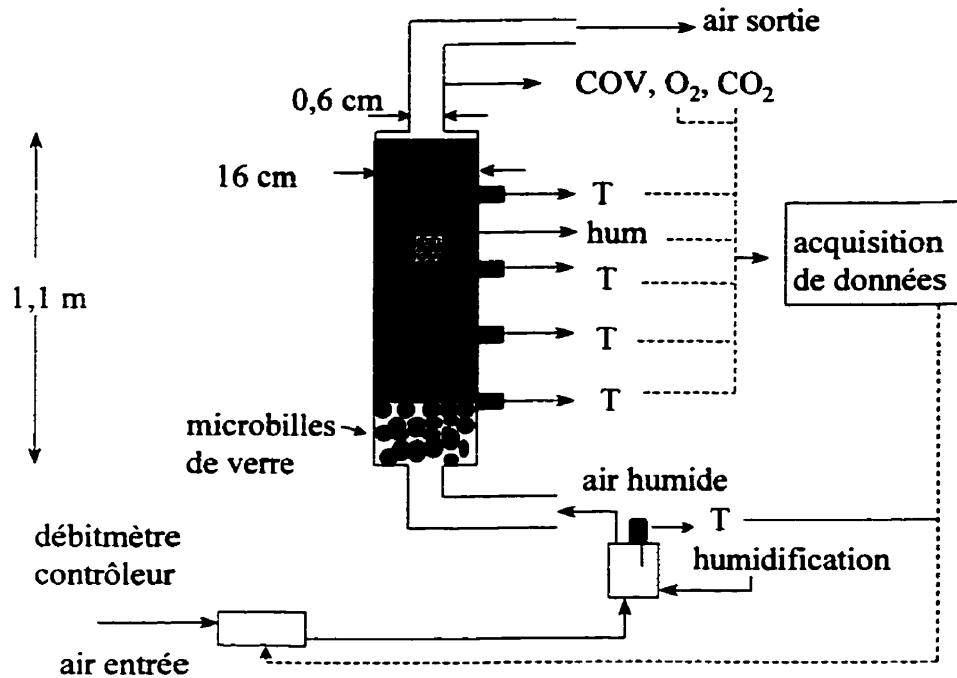


Figure 4.2 : Schéma du montage expérimental.

#### 4.2.1 Description des colonnes

Les deux colonnes sont en acier inoxydable (grade 316), avec un diamètre interne de 16 cm et 1,1 m de hauteur, ce qui donne un volume de 22 L pour chaque colonne. Les colonnes sont munies de cinq trous permettant l'entrée de thermocouples, de fils pour des sondes ou l'échantillonnage du sol. Les colonnes sont fermées aux extrémités à l'aide de brides et de joints en Teflon™. Soulignons que des tubes de Tygon® avec des parois internes de Teflon™ relient l'entrée et la sortie de chaque colonne. Enfin, les colonnes sont isolées avec de la laine minérale.

La base des colonnes contient des microbilles de verre (Industrie Potters Ltée, LaPrairie, Québec), variant de 0,52 à 0,59 mm de diamètre, sur une hauteur de 16 cm pour assurer une bonne distribution de l'air vers le sol. En effet, un garnissage ayant une perte de charge d'environ 15 à 30 % de la perte de charge du lit assure une bonne distribution de

l'air. Les pertes de charges du garnissage et du sol sont évaluées avec la relation d'Ergun et les détails sont présentés à l'Annexe I.

#### **4.2.2 Préparation du sol en colonnes**

Les colonnes et les appareils utilisés pour la compaction du sol sont rincées avec du savon (sans phosphate) et de l'eau distillée avant le remplissage des colonnes. La procédure pour remplir les colonnes de sol est la suivante :

1. Le sol utilisé pour les expériences est mélangé et homogénéisé dans plusieurs chaudières et les cailloux de diamètre supérieur à environ un cm sont enlevés.
2. Un volume connu de solution de MSM de concentration dix fois supérieur à la solution décrite à la section 3.1.6 est ajouté au sol (il sera expliqué au chapitre suivant pourquoi du MSM est ajouté).
3. En moyenne un kg de sol pesé est ajouté à la colonne et ensuite compacté manuellement à l'aide d'une tige munie d'un disque circulaire à sa base.
4. Une fois le kg de sol compacté, la strate supérieure est grattée.
5. Les étapes deux, trois et quatre sont recommandées jusqu'à ce que les colonnes soient remplies.

#### **4.2.3 Humidification de l'air à l'entrée des colonnes**

Pour éviter l'assèchement du sol, l'air à l'entrée des colonnes est humidifié dans un Erlenmeyer (voir la figure 4.3). Ceci permet aussi de mesurer la température de l'air à l'entrée des colonnes.

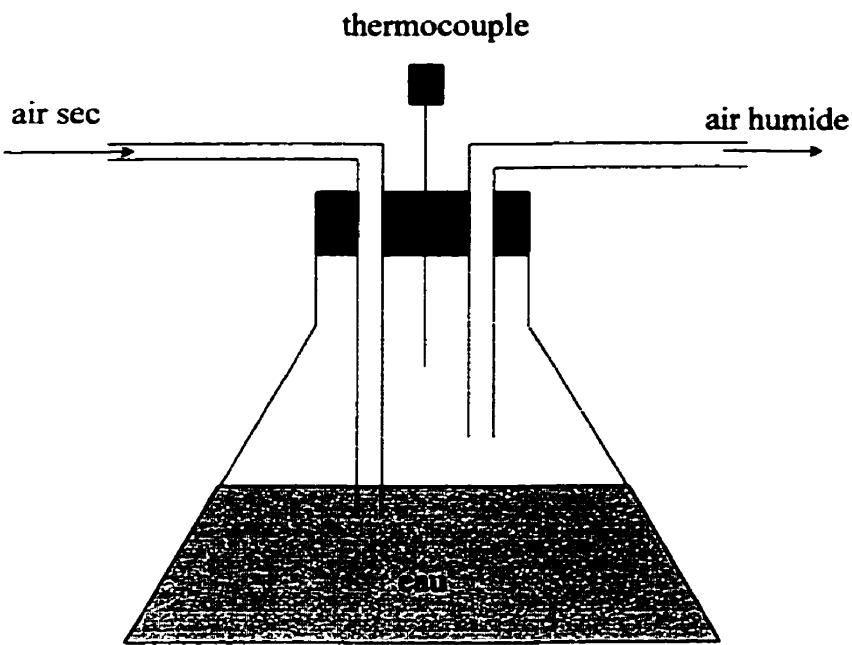


Figure 4.3 : Schéma de l'humidification de l'air à l'entrée des colonnes.

#### 4.3 SUIVI DES VARIABLES

Durant les expériences en colonnes, le suivi de la concentration d'hydrocarbures, de la biomasse, du débit d'air, de l'humidité et de la température du sol, des concentrations en phase gazeuse (à la sortie de la colonne) des COV, de l'oxygène et du bioxyde de carbone est effectué. Sauf pour la quantité bactérienne, la concentration d'hydrocarbures et des COV, les variables mentionnées précédemment sont suivies en ligne.

L'acquisition des données et le contrôle est réalisé avec le logiciel LabVIEW («Virtual Instrumentation Engineering Workbench»). Il convient de mentionner que l'analyse en phase gazeuse de l'oxygène et du bioxyde de carbone à la sortie des deux colonnes est réalisée en alternance. Des vannes solénoïdes 3 voies (Asco, Brantford, Ontario) permettent l'acheminement de l'air de sortie d'une des deux colonnes vers l'analyseur.

#### 4.3.1 Débit d'air

Le débit d'air envoyé aux colonnes est ajusté à l'aide de deux débitmètres-contrôleurs (modèle 1179a, MKS instruments, Nepean, Ontario). Un régulateur de pression (avec filtre à huile) est utilisé pour maintenir une pression de 200 kPa en amont des débitmètre-contrôleurs. Le premier débitmètre-contrôleur peut fournir un débit de 0 à 20 ml/min et le deuxième de 0 à 200 ml/min. Selon les spécifications données, le temps de réponse des débitmètres-contrôleurs est inférieur à 2 s pour l'atteinte de 98 % du point de consigne.

La mesure du débit est basée sur le transfert de chaleur impliquant des éléments chauffants. Le mouvement thermique massique est converti en débit massique via la chaleur spécifique du gaz. Le signal résultant est convertit en voltage et comparé avec le point de consigne. La vanne est positionnée à l'aide d'un contrôleur proportionnel-intégral-dérivé (PID).

La calibration des débitmètres-contrôleurs est réalisée avec un débitmètre à bulles et les résultats sont fournis à l'Annexe II. Notons que l'utilisation du débitmètre à bulles permet de confirmer que le temps de réponse des débitmètres-contrôleurs est près de 2 s.

Le contrôle du débit d'air est accompli par échelons correspondant à environ 2,25 % du débit d'air maximal pouvant être fourni par chaque débitmètre-contrôleur, soit à peu près 0,45 et 4,5 ml/min. Selon les spécifications données pour les appareils, le contrôle du débit d'air devrait être possible par échelons beaucoup plus faibles. La cause du problème n'a pu être identifiée.

#### 4.3.2 Oxygène et bioxyde de carbone en phase gazeuse

Les concentrations d'oxygène et de bioxyde de carbone de l'air à la sortie des colonnes sont mesurées à l'aide d'une sonde électrochimique et d'un détecteur infrarouge

respectivement (Nova modèle 308BWP, Géostructure, La Prairie, Québec). Selon les spécifications fournies, les lectures des deux sondes de l'appareil ne sont pas influencées par d'autres gaz ou de la vapeur d'eau. Il est recommandé que le débit d'air soit supérieur à 3 ml/min.

La sonde électrochimique d'oxygène est constituée d'une anode de plomb et d'une cathode d'or recouverte d'une membrane non poreuse de Teflon™. L'oxygène en phase gazeuse perméant la membrane est réduit à la cathode et le courant généré est directement proportionnel à la pression partielle d'oxygène.

La sonde de bioxyde de carbone est constituée d'un tube en acier inoxydable contenant un émetteur et un détecteur de rayons infrarouge. Le bioxyde de carbone absorbe une partie de l'énergie infrarouge émise vers le détecteur permettant ainsi de connaître sa concentration.

La calibration est réalisée avec des mélanges de gaz (le premier à 21 % d'oxygène et 0 % bioxyde de carbone ; le deuxième à 0 % oxygène et 20 % de bioxyde de carbone). La calibration, selon les spécifications de l'appareil, est linéaire. Cependant, pour s'assurer de la linéarité de la calibration, deux autres mélanges de gaz sont testés (avec 10 % d'oxygène et de bioxyde de carbone ; 15 % et 5 % d'oxygène et de bioxyde carbone respectivement). De plus, l'influence du débit d'air sur la mesure de l'appareil est aussi vérifiée lors de la calibration.

Les résultats démontrent que la relation entre le voltage donné par l'analyseur et la concentration des gaz est effectivement linéaire. De plus, tel qu'indiqué par les spécifications de l'appareil, il est préférable que le débit d'air soit supérieur à 3ml/min pour que les lectures de concentrations d'oxygène et de bioxyde en phase gazeuse soient valides. Les résultats de calibration sont donnés à l'Annexe II.

De plus, en calibrant l'appareil avec les mélanges de gaz de différentes concentrations, le temps de réponse des deux sondes a pu être évalué. En effet, selon les résultats de l'Annexe II, le temps requis pour atteindre une nouvelle valeur stable de voltage (correspondant à la nouvelle concentration de gaz) est inférieur à sept minutes.

Par ailleurs, due à la dérive possible des sondes de l'appareil, la calibration est vérifiée à toutes les quatre semaines d'utilisation. Les lectures étant à 0,1 % de la concentration de la vraie valeur du gaz, il est déduit que la dérive est assez faible. Notons que selon les résultats de l'Annexe II, la précision sur les lectures de concentration des gaz est de l'ordre de 0,5 % (mol/mol).

Les mélanges de gaz sont effectués à partir de gaz certifiés d'azote, d'air ultra zéro et de dioxyde de carbone (Air liquide, Montréal, Québec). Les mélanges sont stockés dans des canettes de 6 L préalablement nettoyées. Les débitmètres-contrôleurs utilisés (FC-260 Tylan General, Torrance, Californie) permettent d'envoyer un volume connu de gaz certifié pendant un certain temps prédéterminé pour préparer le mélange à la concentration voulue. La pression initiale du gaz dans les canettes est de 170 kPag.

#### 4.3.3 COV

Les hydrocarbures en phase gazeuse sont adsorbés à l'aide de tubes Orbo™ (Sigma-Aldrich, Oakville, Ontario) contenant du charbon de noix de coco. Les tubes sont envoyés pour analyse au laboratoire Zénon (Anjou, Québec). La désorption des hydrocarbures est réalisée avec du bisulfure de carbone puis le solvant est analysé par chromatographie en phase gazeuse couplée à un détecteur à ionisation de flamme. Ainsi, la quantité d'hydrocarbures en phase gazeuse peut être évaluée.

#### **4.3.4 Humidité du sol (en ligne)**

La mesure en ligne du contenu en eau volumétrique est donnée par des sondes de réflectométrie dans le domaine du temps (RDT). La RDT permet de mesurer le changement dans la vitesse de propagation d'une onde électromagnétique (déterminée par la constante diélectrique du sol humide) le long d'une tige dans un milieu poreux. Puisque la constante diélectrique de l'eau est très supérieure à celle d'un sol sec, on peut déterminer la teneur en eau volumétrique du sol.

L'évaluation du contenu en eau volumétrique est réalisée en mesurant la période de l'onde électromagnétique. La période connue, on peut estimer l'humidité du sol avec une formule de calibration fournie avec l'appareil.

La sonde (modèle CS615, Campbell Scientific, Edmonton, Alberta) consiste en un boîtier de 11 cm par 6,3 cm par 2 cm où sont reliées deux tiges de 30 cm de long, espacé de 3,2 cm ayant 3,2 mm de diamètre. Une sonde est placée verticalement au centre de chaque colonne où les tiges sont placées à une hauteur, à partir de la base de la colonne, de 32 à 62 cm. Soulignons que 94 % de l'énergie des ondes électromagnétiques est restreinte à un cylindre de diamètre égal à deux fois la distance entre les deux tiges. Par conséquent, la mesure donnée par ce type de sonde dans les colonnes indique essentiellement le contenu en eau volumétrique d'une zone cylindrique de 6,2 cm de diamètre et de 30 cm de hauteur.

#### **4.3.5 Température du sol et de l'air**

La température est déterminée avec des thermocouples de type T (Omega, Laval, Québec). Un thermocouple de type T est constitué de deux câbles parallèles de métaux différents, soit le cuivre et le constantan (alliage de 55 % de cuivre et 45 % de nickel), reliés aux deux bouts, formant ainsi deux jonctions. Une des jonctions est placée en contact avec la source de température à mesurer (jonction de mesure) pendant que l'autre

est maintenu à une température constante (et constitue la jonction de référence). Une force électromotrice s'établit entre les deux métaux conducteurs connectés, mais de propriétés différentes, et le voltage ainsi produit peut être mesuré pour indiquer la température.

La formule de calibration pour ces thermocouples est fournie par un guide de la compagnie National Instruments. Cette formule est vérifiée en plongeant les thermocouples dans un bêcher avec de l'eau agitée à des températures de 15 et 30 °C. Ceci permet d'ajuster un paramètre dans la formule de calibration pour obtenir des lectures de températures les plus exactes possibles. Il est constaté que la précision des thermocouples est d'environ 0,5 °C.

Quatre thermocouples sont placés dans chaque colonne à des hauteurs, à partir de la base de la colonne, de 18, 37, 55 et 92 cm. De plus, un thermocouple est placé dans les deux Erlenmeyer avant l'entrée d'air dans chacune des colonnes tel qu'indiqué à la figure 4.3.

Soulignons que les extrémités des tiges des thermocouples sont à quatre cm des parois des colonnes. Un test sur la mesure d'humidité du sol en ligne avec et sans thermocouple permet de constater que l'interférence sur la lecture d'humidité est inférieure à 0,1 (% vol eau/vol sol).

#### 4.3.6 Biomasse

Le suivi de la biomasse est réalisé pour les bactéries hétérotrophes et hydrocarbonoclastes. Les comptes bactériens sont établis à l'aide de la méthode de décompte sur vase de Petri et de la méthode du nombre le plus probable.

Les comptes bactériens sur vase de Petri ont été réalisés à l'Institut de recherche en biotechnologie. Le décompte est premièrement effectué pour les bactéries hétérotrophes

viables dans le sol. Les comptes bactériens sont réalisés après sept jours d'incubation à 22 °C. Ensuite, il est vérifié si ces bactéries possèdent dans leur génome des similarités avec certains gènes connus pour coder une enzyme responsable de la biodégradation d'hydrocarbures pétroliers.

Pour effectuer l'analyse génétique la sonde biomoléculaires *alkB* est utilisée. La sonde *alkB* est un fragment de 870 paires de bases de la région interne du gène *alkB* codant pour l'enzyme alcane-hydroxylase se trouvant sur le plasmide OCT de *Pseudomonas oleovorans* (ATCC 29347) (Samson *et al.*, 1992). Cette enzyme est associé à la dégradation d'hydrocarbures à courtes chaînes (entre six et douze carbones).

Pour déterminer si l'ADN des bactéries du sol est similaire à l'ADN des sondes, il s'agit, essentiellement, de faire croître les bactéries du sol sur un milieu de culture solide, de transférer les colonies sur une membrane, d'y fixer l'ADN microbien et de mettre celui-ci en contact avec les sondes marquées au phosphore-32. Si l'ADN marqué se fixe à l'ADN provenant des bactéries du sol, on pourra le détecter par l'exposition d'une pellicule photographique et ainsi confirmer la présence de bactéries ayant le potentiel de réaliser la biodégradation des hydrocarbures mentionnés (Samson *et al.*, 1992). Les méthodes de décomptes sur Petris et de préparation des sondes biomoléculaires et d'hybridation de l'ADN sont détaillées par Greer *et al.* (1993).

Le suivi des bactéries hétérotrophes et des dégradeurs d'hexadécane par la méthode du nombre le plus probable ont été réalisés dans le cadre d'un projet de fin d'études à l'École Polytechnique de Montréal par Diallo (1998). En résumé, la méthode consiste à extraire les micro-organismes du sol, les transférer dans un tube contenant un milieu nutritif et les incuber à 30 °C. Pour les décomptes hétérotrophes et de dégradeurs d'hexadécane, le temps d'incubation est de quatre jours et de dix-sept jours respectivement. Les tubes turbides sont considérés positifs et les clairs négatifs. Les concentrations sont ensuite

déduites à l'aide de tables permettant d'estimer le nombre le plus probable, basé selon la loi de Poisson. La procédure est détaillée par Diallo (1998).

Les échantillons de sol (2 g pour la méthode du nombre le plus probable et 0,75 g pour les décomptes sur Petri) sont prélevés en insérant un tube cylindrique stérile dans la colonne à des hauteurs, à partir de la base, de 18, 55 et 92 cm. L'échantillon est transféré dans un contenant de verre stérile et conservé à 4 °C, si nécessaire, avant de débuter les tests.

#### **4.3.7 Concentrations des hydrocarbures, COT et humidité du sol**

La concentration d'hydrocarbures, de COT et de l'humidité du sol sont évaluées selon les méthodes données à la section 4.1 par le laboratoire Zénon (Anjou, Québec). Les échantillons (3 g pour la concentration des hydrocarbures et 2 g pour le contenu en eau) de sol sont prélevés selon la méthode décrite au paragraphe précédent. Il est nécessaire que les quantités de sol analysées soient assez faibles pour ne pas modifier excessivement les propriétés du sol en colonne (compaction, écoulement de l'air, etc.). Évidemment pour les analyses précédent et suivant les tests dynamiques, des quantités de sol plus grandes sont prélevées (50 g).

### **4.4 MÉTHODOLOGIE**

Une fois qu'il est démontré, à l'aide des méthodes décrites à la section 4.1, que le sol retenu pour les expériences possède une microflore indigène capable de minéraliser les hydrocarbures semi-volatils, les tests en colonnes peuvent être réalisés. Ces tests viseront à déterminer le comportement dynamique du système représentant le procédé de bioventilation *in situ*. Soulignons que les essais dynamiques au laboratoire ont été effectués durant les mois de janvier à mai 1998.

La méthodologie employée pour atteindre les objectifs du projet peut être séparée en trois étapes. La première étape consiste en l'application d'échelons sur le débit d'air, la deuxième à réaliser une séquence binaire pseudo-aléatoire sur le débit d'air et la troisième à effectuer des essais en boucle fermée pour tester l'algorithme de contrôle. Il convient de mentionner que lors des tests dynamiques, le suivi des hydrocarbures pétroliers, du COT, de la croissance bactérienne et des COV est réalisé à l'aide des méthodes données à la section 4.3.

#### **4.4.1 Séquences échelons sur le débit d'air et première estimation d'un modèle empirique**

Des échelons sont appliqués sur le débit d'air de manière croissante et décroissante pour déterminer la variation des différentes variables suivies. Pour différents points d'opération, ceci permet de caractériser le comportement non-linéaire de la dynamique du système. L'amplitude et la durée des variations du débit d'air sont fonction de la réponse dynamique de la concentration d'oxygène en phase gazeuse puisque c'est la variable qui est utilisée pour l'algorithme de contrôle.

Les résultats des tests échelons, en première approximation, sont modélisés avec une fonction de transfert de premier ordre avec délai (équation 2.18). D'abord, on trouve les paramètres d'un modèle ARX d'ordre  $na=nb=1$ , où  $nk$  est varié pour minimiser la valeur de  $E$  (équation 2.4). Ensuite, les paramètres de la fonction de transfert de premier ordre avec délai (le gain, la constante de temps dominante et le délai) sont évalués selon les équations 2.13 et 2.14. La modélisation est évidemment réalisée pour  $y(t)$  et  $u(t)$  en déviation par rapport au régime permanent initial.

Suite aux premiers tests échelons, la période d'échantillonnage peut être fixée pour la durée de la séquence. Les règles pour fixer la période d'échantillonnage sont diverses. En général, la constante de temps dominante additionnée au délai est divisée par 10 ou 20 (Seborg *et al.*, 1989 ; Marlin, 1995).

Il convient de rappeler que la lecture d'oxygène et de bioxyde de carbone en phase gazeuse est réalisée en alternance pour les deux colonnes. Tel qu'indiqué à la section 4.3.2, le temps de réponse de l'analyseur d'oxygène et de bioxyde de carbone en phase gazeuse est d'environ sept minutes. Par conséquent, la période d'échantillonnage sera fixée au minimum à vingt minutes par colonnes (c.-à-d. qu'il y a lecture des concentrations d'oxygène et de bioxyde de carbone aux dix minutes). Si cette période d'échantillonnage est trop élevée par rapport à la constante de temps dominante, les mesures ne pourront pas être réalisées en alternance entre les deux colonnes.

#### **4.4.2 PRBS sur le débit d'air et modélisation empirique**

Une première estimation du gain, de la constante de temps dominante et du délai du système permet de concevoir le signal utilisé pour le PRBS. En effet, selon les critères donnés à la section 2.4.3, l'intervalle de temps où il y a possibilité d'un changement de débit ainsi que les débits d'air inférieur et supérieur peuvent être déterminés.

Avant d'implanter le PRBS, plusieurs séquences sont générées sur ordinateur et les valeurs des coefficients d'autocorrélation sur le débit d'air ( $r_u(k)$ ) sont évaluées selon les équations 2.5 et 2.6 (où le vecteur  $u(t)$  remplace  $\varepsilon(t)$ ). Tel qu'indiqué à la section 2.4.3, le PRBS utilisé devrait avoir les caractéristiques d'un bruit blanc. Ainsi, les valeurs de  $r_u(k)$  du PRBS retenu tendent vers zéro. Les valeurs de  $r_u(k)$  du PRBS choisi sont données à l'annexe III, les intervalles de confiance bilatéraux sont posés à 99 % (voir équation 2.7).

Les résultats du PRBS permettent de trouver un modèle décrit par l'équation 2.2. Le critère de la parcimonie dicte en partie le choix de la structure et de l'ordre du modèle. Tel que recommandé par Ljung (1987), un modèle de type ARX est postulé comme premier choix.

Pour déterminer l'ordre du modèle de type ARX, il faut :

1. calculer la moyenne de  $y(t)$  et  $u(t)$  ;
2. soustraire à  $y(t)$  et  $u(t)$  leur moyenne respective, permettant ainsi d'avoir une séquence où les variables d'entrée et de sortie sont de moyenne zéro ;
3. postuler un modèle ARX d'ordre  $na=nb=1$ , où  $nk$  est varié, on détermine celui-ci avec la valeur la plus faible de  $E$  (tel que défini à l'équation 2.4) ;
4. pour le modèle ARX trouvé, on calcule  $r_e(k)$  (équations 2.5 et 2.6) et  $r_{eu}(k)$  (équations 2.8 et 2.9). Ceci permet de vérifier si les hypothèses sur  $\varepsilon(t)$ , données dans la section 2.4.2, sont vérifiées. Les intervalles de confiance sont évalués avec les équations 2.7 et 2.10.

La même procédure est ensuite appliquée pour des modèles ARX d'ordre supérieur. Cependant, pour retenir un modèle d'ordre supérieur, des tests additionnels sont requis et ce, même si la valeur de  $E$  est plus faible pour le modèle d'ordre supérieur. Ainsi, les constantes de temps ( $\tau_i$ ) de la fonction de transfert dans le domaine de Laplace sont évaluées et le modèle est rejeté si la constante de temps n'est pas strictement à partie réelle. De plus, pour s'assurer que le critère de la parcimonie est toujours respecté, les pôles et les zéros de la fonction de transfert échantillonnée sont comparés. Si les intervalles de confiance d'un pôle et d'un zéro se recoupent, le modèle est rejeté puisque les paramètres sont jugés redondants.

Si les données sont mal représentées par un modèle de type ARX, selon les critères mentionnés ci-dessus, un modèle de type ARMAX devient le deuxième choix de structure postulée. Le même cheminement que pour la structure ARX est répété. Si un modèle de type ARMAX n'est pas satisfaisant, des structures OE et BJ sont aussi essayées.

Enfin, notons que les calculs des paramètres des modèles et des critères de validation sont effectués à l'aide du module d'identification des systèmes du logiciel MATLAB®.

#### 4.4.3 Essais en boucle fermée

Le modèle trouvé à la suite du PRBS est utilisé pour le réglage du contrôleur. À l'aide de la fonction de transfert entre l'oxygène en phase gazeuse et le débit d'air, les paramètres du contrôleur peuvent être déterminés par la méthode de la synthèse directe.

La performance du contrôleur est évaluée par des changements sur le point de consigne. Ces changements seront réalisés avec des tests échelons et GBS. Pour le test GBS, la probabilité que le point de consigne demeure constant, pour la période d'échantillonnage donnée, sera évaluée, selon l'équation 2.12, avec la fréquence égale à l'inverse de la constante de temps posée en boucle fermée.

De plus, l'utilisation du GBS permet aussi l'identification d'un modèle empirique selon la méthodologie décrite à la section précédente. Ainsi, ce modèle pourra être comparé avec celui déterminé avec le PRBS.

### 4.5 MATÉRIELS ET MÉTHODES POUR LES ESSAIS DYNAMIQUES RÉALISÉS SUR LE TERRAIN

L'opportunité s'est présenté pendant quelques jours en octobre 1996 de réaliser des essais dynamiques sur le terrain. Ainsi, on pourra effectuer une comparaison du comportement dynamique du procédé de bioventilation *in situ* sur le terrain avec les essais en colonnes. Les résultats sur le terrain pourraient donner un aperçu de la faisabilité de l'implantation d'un algorithme de contrôle sur le procédé à grande échelle.

Le site situé à Sept-Îles était contaminé au diesel et traité par bioventilation *in situ*. Les niveaux de contamination moyens étaient de 9 900 mg/kg ( $C_{10}-C_{50}$ ). Les détails sur la

configuration du procédé ne peuvent être donnés suite à une entente de confidentialité. Toutefois, on peut mentionner que le site contenait plusieurs puits d'injection d'air et que l'écoulement de l'air dans la zone vadose, selon la configuration des puits, pouvait être considéré comme étant tridimensionnel.

Les tests consistaient à suivre l'oxygène en phase gazeuse suite à des changements échelons sur le débit d'air. La concentration d'oxygène en phase gazeuse était mesurée à l'aide de sondes électrochimiques placées dans le sol à des profondeurs de 1 et 2 m et reliées à un boîtier d'acquisition de données (modèle XT-252, Datawrite Research Co., Visalia, Californie). Le débit d'air était mesuré à l'aide d'un anémomètre placé dans un tuyau reliant la pompe au puits d'injection. La figure 4.4 illustre l'emplacement des sondes d'oxygène et de l'anémomètre par rapport au puits d'injection.

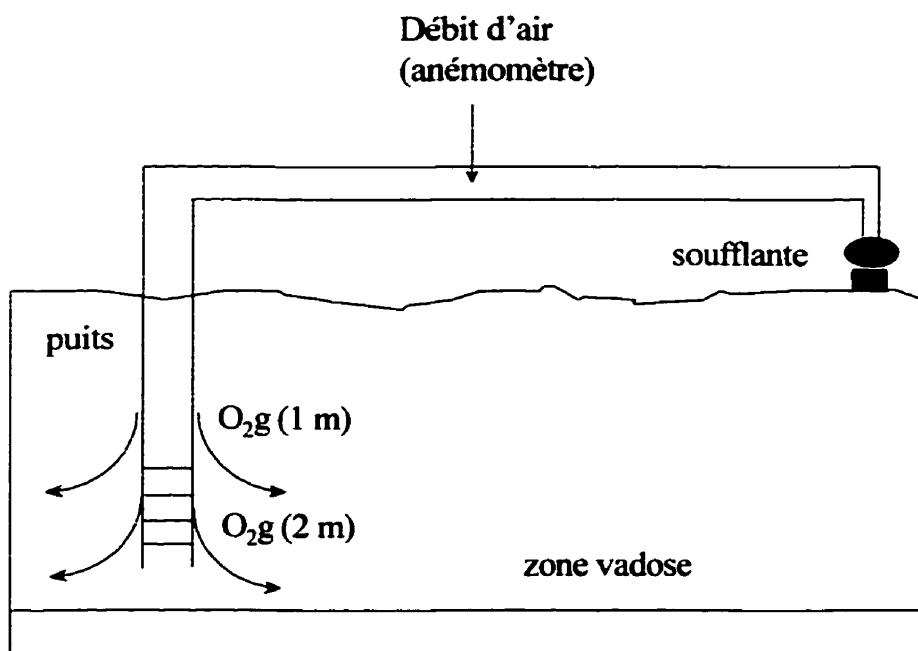


Figure 4.4 : Schéma illustrant l'emplacement des sondes d'oxygène et de l'anémomètre sur le terrain.

## 5 PRÉSENTATION ET ANALYSE DES RÉSULTATS

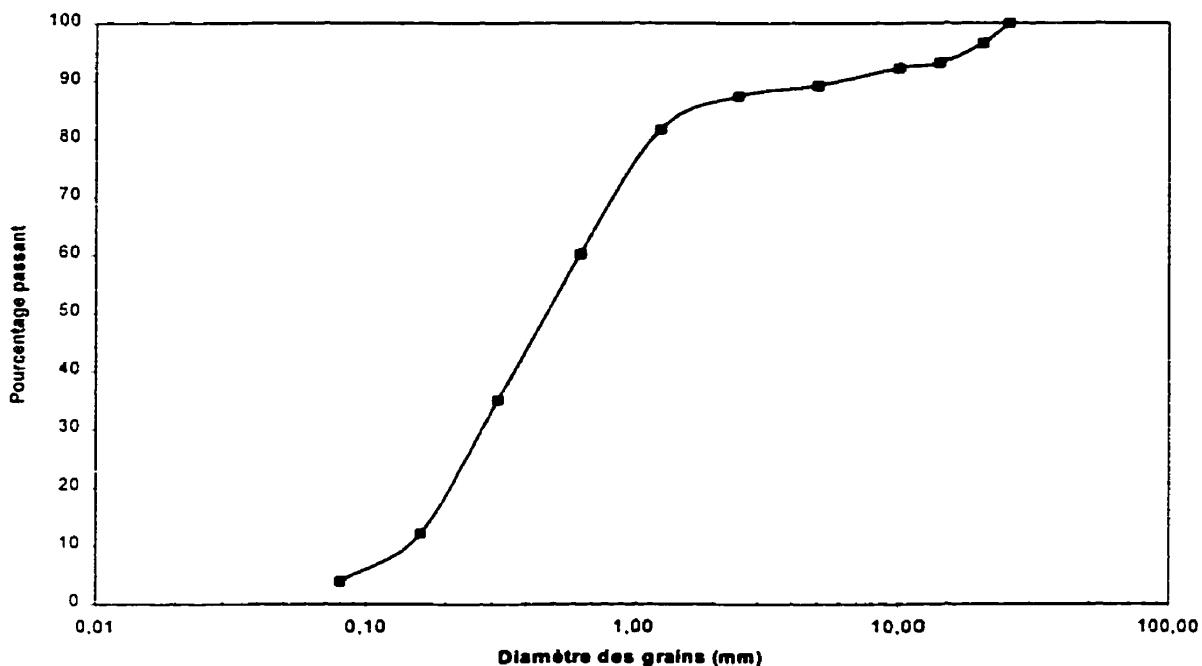
Ce chapitre contient la présentation des résultats et leur analyse en quatre sections. La première section comprend les résultats relatifs à la caractérisation du sol utilisé pour les expériences. La deuxième section contient la discussion des résultats pour le suivi de la volatilisation et de la biodégradation lors des essais dynamiques. L'analyse des résultats des essais en régime transitoire est donnée dans la troisième section. La dernière section présente les résultats de tests dynamiques réalisés sur le terrain lors d'un traitement par bioventilation *in situ*.

### 5.1 CARACTÉRISATION INITIALE DU SOL UTILISÉ

#### 5.1.1 Propriétés physico-chimiques

La caractérisation du sol est effectuée selon les méthodes données à la section 4.1. La courbe granulométrique du sol est montrée à la figure 5.1. Les résultats des autres analyses sont présentés au tableau 5.1. Soulignons que l'historique de contamination du sol n'est pas connu.

Selon la classification USDA (Département de l'Agriculture des États-Unis), l'analyse granulométrique permet de classer le sol comme un sable. La texture du sol est donc favorable pour un traitement par bioventilation (Samson, 1994).



**Figure 5.1 : Courbe granulométrique du sol.**

L'analyse de la concentration des hydrocarbures pétroliers est réalisée sur quatre échantillons de sol, celle de l'humidité sur dix, de la CRC sur deux, du pH sur cinq, pour le rapport C/N/P et la densité des grains sur un. Pour les analyses réalisées sur plusieurs échantillons, les résultats sont assez semblables à l'exception de l'humidité du sol qui variait de 2,2 à 8,5 %. Pour le rapport C/N/P, les concentrations de COT de NTK et PT sont respectivement 30 000, 279 et 11 mg/kg.

**Tableau 5.1 : Caractérisation physico-chimique du sol**

Paramètre	Valeur moyenne (si plus d'un échantillon)
C <sub>10</sub> -C <sub>50</sub> (mg/kg)	18 500
Humidité (% massique)	4,0
CRC (% massique)	13,7
Rapport C/N/P	2727/125/1
pH	7,3
Densité des grains (kg/L)	2,455

### 5.1.2 Propriétés microbiologiques

Sauf pour l'humidité du sol et le rapport C/N/P, on constate que les valeurs des paramètres physico-chimiques du sol sont situées dans des intervalles acceptables pour la biodégradation des hydrocarbures pétroliers. Il est donc vérifié, selon la méthodologie décrite à la section 4.1.6, à l'aide d'essais en microcosmes si la microflore indigène peut dégrader de l'hexadécane. Les résultats sont donnés à la figure 5.2.

Les résultats des essais en microcosmes démontrent que la microflore indigène du sol a la capacité de minéraliser l'hexadécane. Il y a donc des dégradeurs d'hydrocarbures pétroliers et l'utilisation de ce sol pour les expériences en colonnes semble donc prometteuse. Par ailleurs, on observe que le temps de latence pour la minéralisation de l'hexadécane est supérieur pour le sol plus sec. Ainsi, pour favoriser la biodégradation du sol lors des expériences en colonnes, il incombe de s'approcher de l'humidité du sol et du rapport C/N/P généralement prescrits. En conséquence, tel que mentionné à la section 4.2.2, une solution de MSM est mélangée au sol avant de remplir les colonnes. L'ajout de MSM est réalisé pour que l'humidité finale du sol soit égale à 60 % de la CRC (en considérant l'humidité initiale du sol à 4,0 %).

Les pourcentages de minéralisation cumulatif de presque 80 % montrent qu'il y a peu de carbone utilisé pour la croissance bactérienne provenant du n-Hexadécane-1-<sup>14</sup>C. Ceci est surprenant si l'on considère que le pourcentage de minéralisation cumulatif maximal trouvée dans la littérature est de 68 % (Samson *et al.*, 1998). Ce résultat a été obtenu lors d'essais de minéralisation à l'hexadécane en microcosmes sur un sol contaminé au PCP et aux hydrocarbures pour une période de 120 jours.

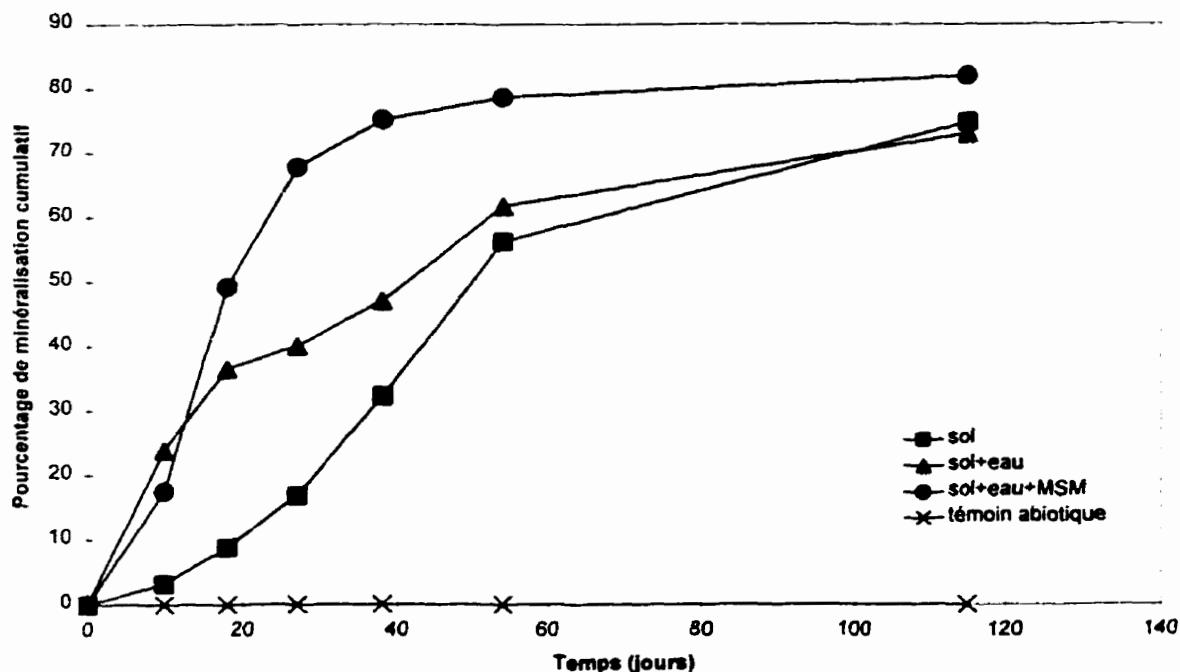


Figure 5.2 : Courbe de minéralisation de l'hexadécane en microcosmes.

### 5.1.3 Propriétés du sol en colonnes

Il convient de mentionner que l'objectif, en remplissant les colonnes, est d'avoir des conditions d'opération similaires pour chaque colonne. Cependant, même en mélangeant et homogénéisant le sol dans plusieurs chaudières, le contenu en eau de celui-ci demeure très variable.

De plus, en compactant (manuellement) le sol, sa masse est quelque peu différente pour chaque colonne. En effet, les colonnes 1 et 2 contiennent respectivement 28 et 31,5 kg de sol. Ceci a pour conséquence que la porosité du sol à l'air dans la première colonne est de 0,4 et de 0,32 dans la deuxième. L'humidité et la porosité influencent surtout la perméabilité du sol à l'air et l'activité microbienne (U.S.EPA, 1995a).

La porosité du sol à l'air ( $n_a$ ) est estimée selon la relation suivante :

$$n_a = 1 - \frac{Msol/V}{\rho_g} \quad (5.1)$$

où :

$Msol$  est la masse de sol dans la colonne

$V$  le volume de sol

$\rho_g$  la densité des grains

## 5.2 SUIVI DE LA VOLATILISATION ET DE LA BIODÉGRADATION

### 5.2.1 Volatilisation des hydrocarbures pétroliers

Les analyses des hydrocarbures pétroliers en phase gazeuse, à divers moments lors des tests dynamiques, révèlent que l'on peut identifier la fraction volatilisée à de l'huile à chauffage. Cette identification est réalisée par le laboratoire externe suite à l'analyse des chromatogrammes. Les concentrations d'hydrocarbures en phase gazeuse en fonction du débit d'air moyen utilisé lors de l'essai sont données au tableau 5.2.

On s'aperçoit que les concentrations de COV sont très faibles. Un calcul simple permet de démontrer que la fraction d'hydrocarbures volatilisée durant les essais est inférieure à 0,06 %. Les bases pour ce calcul sont : un débit moyen de 15 ml/min, un temps de traitement de 128 jours, une concentration de COV de 59100 µg/m<sup>3</sup>, une concentration initiale d'hydrocarbures dans le sol de 10 000 mg/kg pour 28 kg de sol ayant une humidité de 8 %.

Par ailleurs, on ne discerne pas de relation entre la concentration de COV et le temps de traitement. De plus, on ne peut pas déceler une tendance véritable entre la concentration de COV et le débit d'air. Toutefois, on peut constater que la quantité d'hydrocarbures volatilisés (le débit d'air multiplié par la concentration de COV) augmente généralement

pour des débits d'air plus élevés. Ceci nous permet de croire que la stratégie de contrôle proposée satisfait l'orientation de l'hypothèse de recherche relative à la réduction de la volatilisation des hydrocarbures pétroliers.

Tableau 5.2 : Concentrations des COV en fonction du débit d'air

Temps (jours)	Colonne 1		Colonne 2	
	Débit d'air (ml/min)	COV ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	Débit d'air (ml/min)	COV ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )
22 à 24	18,0	38200	16,4	22500
24 à 26	11,0	41400	8,0	28000
35 à 43	15,3	42600	15,5	24500
59 à 71	13,0	35000	8,0	34200
78 à 84	22,0	41700	13,8	33400
84 à 91	20,2	59100	11,2	38900

### 5.2.2 Biodégradation des hydrocarbures pétroliers

Le suivi des concentrations d'hydrocarbures pétroliers ( $C_{10}$ - $C_{50}$ ) à différents moments lors des tests dynamiques est donné aux figures 5.3 et 5.4 pour les colonnes 1 et 2 respectivement. Les échantillons sont prélevés à des hauteurs, à partir de la base, de 18 (bas), 55 (milieu) et 92 (haut) cm. Les données pour les hydrocarbures fractionnés sont présentées aux figures 5.5 et 5.6. Notons que pour les jours 30, 44 et 59, le contenu en eau n'a pas été évalué par le laboratoire. Par conséquent, les concentrations en base sèche ont du être estimées à l'aide des valeurs du contenu en eau du sol des autres échantillons. Les détails sont donnés à l'annexe IV.

On peut avoir tendance à croire, suite aux analyses  $C_{10}$ - $C_{50}$ , que l'activité de biodégradation était faible, voir même inexistante. En fait, on observe une variabilité importante des concentrations de  $C_{10}$ - $C_{50}$  entre les échantillons. Les différences entre les valeurs minimale et maximale des concentrations de  $C_{10}$ - $C_{50}$  au jour 0 et 128 sont données au tableau 5.3. On constate également que les valeurs initiales, au jour 0, de  $C_{10}$ - $C_{50}$  en colonnes sont plus faibles (entre 10060 et 12800 mg/kg) que celle trouvée lors de la

caractérisation initiale (18500 mg/kg). Notons que l'écart-type des analyses d'hydrocarbures pétroliers sur un site traité par bioventilation *in situ* est généralement de 8 000 mg/kg (U.S.EPA, 1995b).

Tableau 5.3 : Variabilité des analyses C<sub>10</sub>-C<sub>50</sub>

	Jour 0	Jour 128
Colonne 1 (mg/kg)	2100	3900
Colonne 2 (mg/kg)	2300	6800

L'U.S.EPA (1995a) a démontré à l'aide d'une étude statistique sur 125 sites traités par bioventilation *in situ* que la consommation d'oxygène est corrélée à la concentration d'hydrocarbures pétroliers et elle peut être utilisée comme outil pour déterminer les niveaux de contamination dans le sol. Ainsi, connaissant le débit d'air volumique et les concentrations d'oxygène et de b oxyde de carbone en phase gazeuse, la quantité d'hydrocarbures biodégradés peut être estimée à l'aide d'un bilan de masse sur ces composants. La quantité d'hydrocarbures volatilisée est considérée négligeable suite au calcul de la section précédente.

Les calculs sont effectués en considérant que 3,4 g d'oxygène sont requis et 3,1 g de b oxyde de carbone sont produits lors de la biodégradation de 1 g hydrocarbures (voir équation 2.1). La densité de l'air est évaluée à l'aide de la loi des gaz parfaits (pour une pression de 1 atm et une température de 22 °C).

Il est estimé à l'aide du bilan de masse sur l'oxygène et sur le b oxyde de carbone respectivement, que la concentration d'hydrocarbures pétroliers a diminué, en moyenne, d'environ 2500 à 2650 mg/kg par colonne pour une période de 128 jours. Ceci correspond à des taux de biodégradation moyens, selon les bilans de masse sur l'oxygène et le b oxyde de carbone respectivement, de 19,5 et de 20,7 mg hydrocarbures/kg sol j. Les taux moyens de biodégradation varient généralement entre 2 et 20 mg/kg-j lors d'un traitement par bioventilation *in situ* (U.S.EPA, 1995a). Il est intéressant de constater que

le calcul avec le bioxyde de carbone donne des taux de biodégradation plus élevés. En général, le contraire est observé (U.S.EPA, 1995a). En effet, tel que mentionné à la section 2.2.6, le bioxyde de carbone gazeux peut être transformé en carbonates et les taux estimés sont donc plus faibles.

Ce calcul suppose que tout l'oxygène consommé et le bioxyde de carbone produit résultent de la biodégradation des hydrocarbures pétroliers. Le taux de biodégradation des hydrocarbures pétroliers estimé est donc maximal. Ainsi, à l'aide des bilans de masse sur l'oxygène et le bioxyde de carbone, la valeur maximale d'hydrocarbures biodégradée correspond à une diminution de 2 650 mg/kg d'hydrocarbures pétroliers ; ce qui est similaire à la variabilité des valeurs des analyses C<sub>10</sub>-C<sub>50</sub>. Les conclusions par rapport aux analyses C<sub>10</sub>-C<sub>50</sub> sont donc difficiles à formuler. En prenant une plus grande quantité d'échantillons de sol, un meilleur estimé de la concentration moyenne de C<sub>10</sub>-C<sub>50</sub> aurait été obtenu, ce qui nous aurait permis de vérifier les calculs issus des bilans de masse. Il aurait alors été plus facile de démontrer, à l'aide d'analyses C<sub>10</sub>-C<sub>50</sub>, les bienfaits du procédé au niveau environnemental.

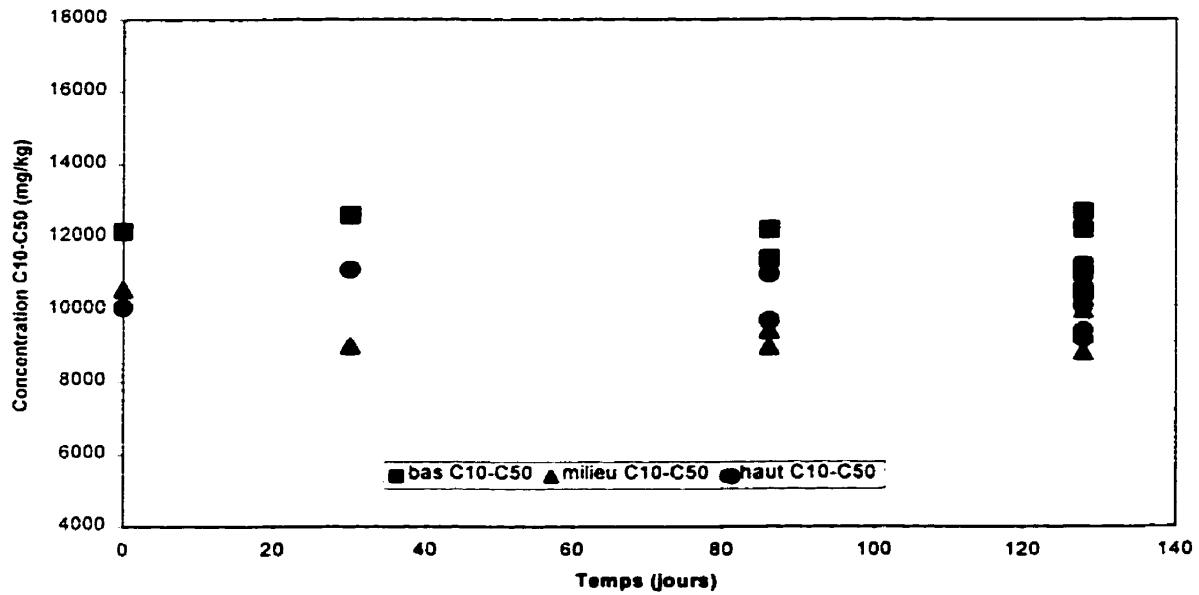


Figure 5.3 : Concentrations des C<sub>10</sub>-C<sub>50</sub> en fonction du temps (colonne 1).

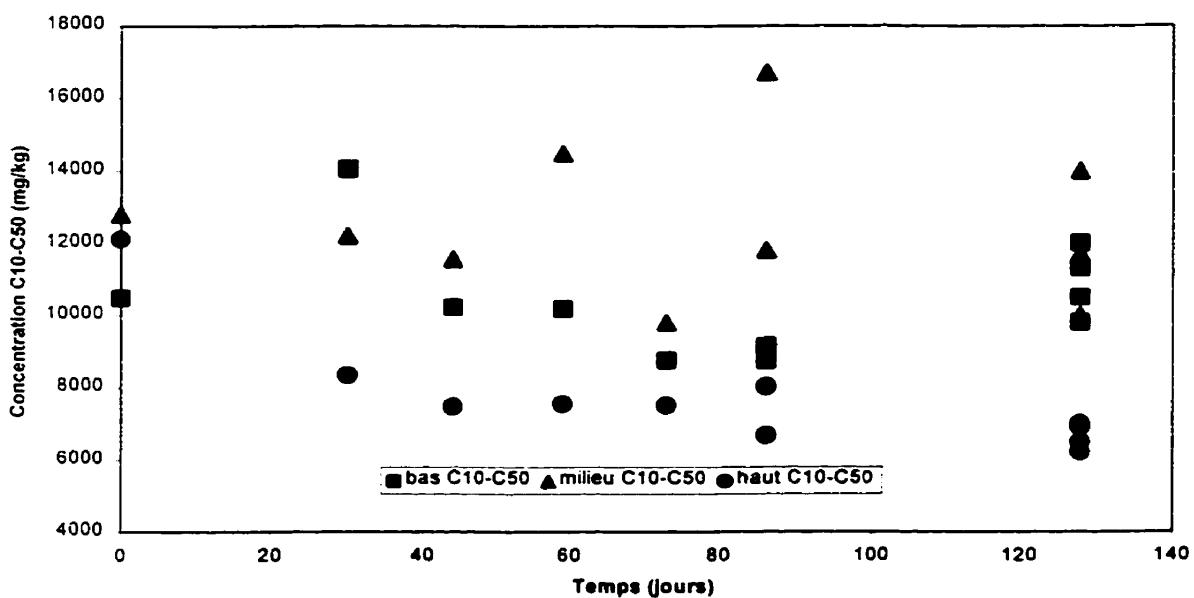


Figure 5.4 : Concentrations des C<sub>10</sub>-C<sub>50</sub> en fonction du temps (colonne 2).

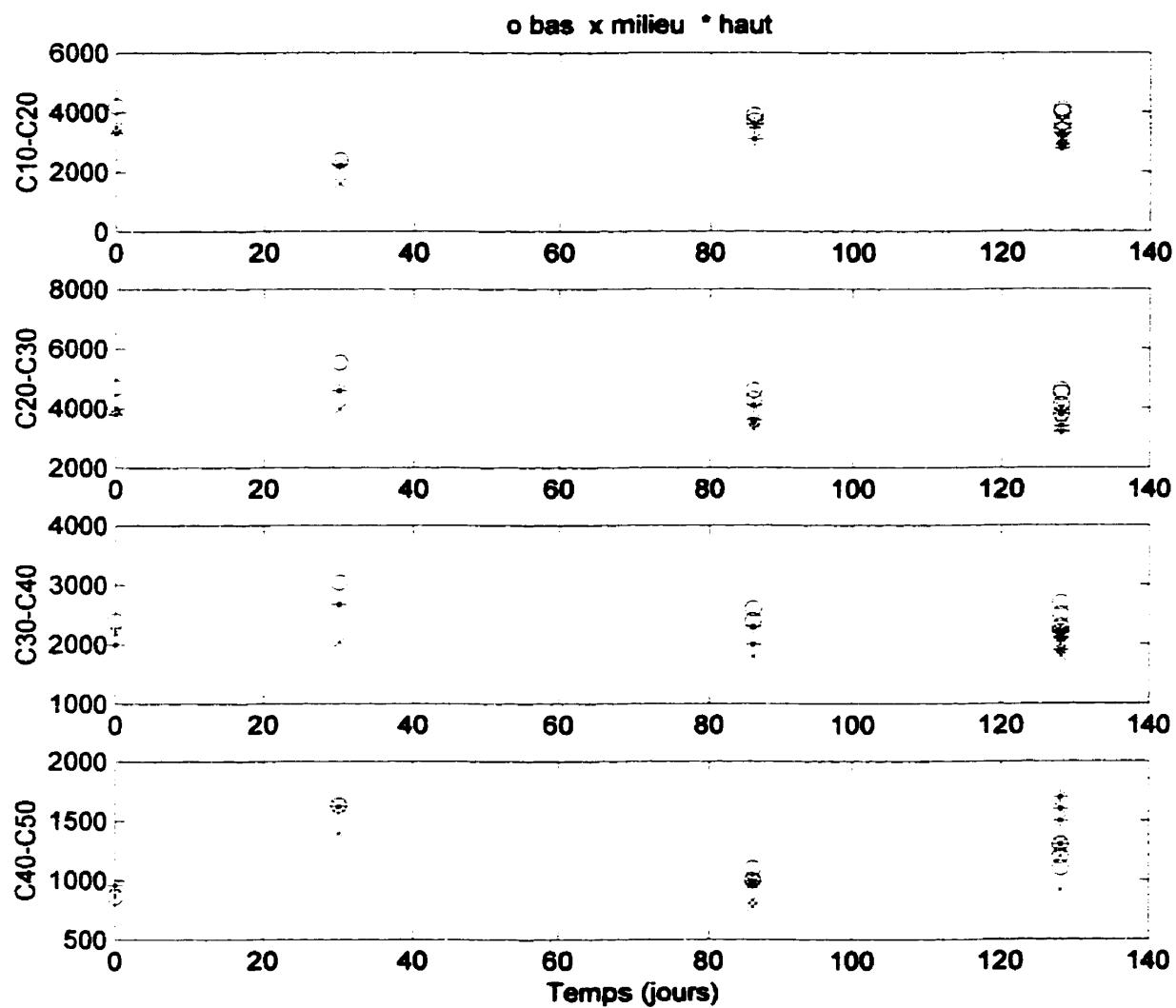


Figure 5.5 : Concentrations des  $C_{10}-C_{50}$  fractionnés en fonction du temps (colonne 1).

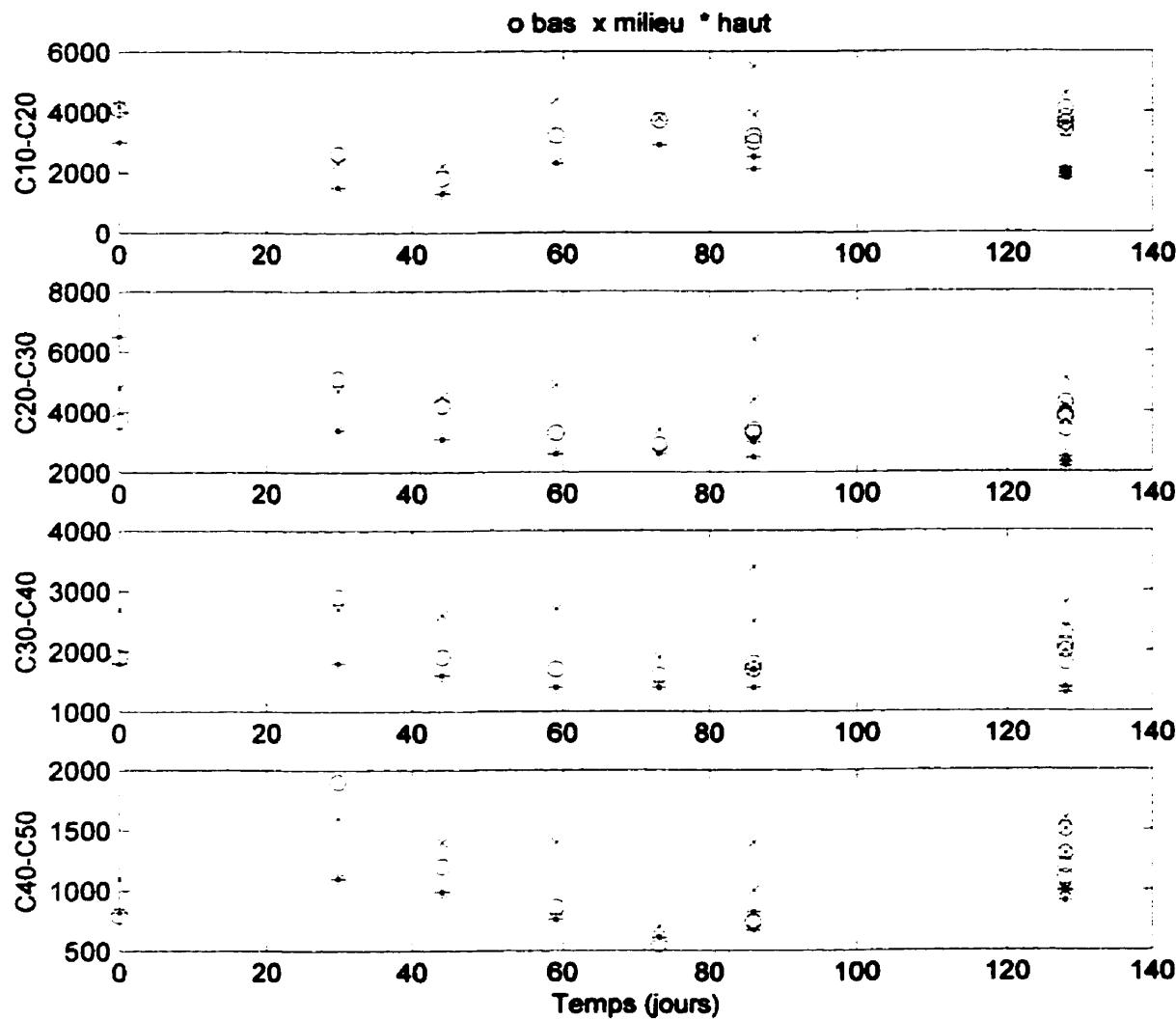


Figure 5.6 : Concentrations des C<sub>10</sub>-C<sub>50</sub> fractionnés en fonction du temps (colonne 2).

Les valeurs moyennes et la différence entre la valeur maximale et minimale de COT pour le premier et dernier jour des tests sont données au tableau 5.4. Il est surprenant de constater que la concentration moyenne de COT (75 400 mg/kg) au premier jour est assez différente de celle trouvée lors de la caractérisation initiale (30 000 mg/kg). La fraction d'hydrocarbures pétroliers sur le COT au jour 0 (15 %) est donc très différente de celle trouvée lors de la caractérisation initiale (62 %). Des proportions si élevées de matière organique dans le sol peuvent rendre les hydrocarbures pétroliers moins biodisponibles aux micro-organismes à cause des phénomènes de sorption (U.S.EPA, 1995a).

La consommation d'oxygène peut alors être reliée à la dégradation de la matière organique autre que les hydrocarbures. Cependant, on observe également une certaine variabilité des concentrations de COT, il est donc difficile de savoir si la respiration des micro-organismes est due à la dégradation de matière organique.

Tableau 5.4 : Concentrations de COT (colonne 2)

Position	Jour 0		Jour 128	
	Moyenne	Variabilité*	Moyenne	Variabilité*
Bas (mg/kg)	74 300	7 000	76 000	7 000
Milieu (mg/kg)	79 000	12 000	77 200	15 000
Haut (mg/kg)	73 300	10 000	66 300	5 000
Moyenne (mg/kg)	75 400	9 700	73 200	9 000

\* Valeur minimale soustraite à la valeur maximale (3 échantillons au jour 0 et 4 échantillons au jour 128)

Par ailleurs, les figures 5.7 et 5.8 donnent les concentrations de biomasse mesurées dans le sol en fonction du temps. Les populations hétérotrophes totales se situent en moyenne à des concentrations variant entre  $10^5$  et  $10^7$  (NPP/g sol et UFC/g sol) et les dégradeurs d'hexadécane entre  $10^3$  et  $10^5$  (NPP/g sol). On peut constater que les comptes bactériens sont typiques de sols possédant une bonne activité biologique (voir section 2.2.1). Notons que l'écart-type des concentrations de biomasse n'est pas donné sur les graphiques car celui-ci est très faible (les barres d'erreurs sont plus courtes que les symboles utilisés sur les figures).

La proportion des dégradeurs d'hexadécane sur les hétérotrophes totaux est donnée au tableau 5.5. On observe une certaine variabilité au niveau des résultats. Néanmoins, ces résultats confirment la présence de dégradeurs d'hexadécane dans le sol.

Tableau 5.5 : Pourcentage de dégradeurs d'hexadécane sur les hétérotrophes totaux (méthode NPP)

Temps (jours)	Pourcentage (bas)	Pourcentage (milieu)	Pourcentage (haut)
44	8	≈0	≈0
59	22	20	47
73	100	≈0	9
86	52	100	100

Les tendances pour la colonne 2 entre les valeurs de biomasse hétérotrophe évaluées sur vase de Petri et par la méthode NPP sont similaires. Les valeurs des concentrations de biomasse sont quelque peu différentes, mais ceci est dû à la différence entre les méthodes (milieu nutritif, température et période d'incubation).

On s'aperçoit, pour la deuxième colonne, que les comptes bactériens pour les points du milieu et du haut sont généralement égaux ou plus élevés que ceux du bas. Pour les dégradeurs d'hexadécane, la concentration de biomasse est plus élevé d'un ordre de grandeur dans le haut de la colonne entre les jours 59 et 86. De surcroît, ce n'est que dans le haut de la colonne 2 que les résultats des analyses C<sub>10</sub>-C<sub>50</sub> (surtout les C<sub>20</sub>-C<sub>30</sub>) semblent indiquer que la contamination peut avoir diminué. Par contre, cette conclusion ne peut être tirée pour la colonne 1, les valeurs des décomptes cellulaires et des C<sub>10</sub>-C<sub>50</sub> étant similaires.

De plus, l'aération des colonnes étant effectuée du bas vers le haut, il résulte que la concentration d'oxygène en phase gazeuse en haut de colonne est plus faible qu'en bas de colonne. Étant donné que les concentrations de biomasse ne sont pas plus faibles en haut de colonne, on déduit que l'oxygène n'est probablement pas l'élément limitant la biodégradation. Ceci nous porte à croire que l'aspect limitant la biodégradation des

hydrocarbures pétroliers est lié au taux de biodégradation et non dû au transfert de masse de l'oxygène. Les concentrations d'oxygène en phase gazeuse choisies lors des essais sont donc assez élevées (voir section 5.3).

En outre, la sonde *alkB* dérivée de *Pseudomonas oleovorans* n'hybridait presque pas avec les bactéries hétérotrophes viables du sol. Au total la sonde *alkB* a été testée sur 27 Petri en triplicata. Seul le point du milieu de la première colonne, au jour 86 a donné une concentration de  $9,33 \times 10^5$  UFC/g sol, les autres essais étant tous négatifs.

Whyte *et al.*, (1996) ont constaté que des fragments scrutés par réaction en chaîne par polymérase obtenus de souches pouvant minéraliser le dodécane et l'hexadécane n'hybridaient pas avec une sonde génomique *alkB* dérivée de *Pseudomonas oleovorans*. Ils expliquent que les amorces *alkB* pourraient amplifier un ou plusieurs autres gènes ayant possiblement une faible homologie avec *alkB* de *Pseudomonas oleovorans* et qui pourraient être impliqués dans la biodégradation des alcanes à chaîne courte (dodécane) et à chaîne plus longue (hexadécane). Ils étudient présentement le phénomène.

Enfin, mentionnons que la température du sol était située généralement entre 20 et 23 °C et le pH au début et à la fin des expériences était de 7,3. L'humidité du sol était en moyenne à 51 et 64 % de la CRC pour les colonnes 1 et 2 respectivement. Tel qu'indiqué au chapitre 2, ces facteurs sont situés dans des intervalles acceptables pour la biodégradation.

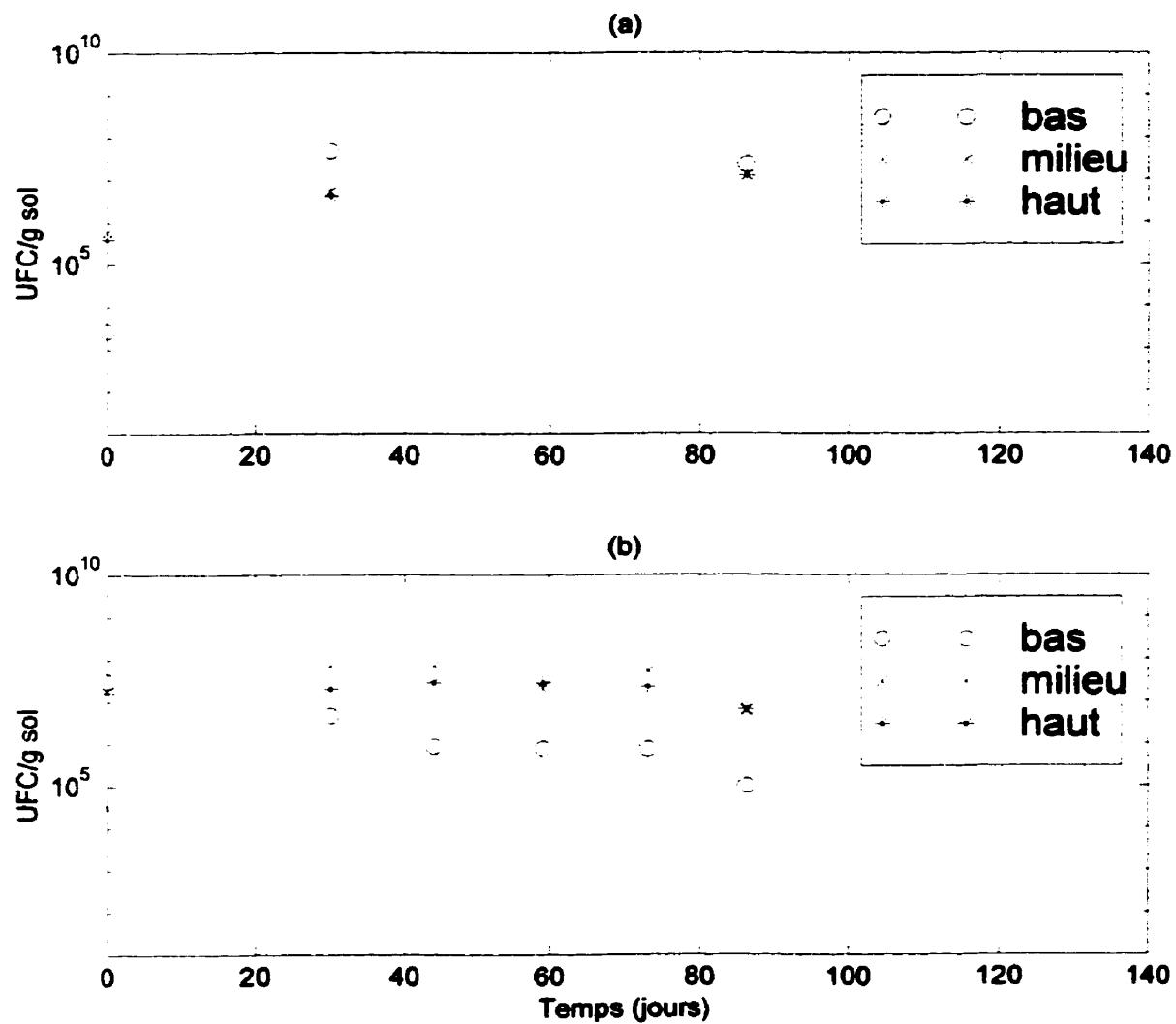


Figure 5.7 : Évolution de la croissance bactérienne (sur vase de Petri) : (a) colonne 1; (b) colonne 2.

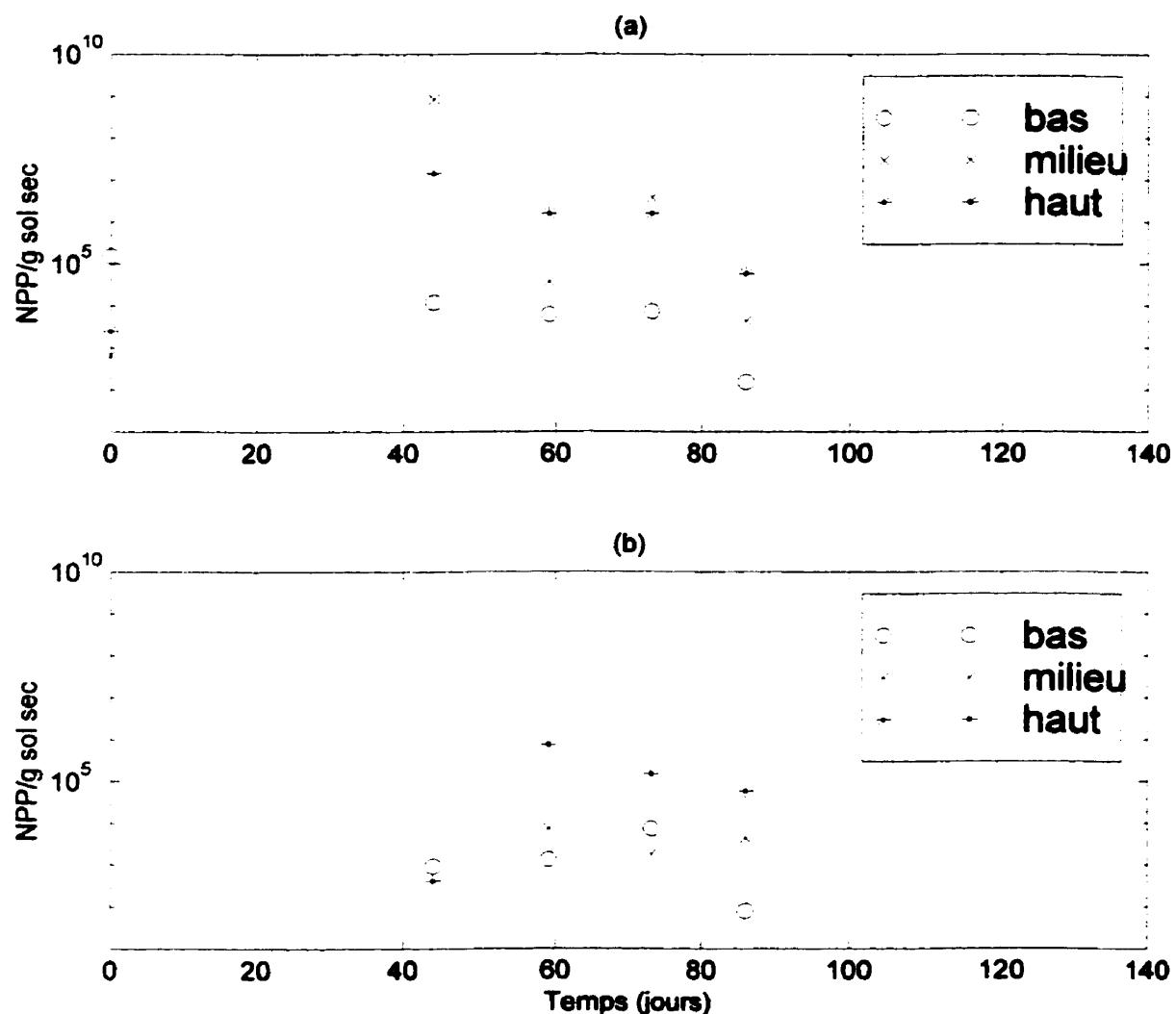


Figure 5.8 : Évolution de la croissance bactérienne (colonne 2, méthode NPP) : (a) hétérotrophes totaux; (b) dégradeurs d'hexadécane.

### 5.3 PRÉSENTATION ET ANALYSE DES RÉSULTATS EN RÉGIME TRANSITOIRE

#### 5.3.1 Tests échelons

Tel que mentionné à la section 4.4.1 des échelons sont appliqués sur le débit d'air pour effectuer une première caractérisation de la dynamique du système. Le comportement dynamique de l'oxygène en phase gazeuse pour les tests échelons sur le débit d'air est présenté aux figures 5.9 à 5.12. Les paramètres de la fonction de transfert par échelon sont donnés aux tableaux 5.6 et 5.7 pour les colonnes 1 et 2 respectivement.

Tableau 5.6 : Paramètres de la fonction de transfert de premier ordre avec délai (colonne no 1)

Condition d'opération		Fonction de transfert			
$u_i$ (ml/min)	$u_f$ (ml/min)	$K$ (%O <sub>2</sub> g/ml/min)	$\tau$ (h)	$\theta$ (h)	E
17,2	13,0	0,490	2,68	0,33	0,212
13,0	8,8	0,969	9,84	1,00	0,496
5,4	18,1	1,080	7,37	3,00	0,431
18,1	21,4	0,074	0,46	0,67	0,271
7,5	12,7	0,773	5,61	1,00	0,211
12,7	17,7	0,373	1,60	1,67	0,277
17,7	12,6	0,614	4,90	0,67	0,193
12,6	17,2	0,481	2,22	1,33	0,210
17,2	12,5	0,648	5,91	1,00	0,148

Tableau 5.7 : Paramètres de la fonction de transfert de premier ordre avec délai (colonne no 2)

Condition d'opération		Fonction de transfert			
$u_i$ (ml/min)	$u_f$ (ml/min)	K (%O <sub>2</sub> g/ml/min)	$\tau$ (h)	$\theta$ (h)	E
22,1	17,4	0,230	2,17	0,33	0,373
17,4	12,1	0,947	8,57	0,67	0,140
7,2	18,0	1,523	7,03	1,33	0,821
18,0	22,3	0,299	0,73	0,67	0,232
7,6	11,4	1,191	5,59	1,33	0,144
11,4	13,1	0,509	0,84	2,33	0,221
13,1	13,9	0,634	0,31	0,33	0,137
13,9	10,6	0,741	4,13	2,00	0,184
10,6	13,9	0,753	3,13	1,00	0,222

Les résultats de la première séquence échelon (figures 5.9a et 5.10a) permettent une première estimation des paramètres d'une fonction de transfert de premier ordre entre l'oxygène en phase gazeuse et le débit d'air. On constate que le temps de réponse et le gain augmentent pour des débits d'air plus faibles. Ceci est cohérent avec l'analyse de la section 3.2.1.

Les résultats de la deuxième séquence échelon (figures 5.9b et 5.10b) permettent d'évaluer pour différentes variations des débits d'air, l'étendue de la concentration d'oxygène en phase gazeuse sur le plus grand intervalle possible. Ainsi, de par la nature non-linéaire du système étudié, les paramètres trouvés pour la fonction de transfert entre l'oxygène en phase gazeuse et le débit d'air suite à la deuxième séquence échelon sont très approximatifs.

En effet, le premier échelon d'amplitude élevée pour un débit d'air de valeur initiale passablement faible permet une variation importante de la concentration d'oxygène en phase gazeuse. Le deuxième échelon est réalisé pour des conditions opératoires où les débits d'air sont déjà relativement élevés, ce qui explique la variation si petite en oxygène. De plus, à la figure 5.9b, on constate qu'une perturbation a influencé le système puisque pour des débits d'air de 18,1 et 21,4 ml/min la concentration en régime

permanent d'oxygène en phase gazeuse est d'environ 15 %. On s'aperçoit que pour des débits d'air plus élevés, le temps de réponse et le gain sont plus faibles, de nouveau en accord avec l'analyse de la section 3.2.1.

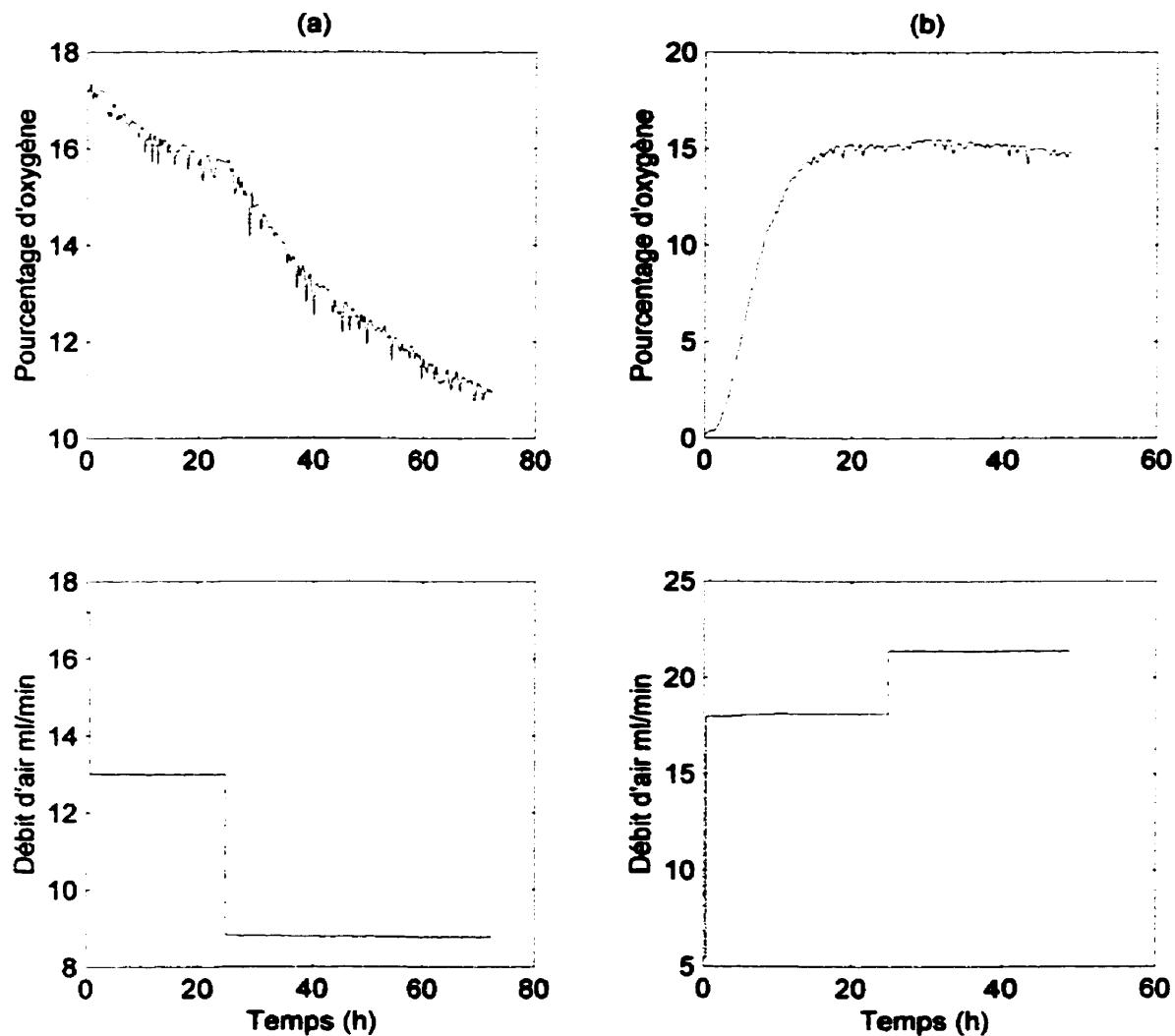


Figure 5.9 : Séquences échelons sur le débit d'air (colonne 1) : (a) première séquence; (b) deuxième séquence.

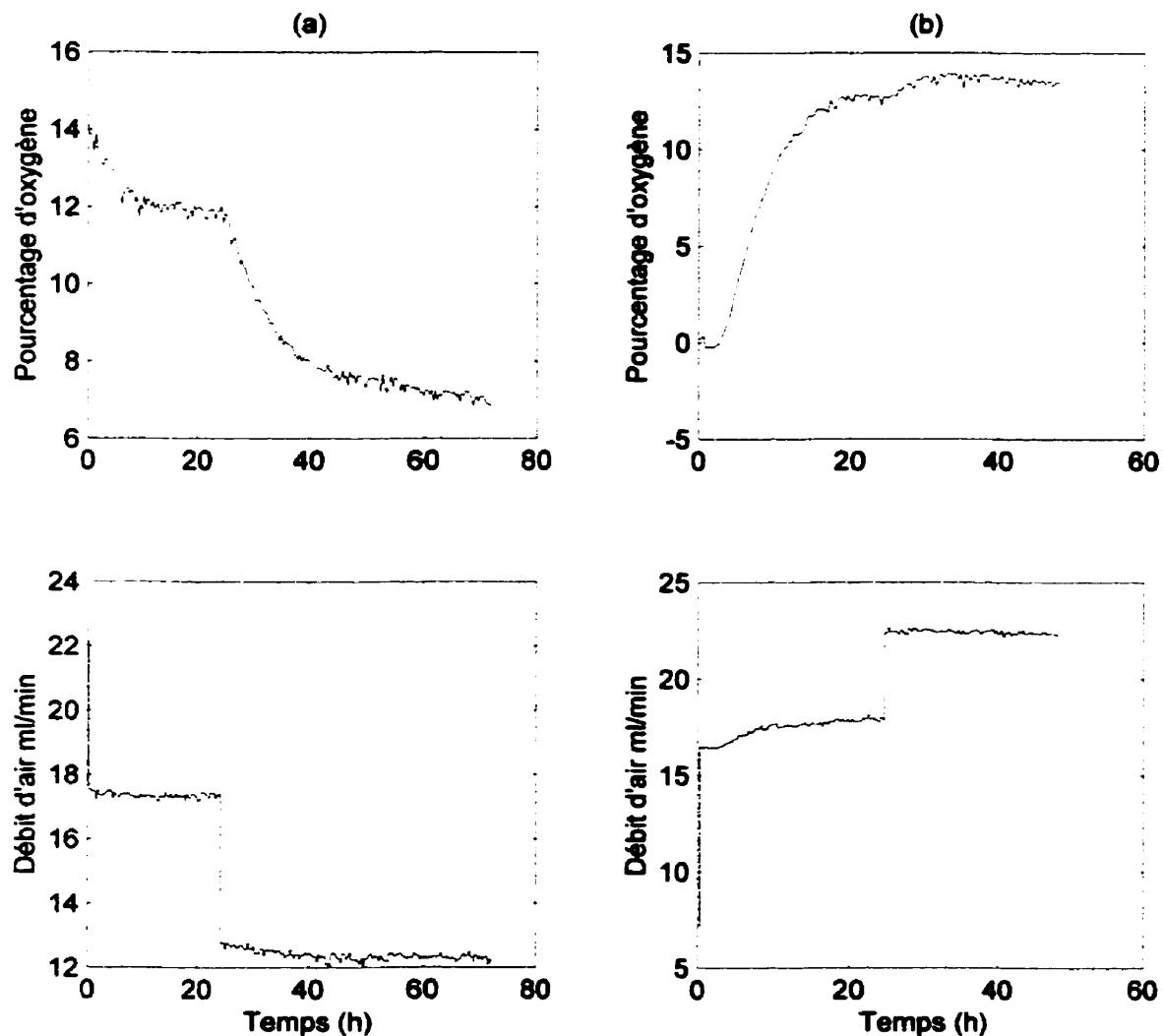


Figure 5.10 : Séquences échelons sur le débit d'air (colonne 2) : (a) première séquence; (b) deuxième séquence.

Les résultats de la dernière séquence échelon (figures 5.11 et 5.12) sont utiles pour l'application du PRBS sur le débit d'air. Les tests sont réalisés dans le but de déterminer les paramètres du PRBS autour d'un point d'opération en régime permanent correspondant à 10 % d'oxygène en phase gazeuse.

Le deuxième (où le débit est varié de 11,4 à 13,1 ml/min) et le troisième échelon (où le débit passe de 13,1 à 13,9 ml/min) pour la colonne 2 démontrent qu'il serait souhaitable que l'amplitude pour le changement de débit d'air soit supérieure à 2,5 ml/min. En effet, le ratio entre le signal de l'oxygène en phase gazeuse et le bruit est faible et les résultats de modélisation ne peuvent donc pas être considérés.

De plus, on observe que la concentration en régime permanent d'oxygène en phase gazeuse diminue quelque peu dans le temps pour des débits d'air de valeurs identiques. Une perturbation a donc légèrement augmenté le taux de consommation d'oxygène des micro-organismes.

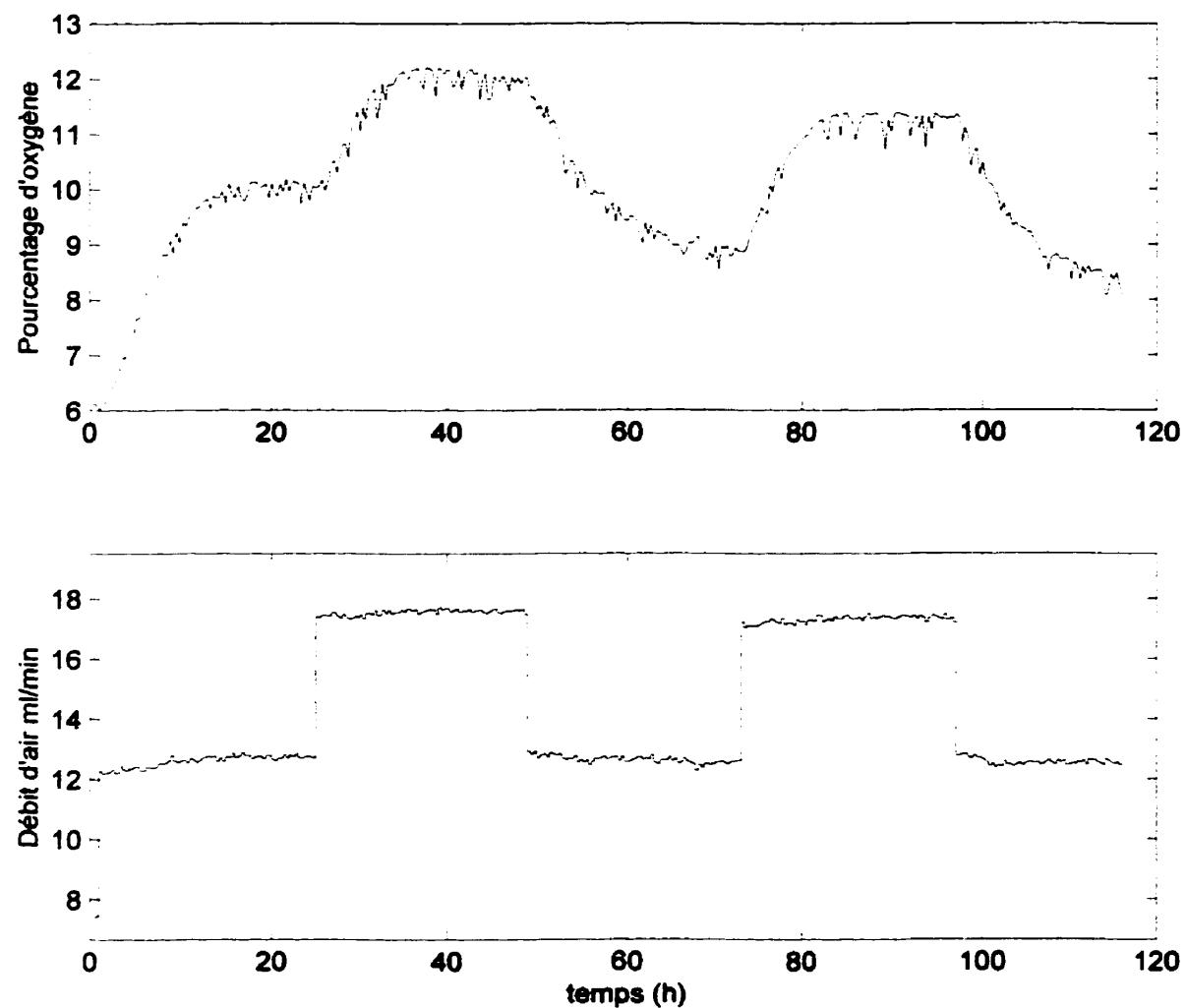


Figure 5.11 : Séquence échelon pour l'application du PRBS (colonne 1).

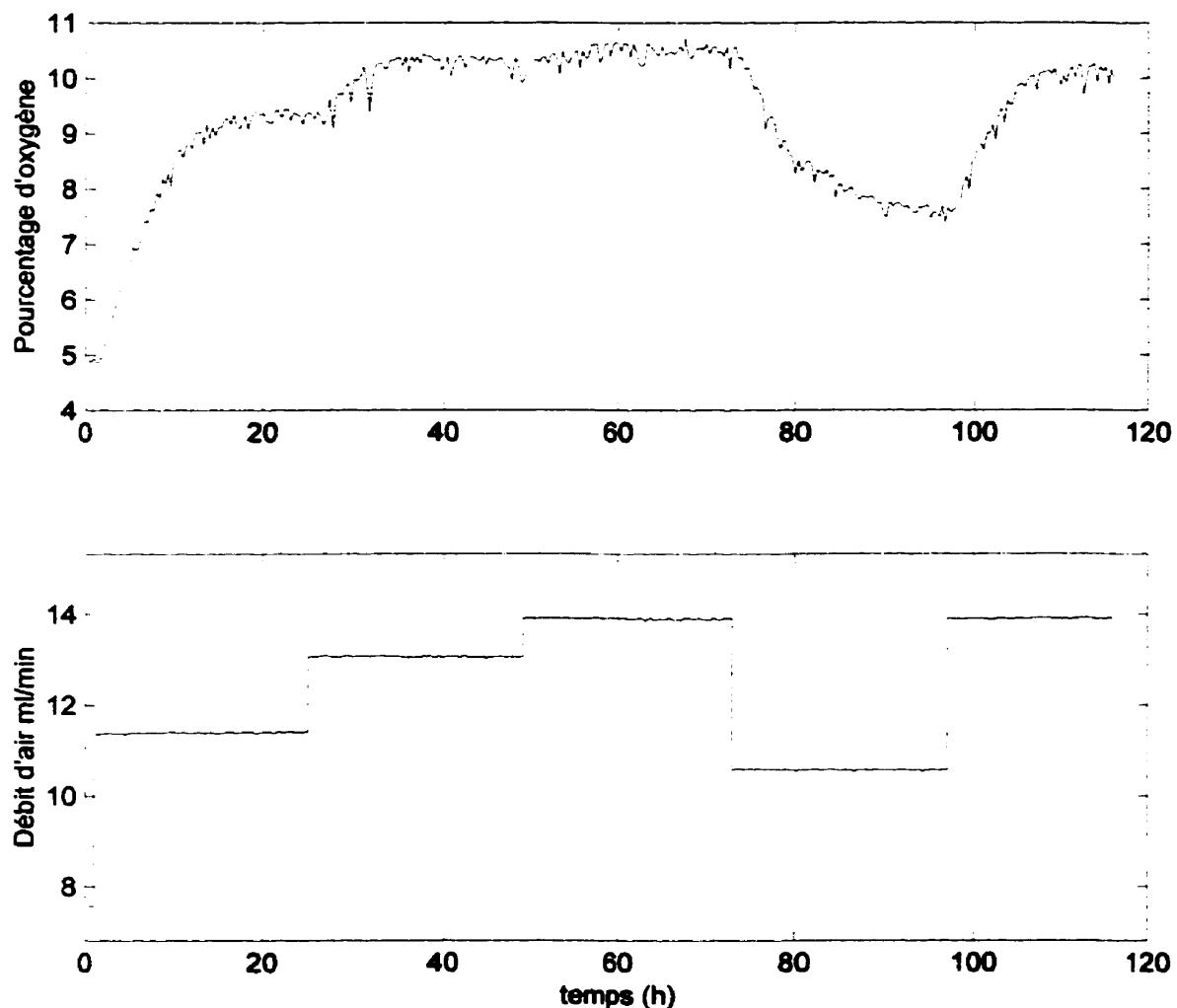


Figure 5.12 : Séquence échelon pour l'application du PRBS (colonne 2).

On peut conclure, en accord avec l'analyse de la section 3.2.1, que le temps de réponse et le gain en régime permanent décroissent pour des débits d'air élevés. Par ailleurs, on constate que des perturbations ont influencé le système lors des tests échelons. De surcroît, les valeurs du délai comportent une certaine variabilité, et ce sans discerner une tendance véritable selon les conditions d'opération. Ceci influence les valeurs du gain et de la constante de temps dominante. C'est pourquoi l'application d'un PRBS devrait permettre une meilleure identification du modèle représentatif du système étudié.

### 5.3.2 Test PRBS

Tel qu'indiqué aux sections 2.4.3 et 4.4.2, les paramètres du PRBS peuvent être déterminés suite aux tests échelons. Le but du test PRBS est d'identifier un modèle représentant la dynamique du système autour du point de consigne pour l'oxygène en phase gazeuse, soit 10 %.

À l'aide des résultats de la troisième séquence échelon, on remarque que la constante de temps dominante additionnée au délai varie entre 3,3 et 6,9 h, pour des débits variant entre 10,6 et 17,7 ml/min. Par conséquent, la période minimale où le débit d'air demeurera constant est fixée à quatre heures. Les débits d'air inférieur et supérieur sont fixés à 13,3 et 17,6 ml/min pour la colonne 1 ainsi que 14,0 et 18,3 ml/min pour la colonne 2.

Le comportement dynamique de l'oxygène en phase gazeuse lors du PRBS sur le débit d'air est présenté aux figures 5.13 et 5.14. La dynamique de l'oxygène en phase gazeuse semble suivre une tendance assez reproductible jusqu'au onzième jour de l'essai. Ensuite, dû à une perturbation externe, la concentration d'oxygène en phase gazeuse dévie pour les deux colonnes. La cause probable de cette déviation sera expliquée plus loin. En conséquence, seules les données des jours un à onze seront utilisées pour la

modélisation. Les valeurs de  $r_u(k)$  pour la séquence de  $u(t)$  des jours 1 à 11 sont donnés à l'annexe III.

Selon la méthodologie donnée à la section 4.4.2, un modèle ARX (où  $na=nb=1$  avec  $nk=3$  et  $nk=0$  pour les colonnes 1 et 2 respectivement) est retenu pour les deux colonnes. Ces modèles possèdent les plus petites valeurs de E pour la valeur de nk posée. La dynamique du système est donc représentée dans le domaine de Laplace par une fonction de transfert de premier ordre (premier ordre avec retard pour la colonne 1).

Une structure ARX où  $na=2$  n'a pas été retenue car la deuxième constante de temps dans le domaine de Laplace (évaluée à l'aide de l'équation 2.13) n'était pas strictement à partie réelle (le deuxième pôle de la fonction de transfert échantillonnée était négatif). De plus, un modèle de type ARMAX (où nc était varié) avait une valeur de E plus élevée que le modèle de type ARX.

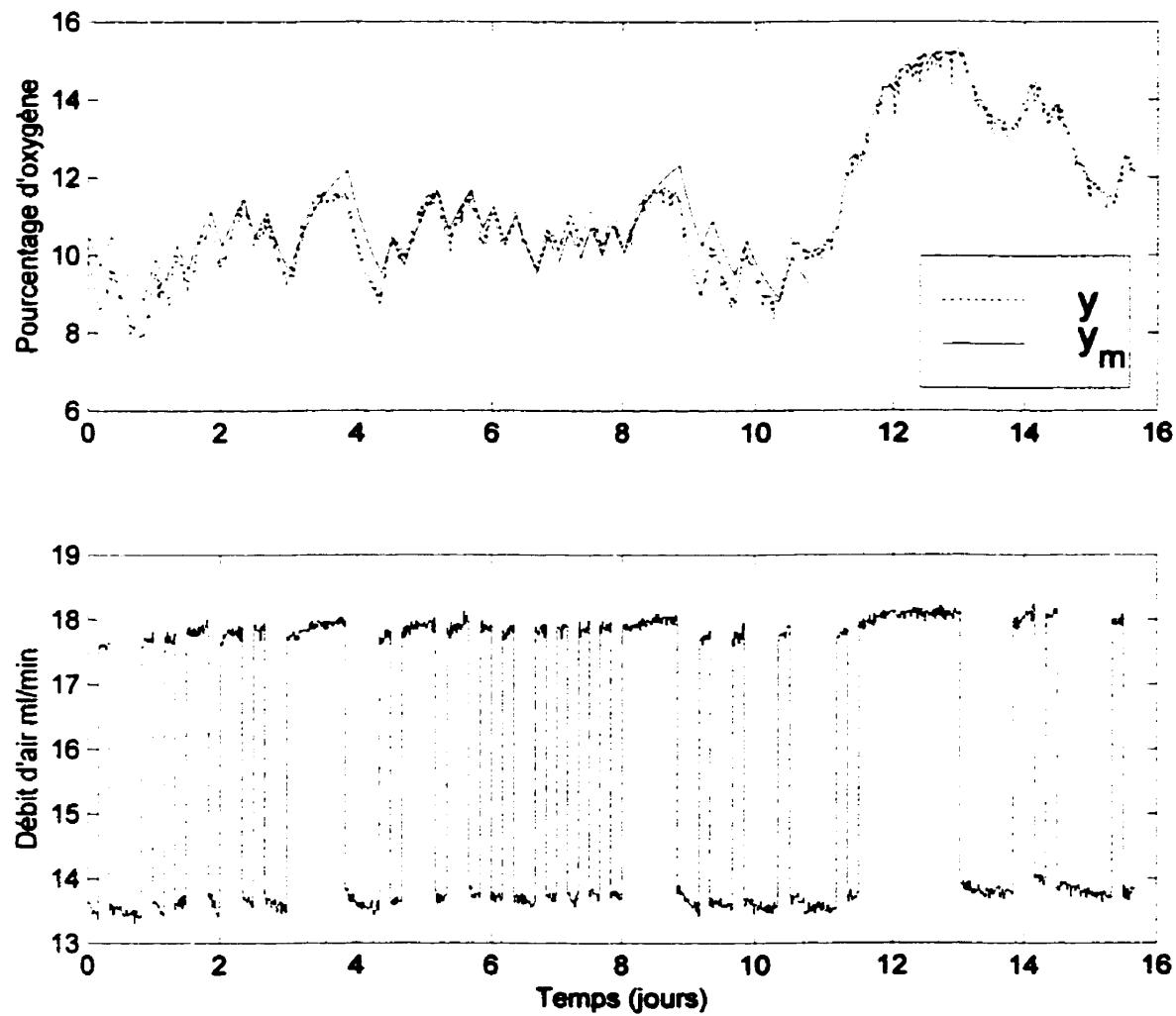


Figure 5.13 : Comportement dynamique de l'oxygène en phase gazeuse lors du PRBS sur le débit d'air (colonne 1).

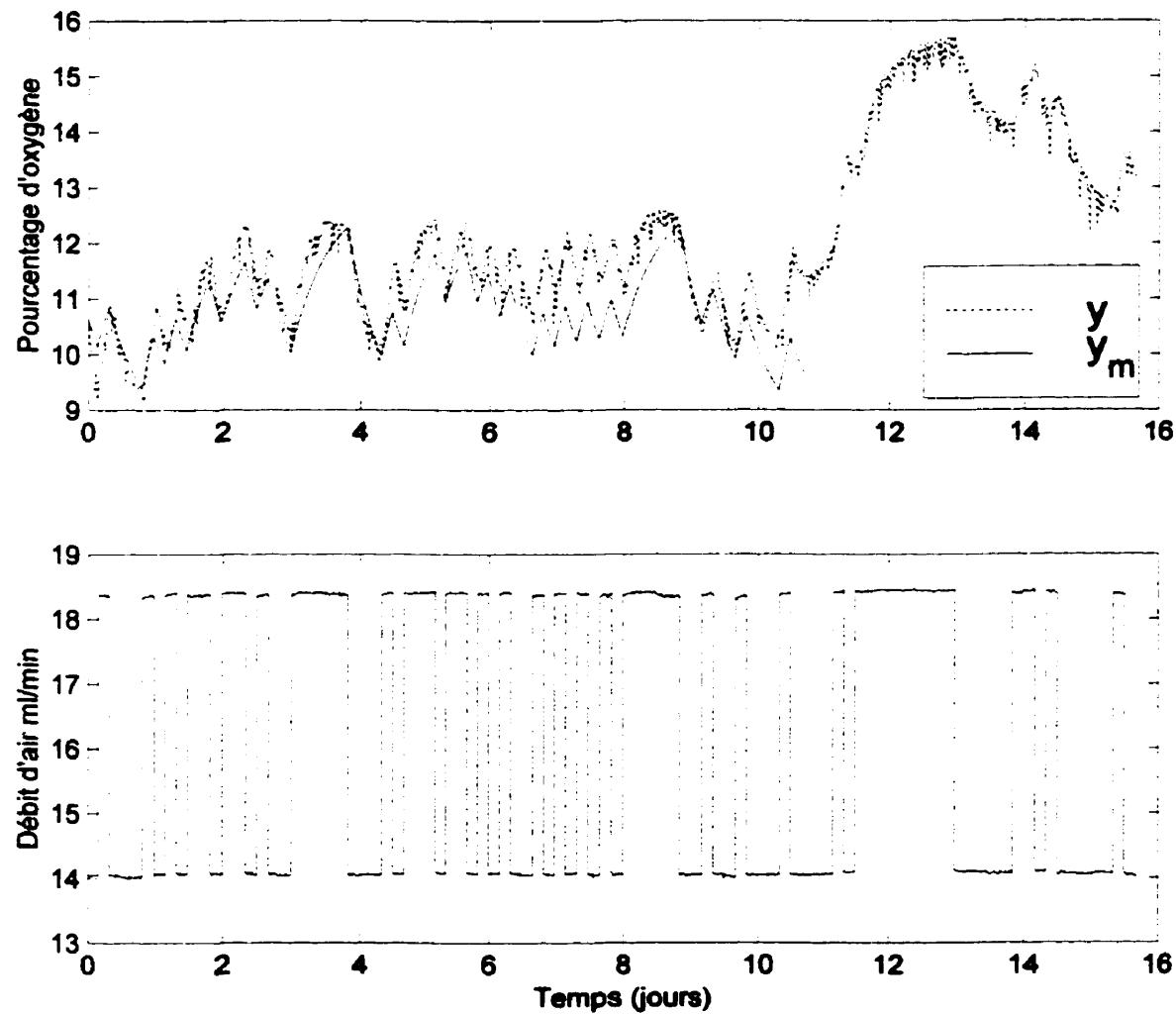


Figure 5.14 : Comportement dynamique de l'oxygène en phase gazeuse lors du PRBS sur le débit d'air (colonne 2).

Les graphiques des coefficients de corrélation des résidus sont donnés aux figures 5.15 et 5.16 pour les colonnes 1 et 2 respectivement. On remarque pour les deux colonnes que les coefficients d'autocorrélation des résidus et les coefficients de corrélation croisés entre les résidus et la variable manipulée sont parfois supérieurs aux intervalles de confiance.

Ces tests indiquent que les modèles trouvés ne représentent pas toutes les composantes dynamiques du système. Ceci n'est guère surprenant suite à l'analyse de la section 3.2.1. En effet, un modèle d'ordre plus élevé serait plus représentatif du système dynamique étudié. De plus, il conviendrait de rappeler que les modèles décrits par l'équation 2.2 sont pour des systèmes linéaires invariants. Toutefois, le procédé étudié est linéarisé autour d'un point d'opération et il est considéré stationnaire pour une période de temps donnée. Ceci est bien sûr une approximation de la réalité. On constate néanmoins qu'une fonction de transfert de premier d'ordre dans le domaine de Laplace représente adéquatement les composantes dynamiques principales du système étudié.

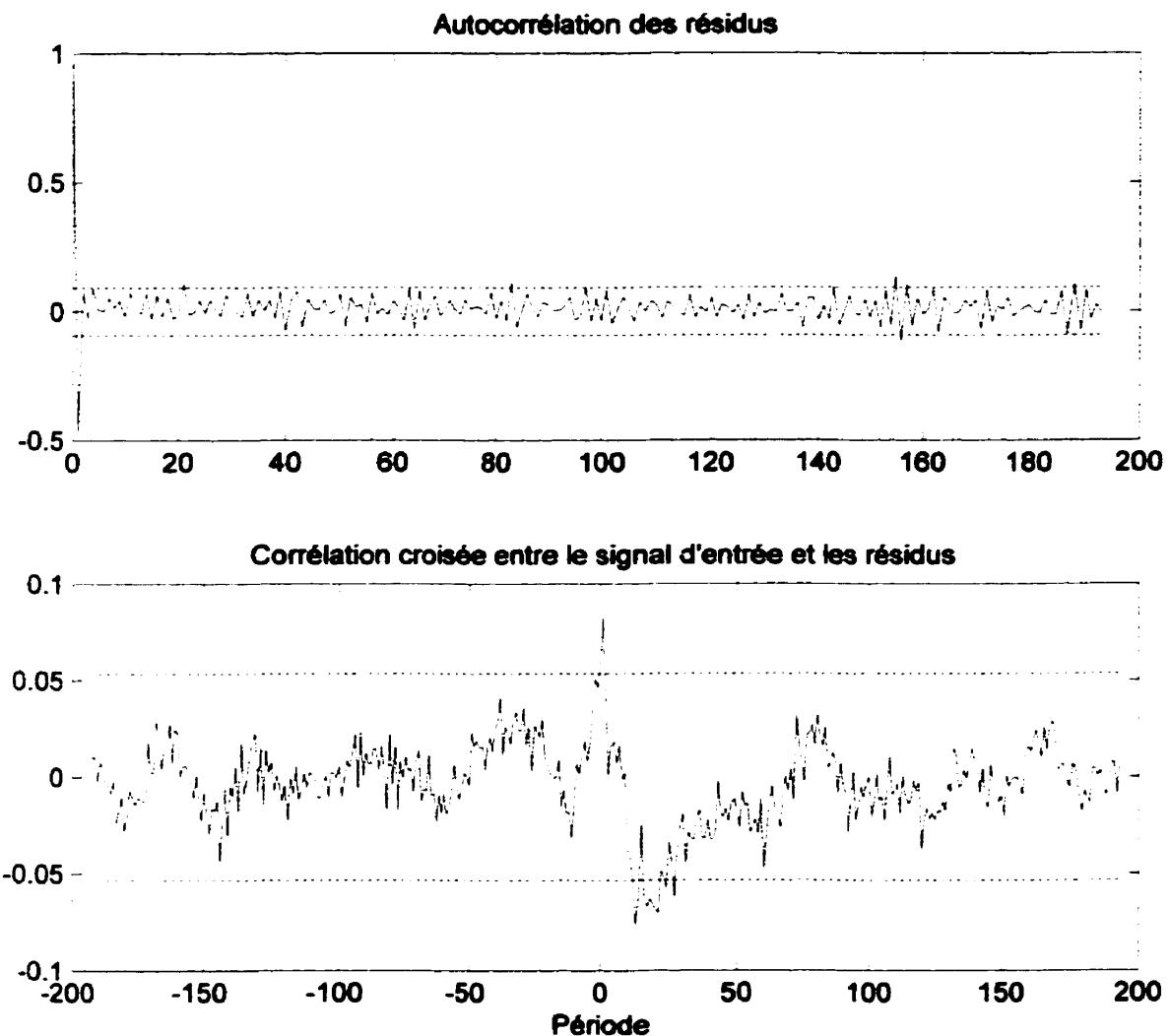


Figure 5.15 : Graphique de corrélation des résidus lors du test PRBS (colonne 1).

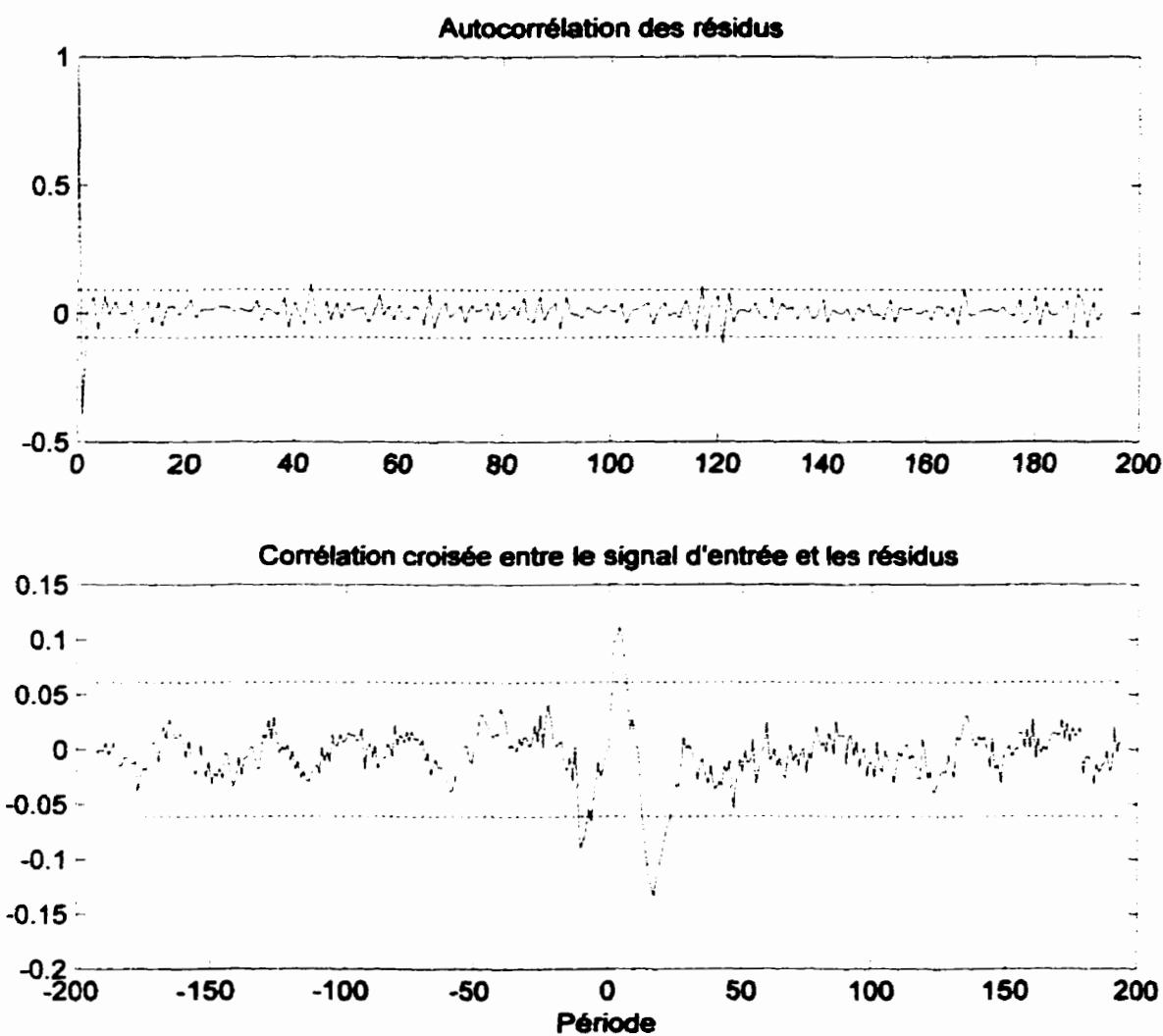


Figure 5.16 : Graphique de corrélation des résidus lors du test PRBS (colonne 2).

Le tableau 5.8 donne les paramètres du modèle dans le domaine de Laplace pour les colonnes 1 et 2. On observe que les constantes de temps évaluées avec le PRBS sont plus élevées que celles trouvées lors des tests échelons. De plus, le délai réel pour la colonne 2 est probablement supérieur à 0.

Tableau 5.8 : Paramètres de la fonction de transfert dans le domaine de Laplace trouvés lors du PRBS

Paramètre	Colonne no 1	Colonne no 2
K (% O <sub>2</sub> g / ml/min)	1,086	1,019
τ (h)	11,71	12,93
θ (h)	1,00	0,00
E	0,5397	0,6857

Le comportement dynamique du bioxyde de carbone en phase gazeuse et de l'humidité du sol sont donnés aux figures 5.17 et 5.18. On s'aperçoit que la concentration de bioxyde de carbone en phase gazeuse possède un comportement dynamique similaire à l'oxygène en phase gazeuse sauf que le gain en régime permanent est de signe opposé.

Ceci est conséquent avec la réaction de minéralisation donnée par l'équation 2.1. En effet, pour des débits d'air plus élevés la concentration d'oxygène (le réactif) en phase gazeuse augmente et le bioxyde de carbone (le produit) en phase gazeuse est dilué. Le contraire est évidemment observé pour une diminution du débit d'air.

L'humidité du sol semble être constante pour le volume occupé par la sonde. Les lectures sont d'environ 20 et 40 (%v eau/v total) pour les colonnes 1 et 2 respectivement. On note par contre que le signal est passablement bruité.

Il est intéressant de comparer les lectures de la sonde avec les valeurs du contenu en eau massique évaluées selon la méthode décrite à la section 4.1.2. Ainsi, pour la zone occupée par la sonde on trouve 7,5 et 13 (%m/m) pour les colonnes 1 et 2 respectivement, ce qui correspond à 11,3 et 21,3 (%v/v). On constate que le ratio du contenu en eau entre

les deux colonnes est adéquatement représenté par les sondes, mais que les valeurs ne sont pas exactes. Il convient de mentionner que les sondes d'humidité étaient surtout utilisées pour détecter un changement éventuel d'humidité dans le sol (pour éviter son assèchement), mais pas d'avoir une valeur exacte du contenu en eau.

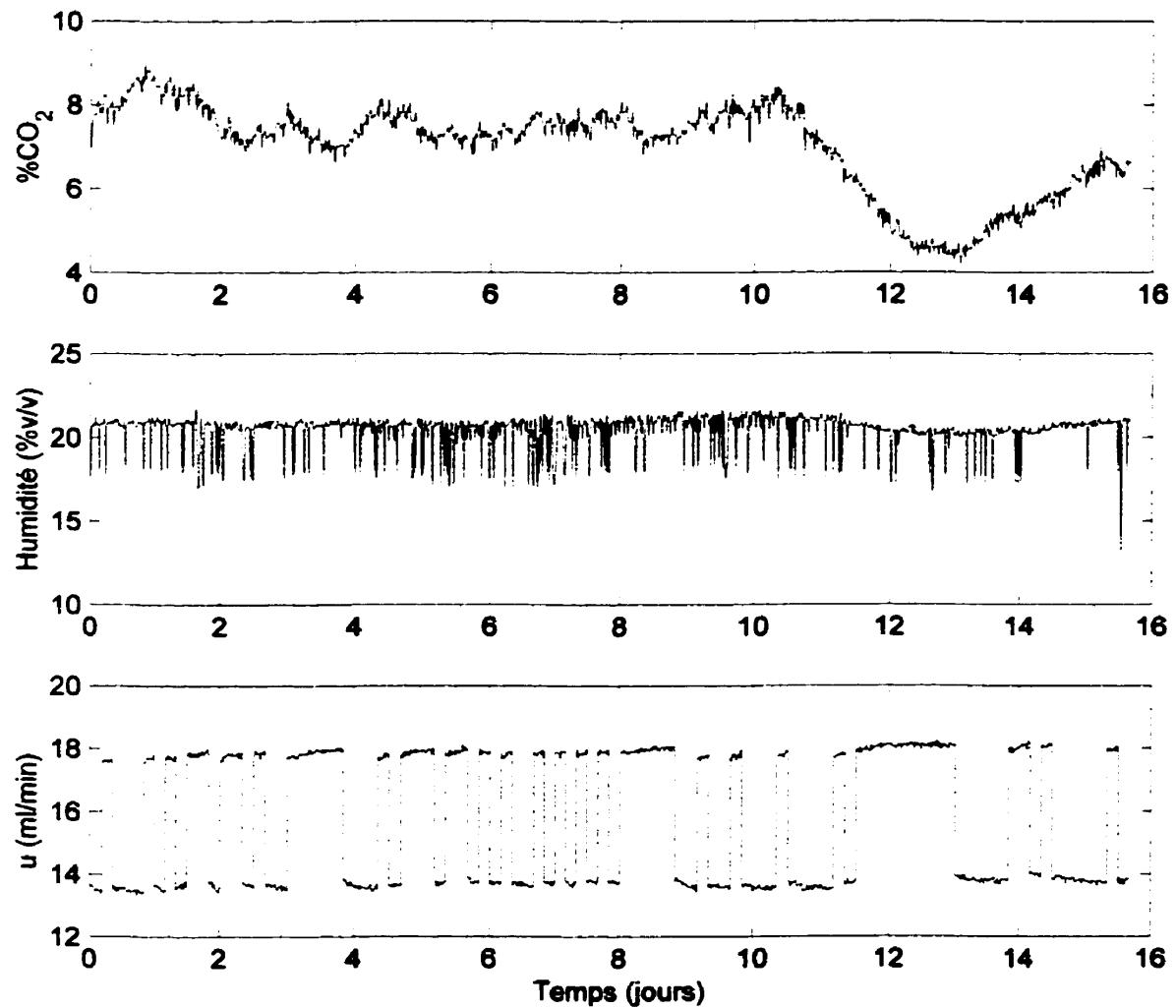


Figure 5.17 : Comportement dynamique du bioxyde de carbone en phase gazeuse et de l'humidité du sol lors du PRBS sur le débit d'air (colonne 1).

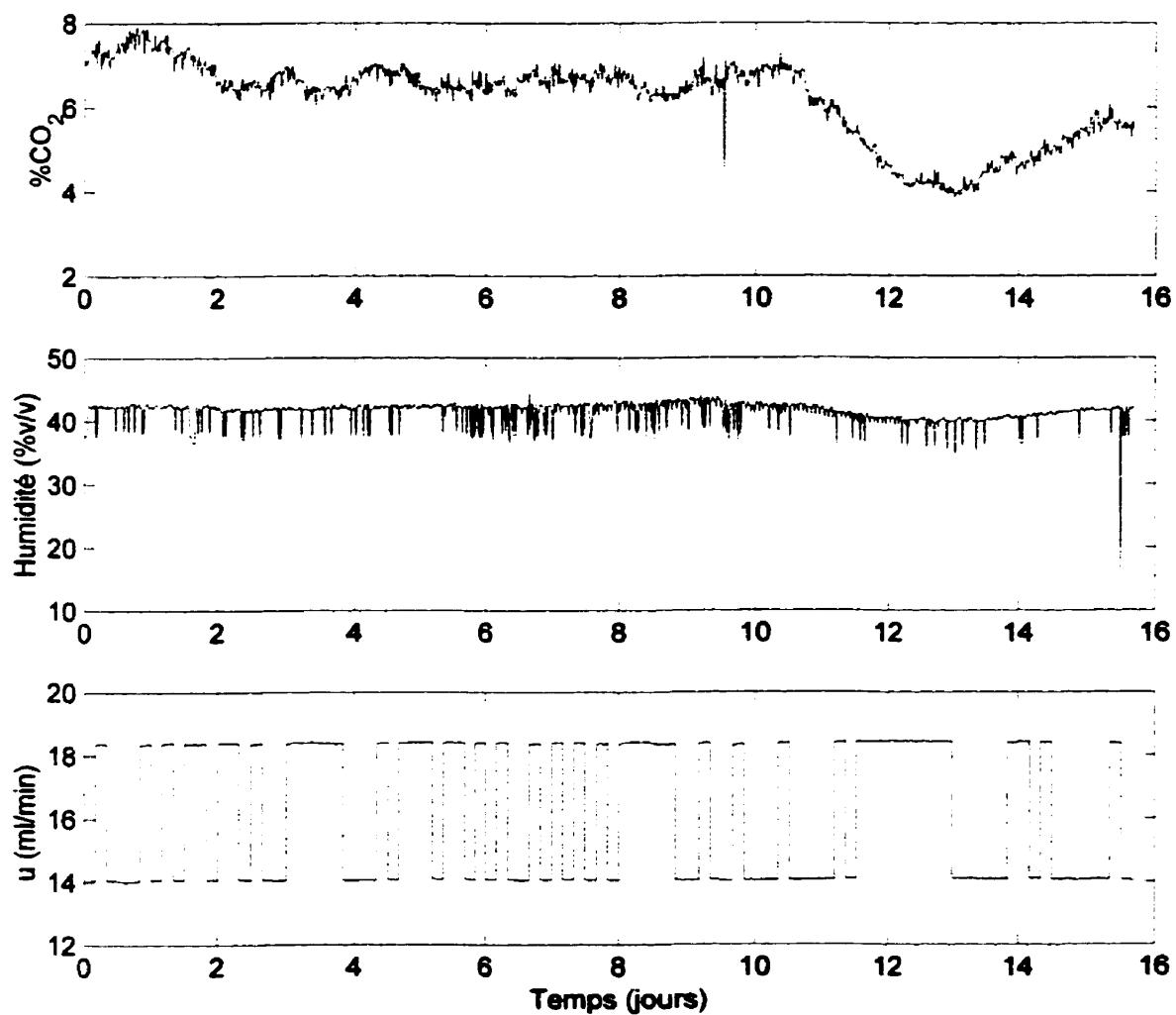


Figure 5.18 : Comportement dynamique du bioxyde de carbone en phase gazeuse et de l'humidité du sol lors du PRBS sur le débit d'air (colonne 2).

Le comportement dynamique de la température du sol lors du PRBS est donné aux figures 5.19 et 5.20. Les lectures de températures (en °C) sont pour des hauteurs, à partir de la base de la colonne, de 18, 37, 55 et 92 cm ainsi que pour l'air à l'entrée de la colonne. On observe que la température dans la colonne dépend surtout de la température de l'air entrant dans la colonne. En général, la température ambiante était d'environ 22 °C. On constate que la température au milieu et vers le haut de la colonne est parfois quelque peu supérieure à la température ambiante, et ce même si la température de l'air à l'entrée de la colonne est inférieure à la température ambiante. Ceci semble être un bon indice d'activité microbienne.

On s'aperçoit que les lectures de températures dans la colonne augmentent soudainement autour du onzième jour du PRBS. En réalité, la température ambiante a chuté autour de 12 à 15 °C pour quelques heures. Les lectures de températures sont erronées car le système d'acquisition de données n'était pas muni d'un compensateur de température à la jonction de référence des thermocouples. Cette baisse de température ambiante est probablement la cause de la déviation des valeurs d'oxygène en phase gazeuse lors du PRBS.

Soulignons que le comportement dynamique du bioxyde de carbone en phase gazeuse, de l'humidité et de la température lors du test PRBS est représentatif de la tendance observée lors des tests échelons et des essais en boucle fermée.

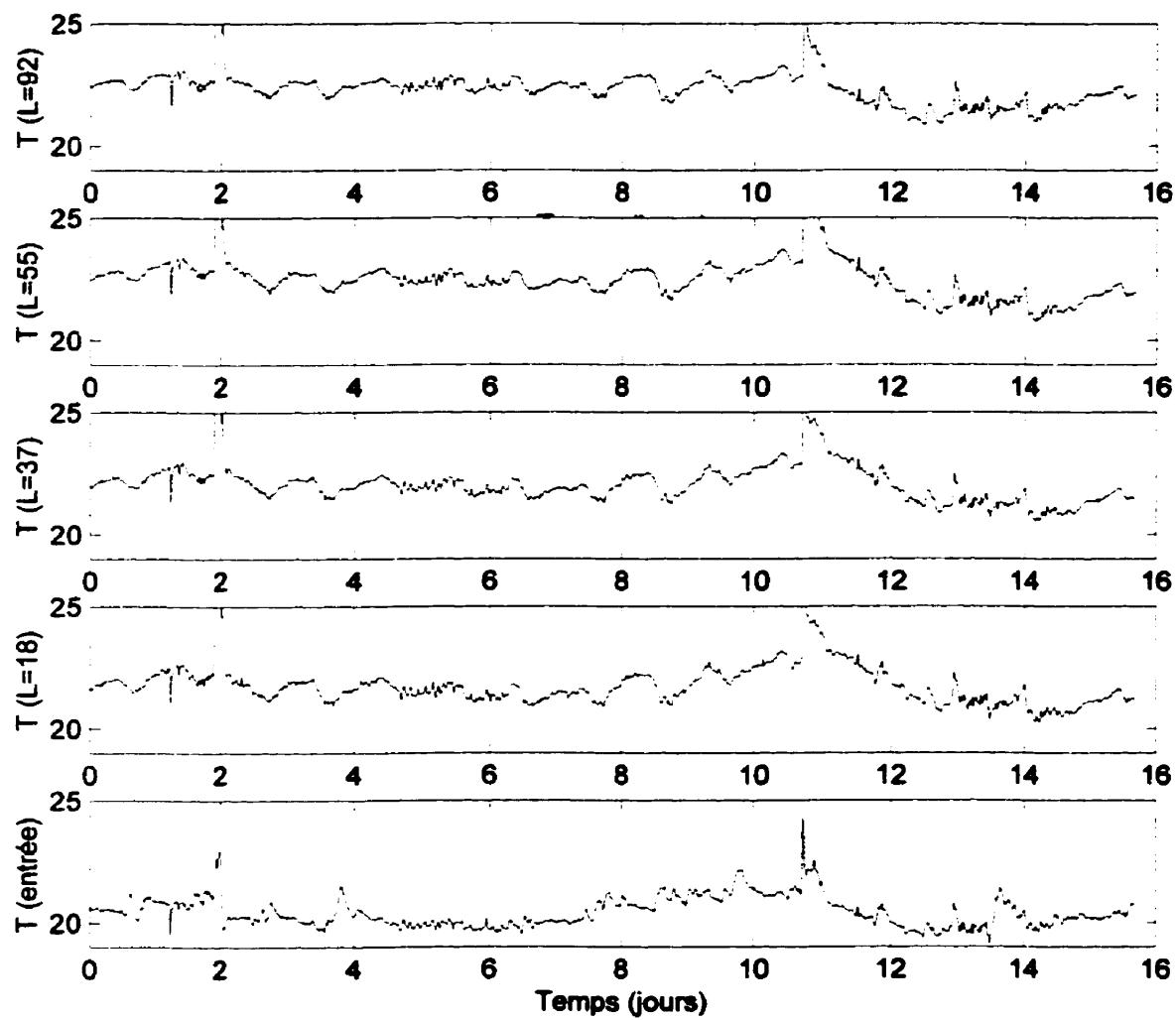


Figure 5.19 : Comportement dynamique de la température du sol lors du PRBS sur le débit d'air (colonne 1).

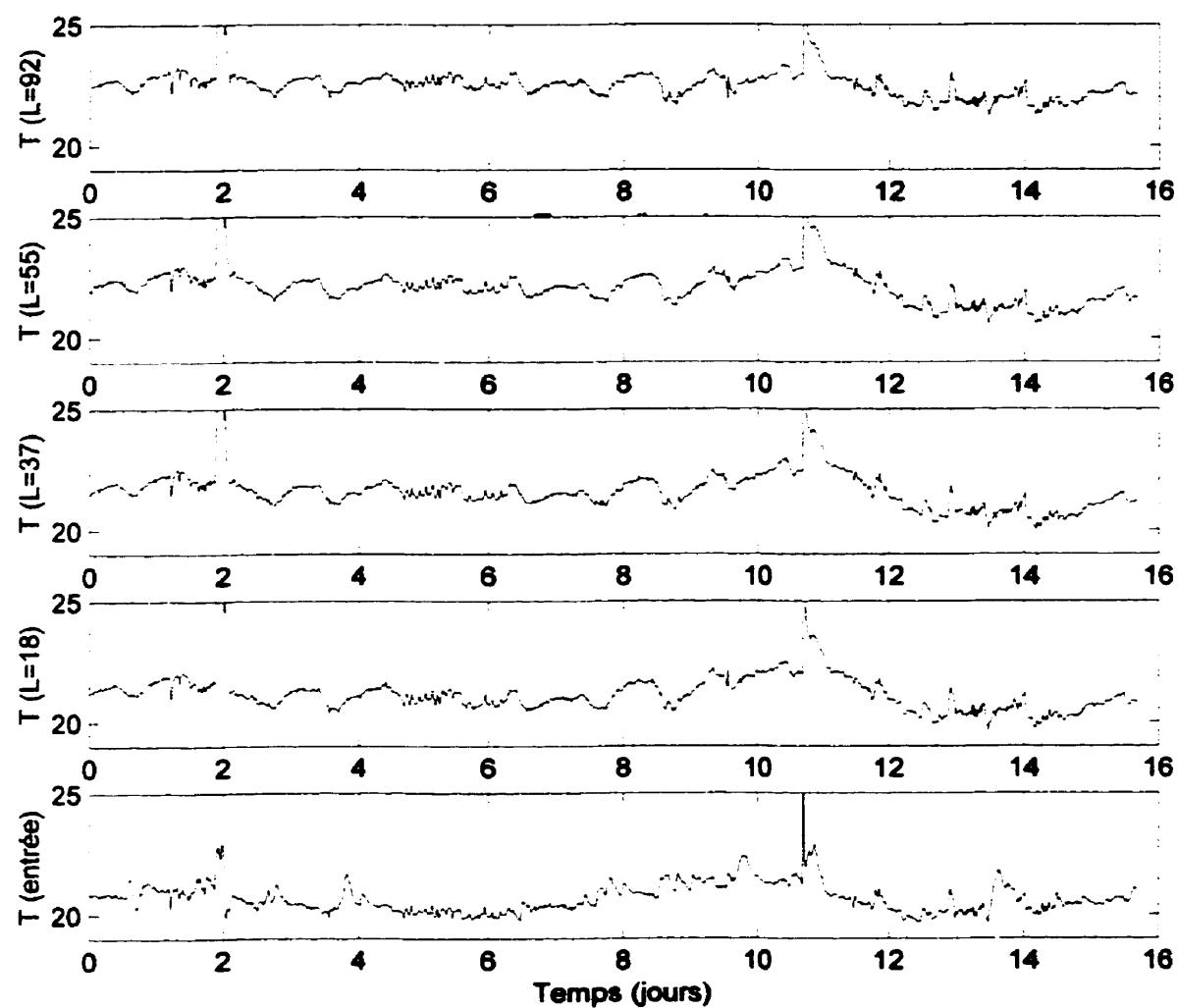


Figure 5.20 : Comportement dynamique de la température du sol lors du PRBS sur le débit d'air (colonne 2).

### 5.3.3 Essais en boucle fermée

Suite au test PRBS on constate qu'une fonction de transfert de premier ordre avec retard peut représenter convenablement la dynamique du système. Tel que mentionnée à la section 3.2.1, un algorithme de contrôle de type PI est généralement approprié pour des procédés représentés par une fonction de transfert de premier ordre avec délai. Les paramètres du contrôleur sont donc évalués par la méthode de synthèse directe (équations 2.20 et 2.21). Le modèle trouvé lors du test PRBS est utilisé pour le réglage du contrôleur. Dans le but d'avoir un comportement dynamique robuste en boucle fermée, la constante de temps en boucle fermée est posée comme étant égale à la constante de temps dominante divisée par deux. Les paramètres du contrôleur PI sont donnés au tableau 5.9.

Tableau 5.9 : Paramètres du contrôleur PI

Paramètre	Colonne 1	Colonne 2
$K_c$ (ml/min / %O <sub>2</sub> g)	1,57	1,96
$\tau_I$ (h)	11,71	12,93

Les essais en boucle fermée sont effectués seulement avec le débitmètre-contrôleur pouvant fournir un débit d'air de 0 à 20 ml/min. Tel qu'indiqué à la section 4.3.1, le contrôle du débit d'air est accompli par échelons d'environ 4,5 ml/min pour le débitmètre-contrôleur opérant dans la plage de débits allant de 0 à 200 ml/min, ce qui n'est pas suffisamment précis pour les essais à réaliser.

Mentionnons que les essais en boucle fermée sont réalisés pour des points de consigne supérieurs à 10 % sur la concentration d'oxygène en phase gazeuse. En effet, dû au caractère non-stationnaire de la dynamique du système, la correspondance entre la concentration d'oxygène en phase gazeuse et le débit d'air n'est plus la même que lors des tests en boucle ouverte. En conséquence, les essais en boucle fermée sont effectués pour concentrations d'oxygène en phase gazeuse permettant de travailler dans la plage de débits (0 à 20 ml/min) pouvant être fournie par le débitmètre-contrôleur. Notons qu'il a

été observé sur le terrain que les taux de consommation d'oxygène diminuent généralement avec le temps lors d'un traitement par bioventilation *in situ* (U.S.EPA, 1995a).

Rappelons que le modèle trouvé à l'aide du PRBS est représentatif du système pour une concentration d'environ 10 % d'oxygène en phase gazeuse, et ce pour un débit d'air moyen de 15,5 ml/min. De plus, les résultats des tests échelons démontrent que la dynamique du procédé dépend du débit d'air. Ceci est bien sûr causé par la nature non-linéaire du système. C'est une des raisons pourquoi le réglage des paramètres du contrôleur est effectué de manière à favoriser, dans la mesure du possible, une performance robuste en boucle fermée.

Des changements sur le point de consigne, pour un intervalle allant de 13 jusqu'à 16,5 % sont présentés aux figures 5.20 et 5.21. On s'aperçoit que le contrôleur est assez robuste. En effet, les temps de réponse suite à des changements échelons sur le point de consigne et le comportement de la variable manipulée sont convenables, et ce pour des conditions d'opérations passablement différentes du PRBS.

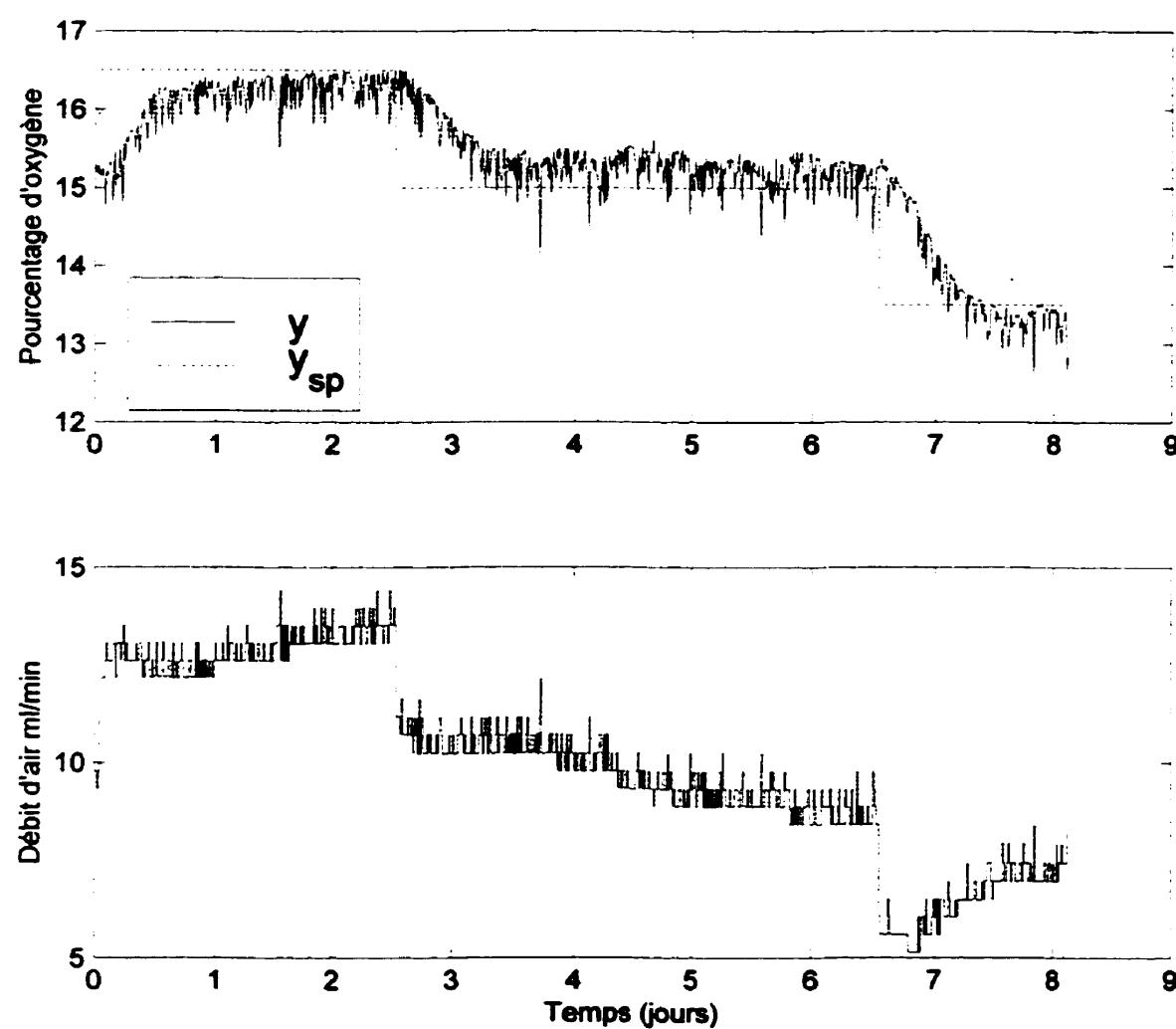


Figure 5.21 : Changements sur le point de consigne (colonne 1).

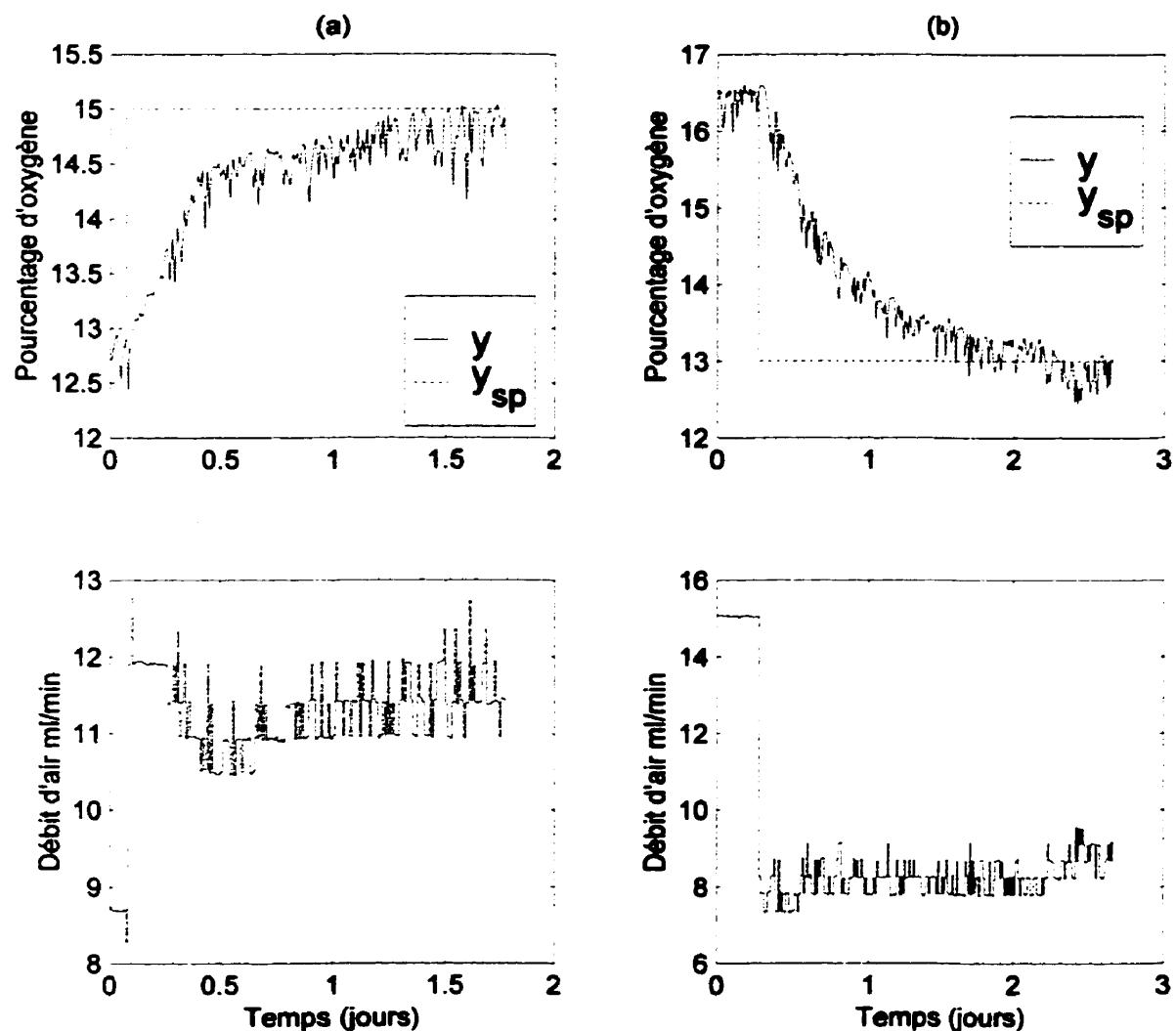


Figure 5.22 : Changements sur le point de consigne (colonne 2) : (a) premier changement; (b) deuxième changement.

Un test GBS est également appliqué sur la deuxième colonne pour vérifier la performance du contrôleur. Le point de consigne est varié entre 13 et 15 %. La probabilité ( $p$ ) que le point de consigne demeure constant est évaluée selon l'équation 2.12. La fréquence d'intérêt est égale à l'inverse de la constante de temps en boucle fermée, tel que mentionné à la section 4.4.3. Ainsi, pour une période d'échantillonnage de 0,25 h et une constante de temps en boucle fermée de 6,47 h, on trouve  $p$  égal à 0,98.

L'application d'un test GBS permet également l'identification d'un modèle empirique et de comparer le comportement dynamique du système avec celui observé lors du PRBS. Selon la méthodologie énoncée à la section 4.4.2, un modèle de type ARMAX (avec  $na=2$ ,  $nb=1$ ,  $nc=1$  et  $nk=6$ ) donne la valeur la plus faible de  $E$ .

Les paramètres de la fonction de transfert dans le domaine de Laplace sont donnés au tableau 5.10. On constate les valeurs du gain trouvées pour les tests PRBS et GBS sont similaires. Par contre, la première constante de temps est plus élevée que celle trouvée lors du PRBS, ce qui est cohérent puisque les débits utilisés lors du GBS sont plus faibles.

Tableau 5.10 : Paramètres de la fonction de transfert dans le domaine de Laplace trouvés lors du GBS (colonne 2)

Paramètre	Valeur
$K (\% O_2 g / ml/min)$	1,060
$\tau_1 (h)$	18,47
$\tau_2 (h)$	0,07
$\theta (h)$	1,5
$E$	0,8318

Les résultats du test GBS sont présentés à la figure 5.23. Clairement des perturbations sont survenues lors du test GBS. À titre d'exemple, lorsque le point de consigne de 13 % est atteint, les valeurs expérimentales de  $u(t)$  en régime permanent sont différentes pour les jours 3 et 6. C'est pourquoi à la figure 5.23, les valeurs de  $y_m$  sont évaluées en boucle

fermée avec les paramètres du modèle et ceux du contrôleur. On peut donc comparer le comportement de la variable manipulée pour une situation où aucune perturbation n'agirait sur le système avec celle prévalant lors du test. Ceci bien sûr en assumant que le modèle trouvé est représentatif du système. On remarque, dû aux perturbations agissant sur le système, qu'il y a une différence entre les valeurs expérimentales de  $u(t)$  et celles obtenues par simulation  $u_m(t)$ .

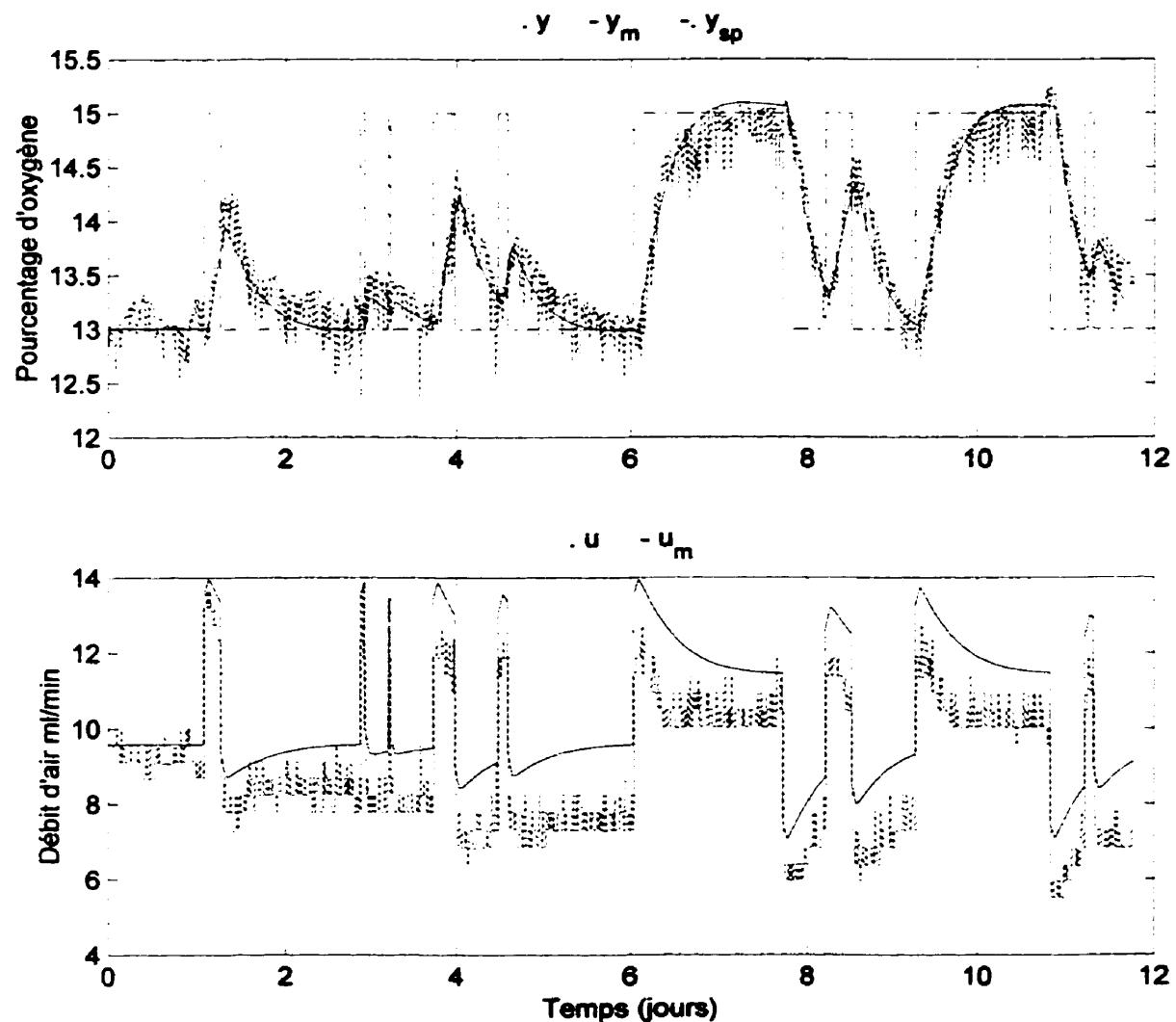


Figure 5.23 : Test GBS en boucle fermée (colonne 2).

Les graphiques de corrélation des résidus sont donnés à la figure 5.24. On constate que les coefficients d'autocorrélation des résidus et de corrélation croisée entre la variable manipulée et les résidus sont plus faibles que ceux trouvés à l'aide du test PRBS. Le modèle trouvé représente donc probablement mieux les composantes dynamiques du système. Ceci n'est pas surprenant puisqu'une deuxième constante de temps a pu être identifiée. Ce résultat est intéressant car le modèle a été déterminé à l'aide d'un essai d'une durée de douze jours seulement.

Il convient de mentionner que des valeurs de  $r_{eu}(k)$  supérieures aux intervalles de confiance pour des périodes négatives peut être une indication que le système est en rétroaction, mais pas que le modèle représente mal la dynamique du système. En effet, en considérant que les résidus du modèle sont un bon estimé des perturbations agissant sur le système, la variable  $u(t-k)$  sera corrélée avec les valeurs précédentes de  $\varepsilon(t)$  lors d'essais en boucle fermée (voir équation 2.8, où  $k < 0$ ). Ceci est observé à la figure 5.24.

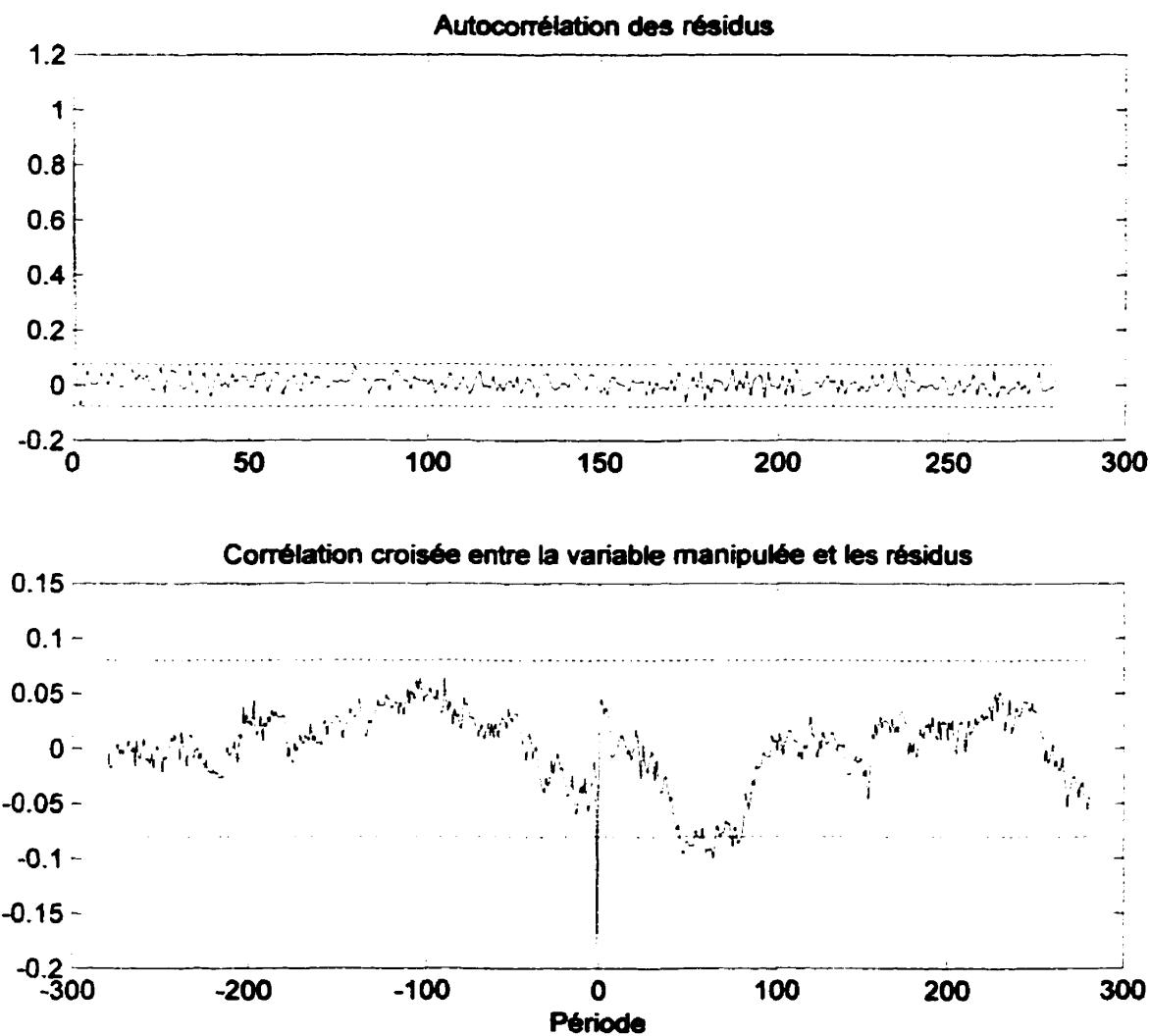


Figure 5.24 : Graphique de corrélation des résidus lors du test GBS (colonne 2).

#### 5.4 RÉSULTATS DES TESTS DYNAMIQUES RÉALISÉS SUR LE TERRAIN

Tel que décrit à la section 4.5, des essais dynamiques ont été réalisés sur le terrain. Les résultats sont donnés à la figure 5.25.

On constate que la profondeur a une influence sur la dynamique de l'oxygène en phase gazeuse. En effet, suite à la mise en marche de la pompe (figure 5.25a), la réponse dynamique de l'oxygène pour une profondeur de 1 m est similaire à celle d'un modèle de premier ou deuxième ordre. Par contre, pour une profondeur de 2 m on observe une réponse inverse. De plus, pour des débits d'air plus élevés (figure 5.25b), le gain du procédé est négatif à 1 m de profondeur et positif à 2 m. On observe aussi que la dynamique du procédé est non-linéaire.

Ces résultats sont probablement dus à des taux de consommation d'oxygène variables pour différents endroits dans la zone contaminée et à l'écoulement tridimensionnel de l'air. Effectivement, suite à un changement du débit il y a un nouvel équilibre des pressions dans la zone aérée. De l'air provenant d'une zone ayant un taux de consommation d'oxygène différent peut donc être transféré vers un autre endroit. Il s'établit ensuite un nouvel équilibre pour la concentration d'oxygène selon le (nouveau) débit d'air fourni. Ceci expliquerait la cause d'une réponse inverse. De plus, il est probable que le débit d'air mesuré à l'entrée du point d'injection était différent de celui où se trouvent les sondes d'oxygène (écoulement tridimensionnel). Ceci expliquerait les gains de signe opposé à différentes profondeurs de sol.

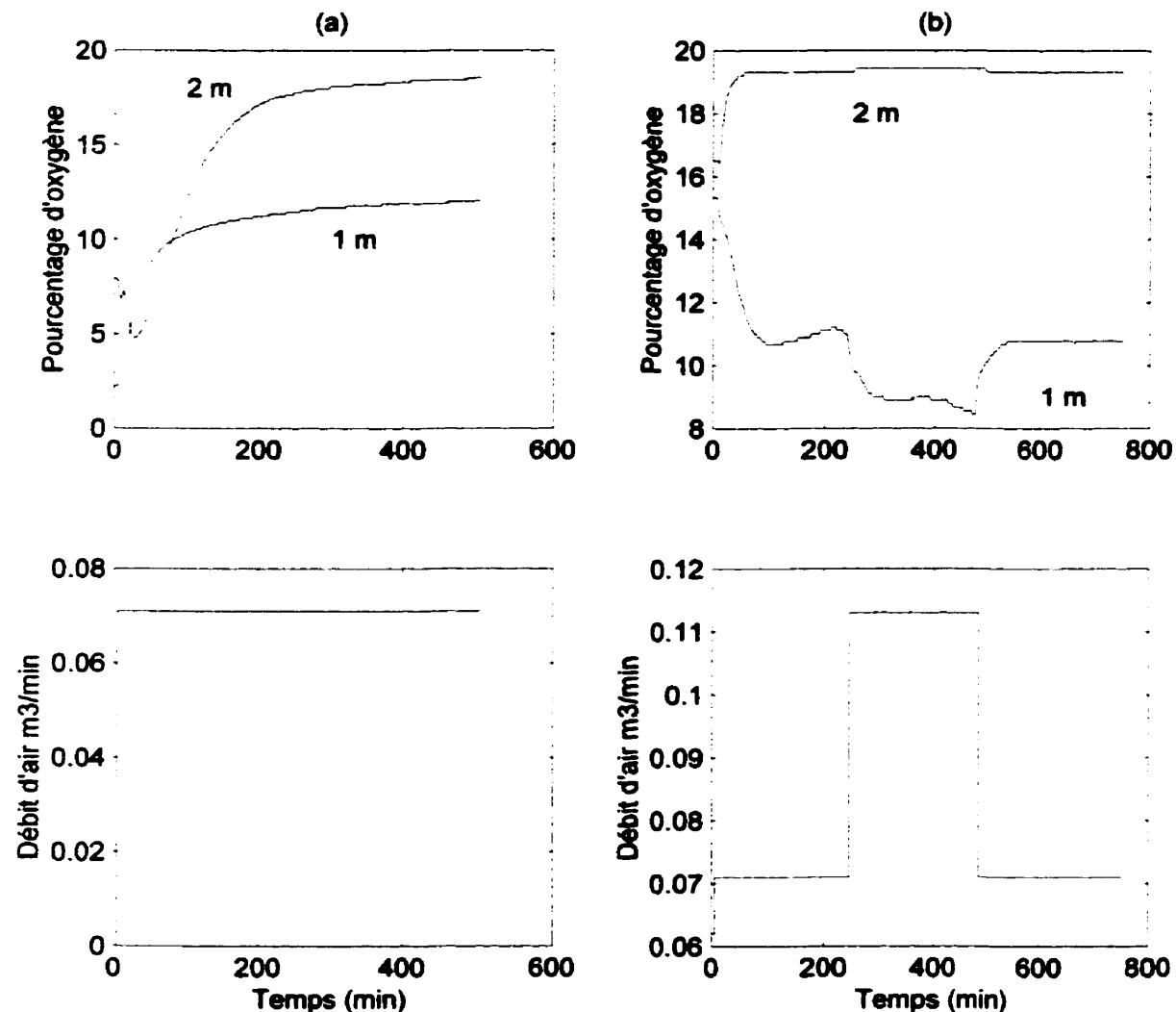


Figure 5.25 : Résultats d'essais dynamiques sur le terrain : (a) mise en marche de la pompe; (b) échelons sur le débit d'air.

Ces essais réalisés sur le terrain démontrent que le comportement dynamique dépend également des coordonnées spatiales du système. L'emplacement des sondes a donc un impact important sur la dynamique du procédé. Il conviendrait donc d'en tenir compte lors de l'implantation d'un système de contrôle pour le procédé de bioventilation *in situ* sur le terrain.

Soulignons que la procédure utilisée pour effectuer le réglage du contrôleur sur le terrain serait essentiellement la même que celle employée pour les essais en laboratoire. Par exemple, suite à la caractérisation dynamique du système, s'il est démontré que la dynamique du procédé est de premier ordre avec délai, un algorithme PI sera adéquat. Par contre, si le comportement dynamique est à réponse inverse, il peut être démontré qu'un algorithme de contrôle PID sera beaucoup plus efficace qu'un PI. D'où l'importance de bien caractériser la dynamique du système.

Par conséquent, si la méthodologie appliquée dans ce projet est utilisée sur le terrain, l'automatisation du procédé de bioventilation *in situ* devrait donner des résultats satisfaisants.

## 6 CONCLUSIONS ET RECOMMANDATIONS

### 6.1 CONCLUSIONS

Le but du travail était de développer une stratégie de contrôle pour le procédé de bioventilation *in situ*. Les objectifs du projet consistaient à caractériser et modéliser la dynamique du système ainsi que de concevoir et de faire la mise à l'essai d'un algorithme de contrôle.

La stratégie de contrôle proposée a comme variable manipulée le débit d'air et comme variable contrôlée la concentration d'oxygène en phase gazeuse. Le développement d'un modèle entrée-sortie, obtenu à partir de bilans de masse sur l'oxygène, indique que la dynamique du procédé dépend des conditions d'opération. Le gain en régime permanent et le temps de réponse diminuent pour des débits d'air plus élevés. Les résultats expérimentaux confirment cette tendance.

De plus, les essais en colonnes, sur une période de quatre mois, démontrent que la dynamique du procédé n'est pas stationnaire ; ce résultat était anticipé suite à la revue d'études antérieures sur la biodégradation d'hydrocarbures pétroliers dans un sol. Le débit d'air a dû être graduellement diminué pour obtenir une concentration équivalente ou même supérieure d'oxygène en phase gazeuse. Par exemple, lors du premier mois des essais dynamiques, un débit d'air de 13,9 ml/min donnait une concentration d'oxygène en phase gazeuse de 10 % en régime permanent ; lors du dernier mois, une concentration d'oxygène en phase gazeuse de 15 % était atteinte avec un débit d'air de 10 ml/min.

Les résultats des essais en régime transitoire révèlent que le modèle dynamique d'entrée-sortie du procédé est convenablement représenté par une fonction de transfert de premier ordre avec délai. Les paramètres de la fonction de transfert sont donc utilisés pour effectuer la conception d'un algorithme de contrôle PI. Le contrôleur permet un

comportement dynamique robuste en boucle fermée. Des points de consigne sur l'oxygène en phase gazeuse pour un intervalle allant de 13 jusqu'à 16,5 % sont atteints avec un temps de réponse satisfaisant. Le test GBS a également permis d'identifier une deuxième constante de temps pour le modèle dynamique d'entrée-sortie du procédé.

Un bilan de masse sur l'oxygène indique que le taux de biodégradation moyen des hydrocarbures est de 19,5 mg/kg-j, ce qui est en accord avec les taux généralement observés pour le procédé de bioventilation *in situ*. La variabilité entre les différents échantillons de sol étant trop élevée, les conclusions quant aux analyses des concentrations d'hydrocarbures pétroliers dans le sol sont difficiles à formuler. Les populations hétérotrophes totales se situent en moyenne entre  $10^5$  et  $10^7$  (NPP/g sol et UFC/g sol) et les dégradeurs d'hexadécane entre  $10^3$  et  $10^5$  (NPP/g sol), ce qui est typique de sols possédant une bonne activité biologique.

Par ailleurs, l'implantation de la stratégie de contrôle proposée procure trois améliorations au procédé de bioventilation *in situ*.

En premier lieu, la concentration d'oxygène en phase gazeuse doit être disponible en ligne. Il est donc possible d'estimer les niveaux de contamination d'hydrocarbures pétroliers dans le sol à l'aide d'un bilan de masse sur l'oxygène. Il n'est plus nécessaire de prendre de nombreux échantillons de sol périodiquement pour vérifier si les critères de décontamination sont atteints et les coûts des analyses au laboratoire sont réduits. Il est aussi plus facile de prévoir la date de fin de traitement. De plus, une fois la consommation d'oxygène devenue très faible, l'arrêt de l'activité de biodégradation est facilement et rapidement détecté et les échantillons de sol peuvent alors être analysés.

La deuxième amélioration est reliée à l'hypothèse de recherche à la base du projet. L'objectif de contrôle est de fournir le débit d'air approprié de manière à favoriser la

biodégradation tout en réduisant la volatilisation des hydrocarbures pétroliers. Ceci permet de diminuer les coûts associés au traitement des rejets gazeux.

La troisième amélioration est liée à la consommation d'énergie électrique de la pompe soufflante. Celle-ci est réduite puisque le débit d'air est ajusté pour ne plus être excessif. Des économies sont alors réalisées sur les coûts d'opération.

## 6.2 RECOMMANDATIONS

Suite aux travaux réalisés, certaines recommandations peuvent être formulées afin d'orienter de nouvelles voies de recherche.

Tout d'abord, l'apport de liquides, soit de l'eau ou des solutions de nutriments peuvent être envisagés comme variables manipulées additionnelles. Il serait intéressant d'évaluer leur influence sur la performance d'un traitement par bioventilation *in situ*.

En second lieu, les résultats de ce travail démontrent que la dynamique du procédé de bioventilation *in situ* est non-linéaire et non-stationnaire. Ainsi, l'utilisation d'algorithmes de contrôle adaptatif et/ou prédictif pourrait être envisagée. Il resterait à déterminer si ces algorithmes de commande, généralement plus performant mais également plus sophistiqués, apporteraient des avantages substantiels par rapport à un algorithme PI.

Enfin, la stratégie de contrôle proposée peut être améliorée en étudiant de manière plus approfondie l'influence de la concentration d'oxygène en phase gazeuse sur la biodégradation des hydrocarbures pétroliers. En effet, en connaissant plus précisément la valeur minimale d'oxygène en phase gazeuse nécessaire au maintien de conditions aérobies dans le sol, le débit d'air minimum correspondant pourrait être fixé. Ainsi, seulement l'oxygène requis à la biodégradation des hydrocarbures pétroliers serait fourni aux micro-organismes. Soulignons, en terminant, que pour étudier convenablement

l'effet de la concentration d'oxygène en phase gazeuse sur l'activité de biodégradation, il sera préférable de pouvoir la fixer à différentes valeurs désirées. Cependant, ceci nécessite au préalable un algorithme de contrôle.

## RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

ALEXANDER, M. (1994). Biodegradation and bioremediation. Academic Press, New York, 302 p.

ARMSTRONG, J. E., FRIND, E. O. et McCLELLAN, R. D. (1994). Nonequilibrium mass transfer between the vapor, aqueous, and solid phases in unsaturated soils during vapor extraction. Water Resources Research, 30 (2), 355-368.

ATLAS, R. M. (1991). Microbial hydrocarbon degradation - bioremediation of oil spills. J. Chem. Tech. Biotechnol., 52, 149-156.

ATLAS, B. J. et BARTHA, R. (1996). Microbial ecology fundamentals and applications. Benjamin/Cummins Publishing Company, Californie, 346 p.

BENSON, D. A., HUNTLEY, D. et JOHNSON, P. C. (1993). Modeling vapor extraction general transport in the presence of NAPL mixtures and nonideal conditions. Ground Water, 31 (3), 437-445.

CARTER, M.C. (1993). Soil sampling and methods of analysis. CRC Press, Boca Raton, 823 p.

CHEN, J.-K. et YU, C.-C. (1997). Optimal input design using generalized binary sequence. Automatica, 33 (11), 2081-2084.

CHEN, Y.-M., ABRIOLA, L. M., ALVAREZ, P. J., ANID, P. J. et VOGEL, T. M. (1992). Modeling transport and biodegradation of benzene and toluene in sandy aquifer material : comparisons with experimental measurements. Water Resources Research, 28 (7), 1833-1847.

COOKSON, J. T. (1995). Bioremediation engineering - design and application. McGraw-Hill, New York, 524 p.

DIALLO, M. (1998). Étude de l'évolution des micro-organismes dans un sol contaminé au diesel lors d'un traitement en colonne par bioventilation. Projet de fin d'études, École Polytechnique de Montréal, Canada, 47 p.

DUPONT, R. R. (1993). Fundamentals of bioventing applied to fuel contaminated sites. Environmental Progress, 12 (1), 45-53.

GIERKE, J. S., HUTZLER, N. J. et MCKENZIE, D. B. (1992). Vapor transport in unsaturated soil columns : implications for vapor extraction. Water Resources Research, 28 (2), 323-335.

GOMEZ-LAHOZ, C., ROGRIGUEZ-MAROTO, J. M. et WILSON, D. (1994). Biodegradation phenomena during soil vapor extraction : a high-speed nonequilibrium model. Separation Science and Technology, 29 (4), 429-463.

GREER, C., MASSON, L., COMEAU, Y., BROUSSEAU, R. et SAMSON, R. (1993). Application of molecular biology techniques for isolating and monitoring pollutant-degrading bacteria. Water Poll. Res. J. Canada, 28 (2), 275-287.

HAYDEN, N. J., VOICE, T. C. et ANNABLE, M. D. (1994). Change in gasoline constituent mass transfer during soil venting. Journal of Environmental Engineering, 120 (6), 1598-1614.

HO, C. K., LIU, S. W. et UDELL, K. S. (1994). Propagation of evaporation and condensation fronts during multicomponent soil vapor extraction. Journal of Contaminant Hydrology, 16 (4), 381-401.

JOHNSON, P. C., STANLEY, C. C., KEMBLOWSKI, M. W., BYERS, D. L. et COLTHARD, J. D. (1990a). A practical approach to the design, operation, and monitoring of in situ soil venting systems. Ground Water Monitoring Review, 10 (2), 159-178.

JOHNSON, P. C., KEMBLOWSKI, M. W. et COLTAHRD, J. D. (1990b). Quantitative analysis for the cleanup of hydrocarbon-contaminated soils by in situ soil venting. Ground Water, 28 (3), 413-429.

KARAN, K., CHAKMA, A. et MEHROTRA, A. K. (1995). Air stripping of hydrocarbon-contaminated soils : investigation of mass transfer effects. The Canadian Journal of Chemical Engineering, 73, 196-203.

LANG, J. R., RATHFELDER, K. M. et ABRIOLA, L. M. (1997). A numerical analysis of factors influencing bioventing performance. Fourth International In Situ and On-Site Bioreclamation Symposium, Batelle Press, Nouvelle Orléans, Louisiane, 1, 323-328.

LINGINENI, S. et DHIR, V. K. (1992). Modeling of soil venting processes to remediate unsaturated soils. Journal of Environmental Engineering, 118 (1), 135-152.

LJUNG, L. (1987). System identification : theory for the user. Prentice-hall, Englewood Cliff, 519 p.

MARLIN, T. E. (1995). Process control : designing processes and control systems for dynamic performance. McGraw Hill, New York, 954 p.

MEF (1996). Sous-comité sur le certificat d'autorisation lors du traitement *in situ* de sols contaminés. ICPP-MEF, Québec, 31 p.

- MOHR, D. H. et MERZ, P. H. (1995). Application of a 2D air flow model to soil vapor extraction and bioventing case studies. Ground Water, 33 (3), 433-444.
- NYER, E.K. (1996). In situ treatment technology. Lewis Publishers, Boca Raton, 329 p.
- OGUNNAIKE, B. A. et RAY, W. H. (1994). Process dynamics, modeling, and control. Oxford University Press, New York, 1260 p.
- PANKRATZ, A. (1983). Forecasting with univariate Box-Jenkins models. John Wiley & Sons, New York, 562 p.
- RATHFELDER, K., YEH, W. W.-G. et MACKAY, D. (1991). Mathematical simulation of soil vapor extraction systems : model development and numerical examples. Journal of Contaminant Hydrology, 8 (3/4), 263-297.
- REISINGER, H. J. (1995). Hydrocarbon bioremediation - an overview. Third international in situ and on-site bioreclamation symposium, Batelle Press, San Diego, Californie, 6, 1-9.
- SAMSON, R., GREER, C. W. et HAWARI, J. (1992). Démonstration d'un nouveau protocole de biotraitabilité pour le suivi d'un traitement biologique des sols contaminés. Institut de recherche en biotechnologie, Montréal, 130 p.
- SAMSON, R. (1994). Biorestauration des sites contaminés 2- Les technologies *in situ*. Centre québécois de valorisation de la biomasse : la filière biomasse. Sainte-Foy, 17 p.
- SAMSON, R., DESCHÈNES, L., BUREAU J., ESTRELA, S. et ROBERGE, F. (1998). Recherche et développement d'outils de gestion des sites contaminés adjacents à des

poteaux de bois traités au PCP (phase IV). Centre de développement technologique, École Polytechnique de Montréal, Montréal.

SEBORG, D. E., EDGAR, T. F. et MELLICHAMP, D. A. (1989). Process dynamic and control. John Wiley & Sons, New York, 717 p.

SHAH, F. H., HADIM, H. A. et KORFIATIS, G. P. (1995). Laboratory studies of air stripping of voc-contaminated soils. Journal of Soil Contamination, 4 (1), 93-109.

SÖDESTRÖM, T. et STOICA, P. (1989). System identification. Prentice Hall, New York, 612 p.

U.S.EPA (1991). Innovative treatment technologies : overview and guide to information sources, U.S. Environmental Protection Agency, Washington D.C.

U.S.EPA (1995a). Bioventing principles and practice volume I : bioventing principles, U.S. Environmental Protection Agency, Washington D.C.

U.S.EPA (1995b). Bioventing principles and practice volume II : bioventing design, U.S. Environmental Protection Agency, Washington D.C.

U.S.EPA (1995c). How to evaluate alternative cleanup technologies for underground storage tank sites – a guide for corrective action plan reviewers, U.S. Environmental Protection Agency, Washington D.C.

WHYTE, L. G., GREER, C. W. et INISS, W. E. (1996). Assessment of the biodegradation potential of psychrotrophic microorganisms. Can. J. Microbiol., 42, 99-106.

WIDRIG, D. L. et MANNING, J. F. (1995). Biodegradation of no. 2 diesel fuel in the vadose zone : a soil column study. Environmental Toxicology and Chemistry, 14 (11), 1813-1822.

**ANNEXES**

**ANNEXE I : CALCUL DE LA PERTE DE CHARGE POUR LE SOL ET LE GARNISSAGE  
DANS LA COLONNE**

Le calcul de la perte de charge ( $\Delta P$ ) est effectué avec l'équation d'Ergun :

$$\frac{dP}{dL} = -\frac{G(1-n_a)}{\rho d_p n_a^3} \left[ \frac{150(1-n_a)\mu}{d_p} + 1,75G \right]$$

où

P est la pression de l'air [=] Pa

L la hauteur du lit [=] m

G le débit massique superficiel [=] kg / m<sup>2</sup> s

n<sub>a</sub> la porosité du sol à l'air

$\rho$  la densité de l'air [=] kg/m<sup>3</sup>

d<sub>p</sub> le diamètre moyen des particules [=] m

$\mu$  la viscosité de l'air [=] Pa s

Si on considère que la perte de charge dans le lit est faible, on peut poser que la densité et la viscosité de l'air sont constante à travers le lit (pour une colonne isotherme, avec un gaz de masse molaire moléculaire constante). Ainsi, en multipliant le membre de droite de l'équation d'Ergun (qui est constant) par la hauteur du lit, on trouve la perte de charge.

Le calcul de la perte de charge dans le sol est effectué avec les valeurs suivantes :

- $\rho=1,2 \text{ kg/m}^3$  (évaluée avec la loi des gaz parfaits à pression atmosphérique et 21 °C)
- $G=9,7E-6 \text{ kg/m}^2\text{s}$  (débit d'air de 10 ml/min et une surface de diamètre de 0,16 m)
- $n_a=0,36$  (valeur moyenne, voir chapitre 5)
- $d_p=0,0007 \text{ m}$  (approximatif selon la figure 5.1)
- $\mu=1,8E-5 \text{ Pa s}$
- $L= 0,94 \text{ m}$

On trouve  $-\Delta P=0,37 \text{ Pa}$  pour le sol. De la même façon pour le garnissage (avec  $d_p=0,00055 \text{ m}$  et  $L=0,16 \text{ m}$ ) on trouve  $-\Delta P=0,1 \text{ Pa}$ . On constate que la perte de charge de l'air passant dans la colonne est très faible par rapport à la pression de sortie (1 atm). Par conséquent, on peut considérer la densité de l'air constante dans la colonne, et l'hypothèse posée pour le calcul est valide.

Enfin, le rapport des pertes de charge entre le garnissage et le sol est de 27 %. Ceci devrait assurer une bonne distribution de l'air vers le sol.

**ANNEXE II : COURBE DE CALIBRATION ET DU TEMPS DE RÉPONSE DES APPAREILS**

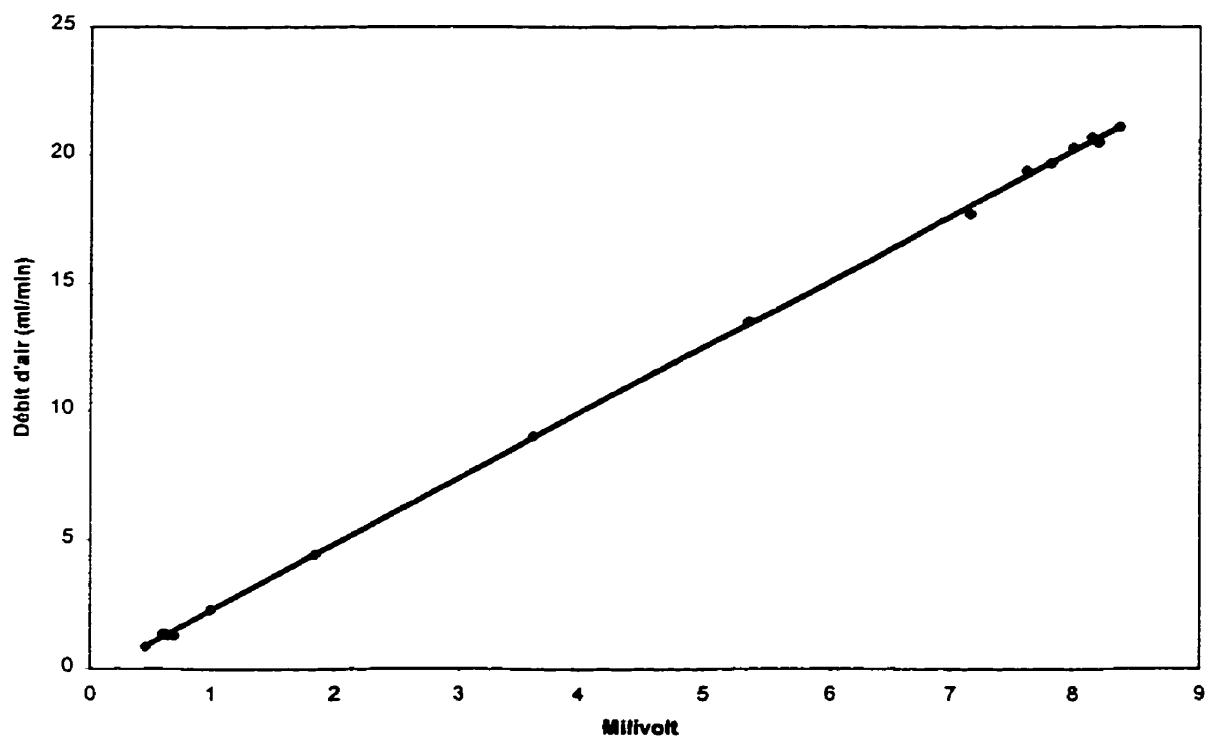


Figure II.1 : Calibration du débitmètre-contrôleur (0 à 20 ml/min).

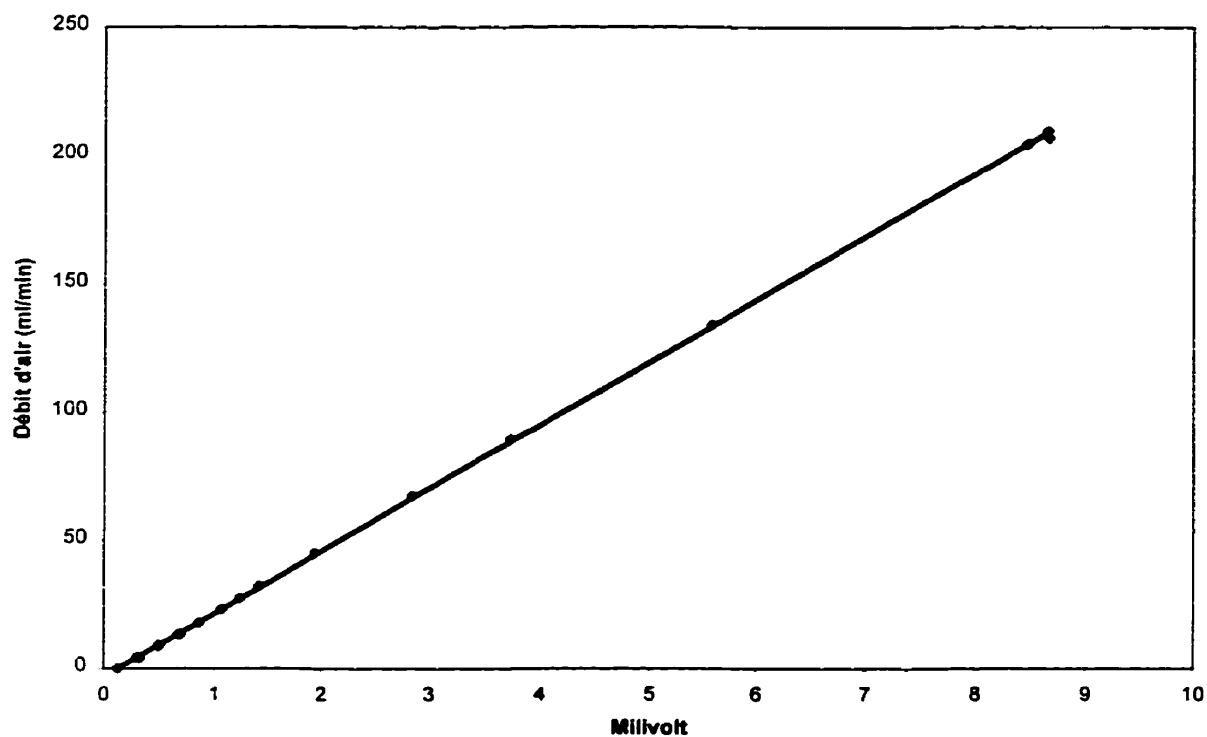


Figure II.2 : Calibration du débitmètre-contrôleur (0 à 200 ml/min).

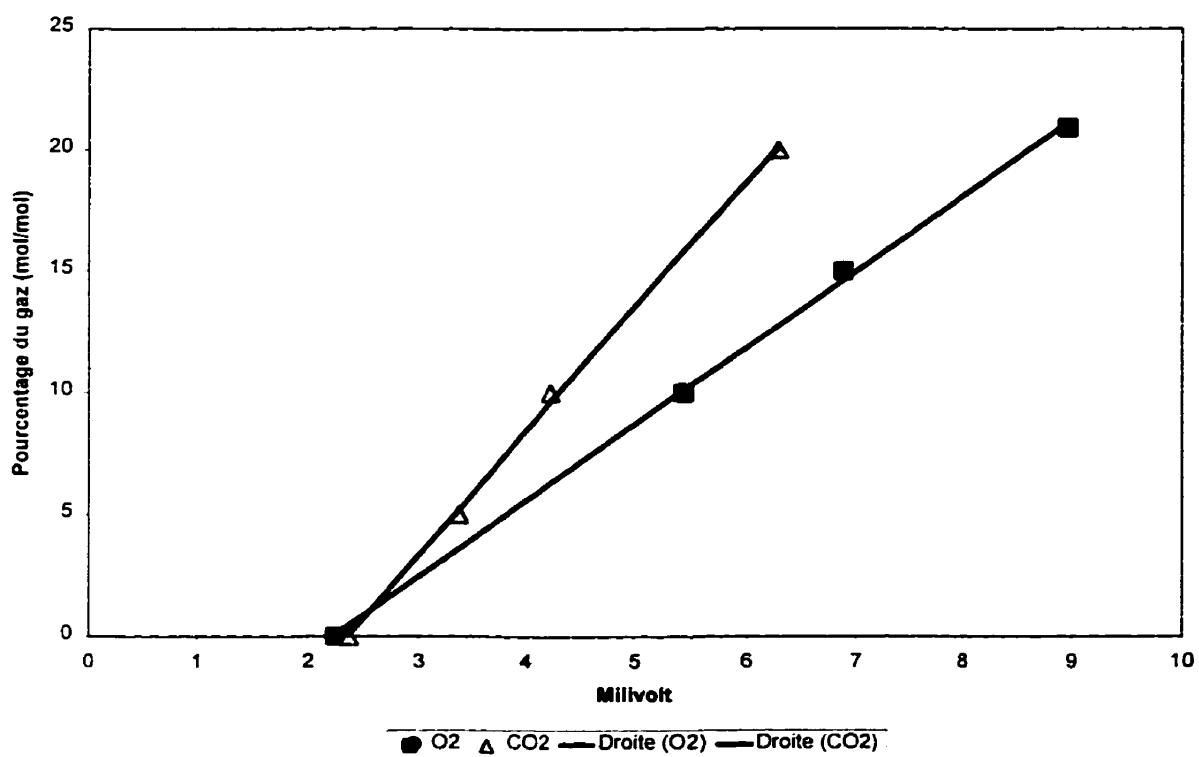


Figure II.3 : Calibration de l'analyseur d'oxygène et de bioxyde de carbone en phase gazeuse.

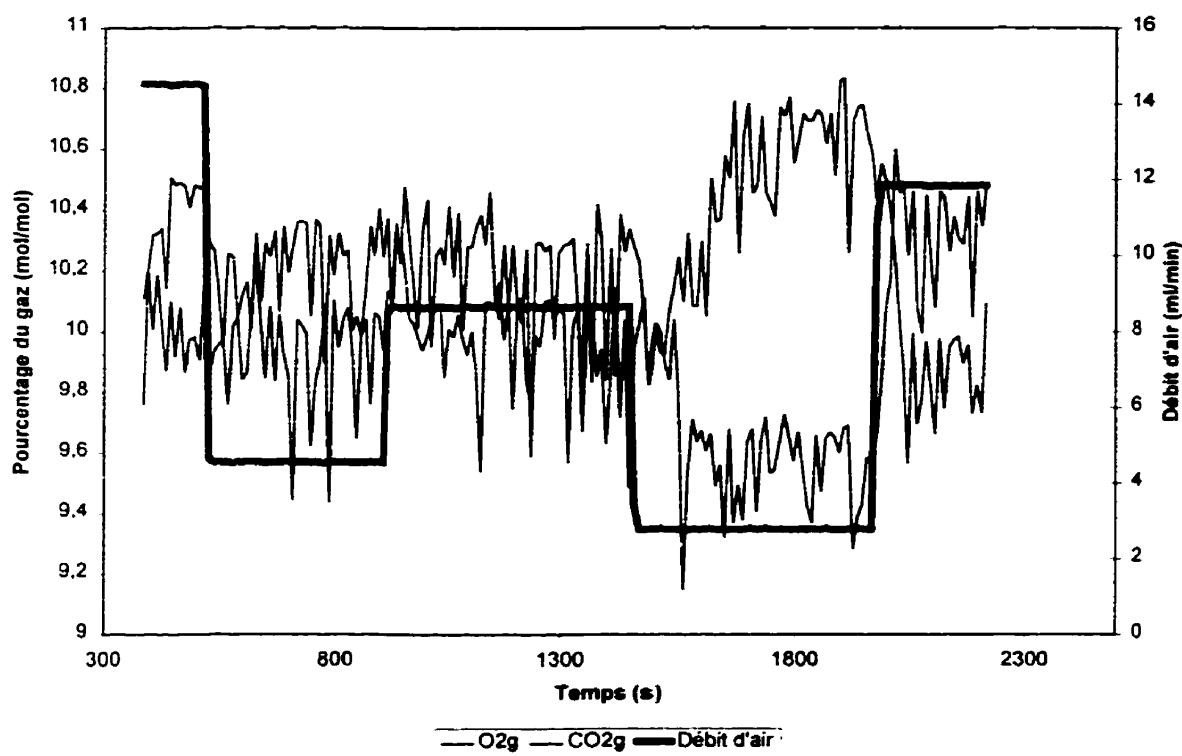


Figure II.4 : Lectures des concentrations d'oxygène et de bioxyde de carbone en fonction du débit d'air (mélange de gaz avec 10 % d'oxygène et de bioxyde de carbone).

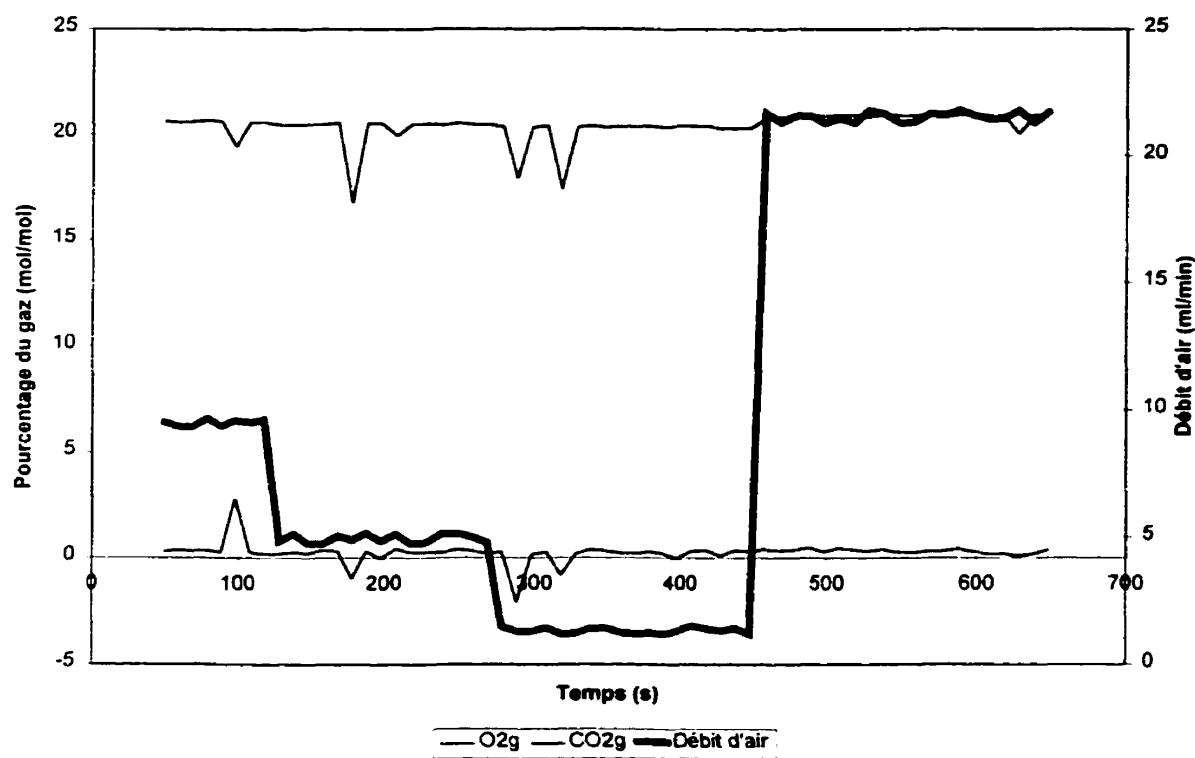


Figure II.5 : Lectures des concentrations d'oxygène et de bioxyde de carbone en fonction du débit d'air (mélange de gaz avec 20,9% d'oxygène et 0 % de bioxyde de carbone).

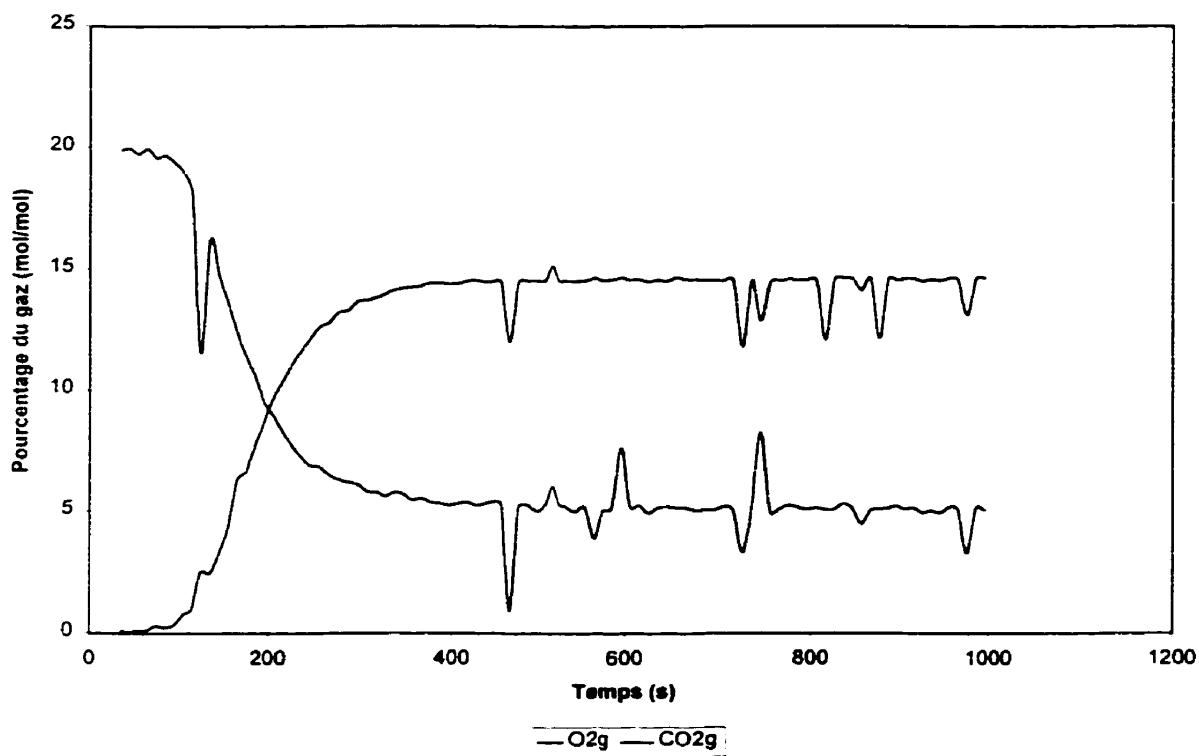


Figure II.6 : Temps de réponse pour l'analyseur d'oxygène et de bioxyde de carbone en phase gazeuse (de 0 à 15 % pour l'oxygène et de 20 à 5 % pour le bioxyde de carbone).

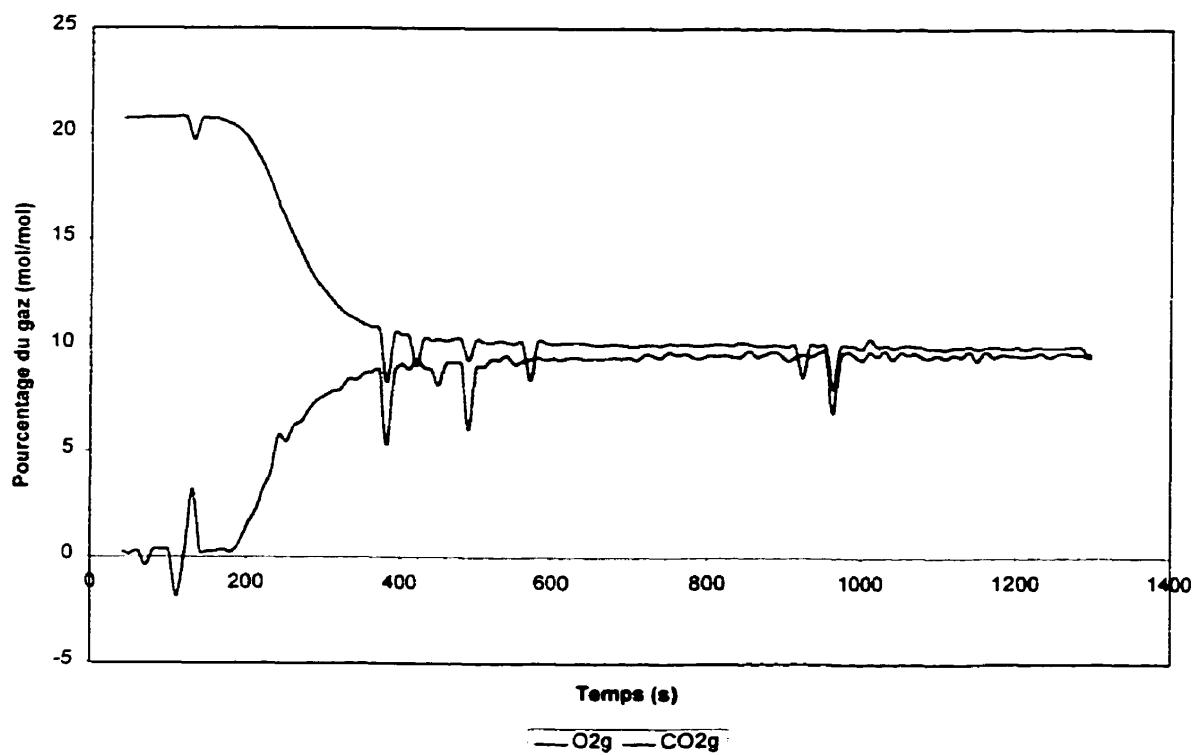


Figure II.7 : Temps de réponse pour l'analyseur d'oxygène et de bioxyde de carbone en phase gazeuse (20,9 à 10 % pour l'oxygène et de 0 et 10 % pour le bioxyde de carbone).

**ANNEXE III : COEFFICIENTS D'AUTOCORRÉLATION POUR LE DÉBIT D'AIR LORS  
DU PRBS**

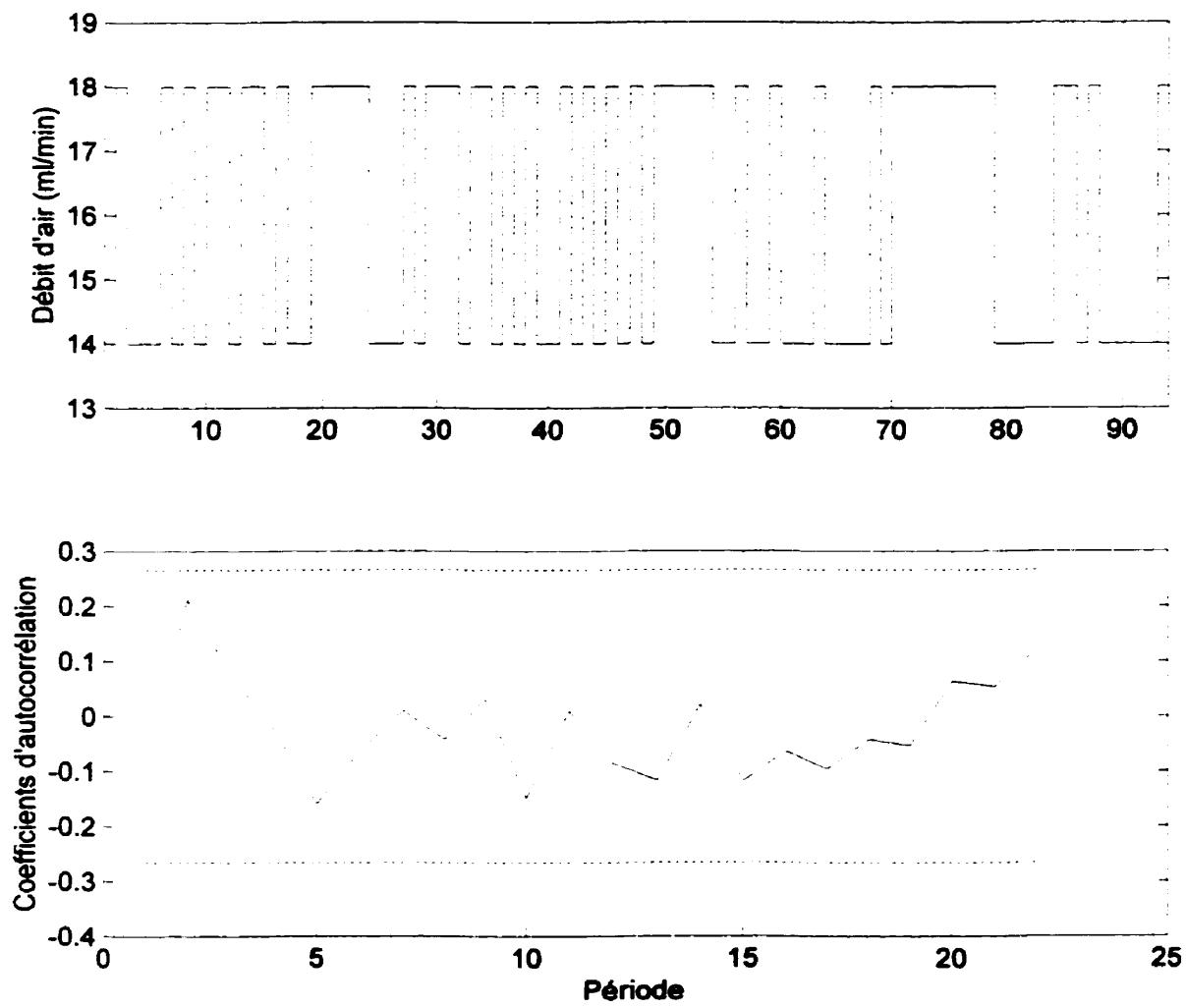


Figure III.1 : Coefficients d'autocorrélation du signal d'entrée lors du PRBS.

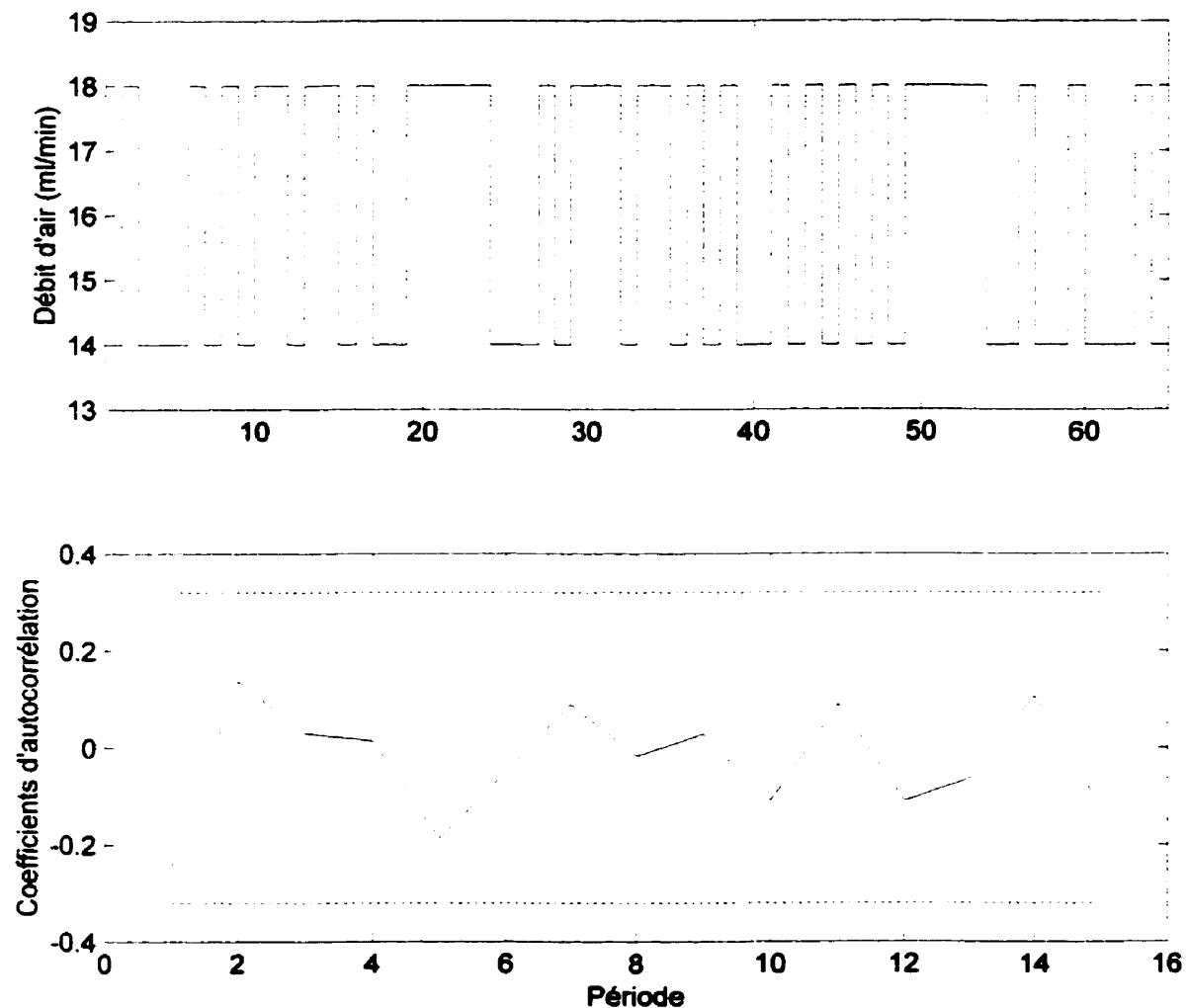


Figure III.2 : Coefficients d'autocorrélation du signal d'entrée utilisé pour la modélisation lors du PRBS.

**ANNEXE IV : ANALYSES C<sub>10</sub>-C<sub>50</sub>**

Pour les jours 30, 44 et 59 le contenu en eau n'a pas été évalué par le laboratoire. Les concentrations de C<sub>10</sub>-C<sub>50</sub> (mg/kg) en base sèche ont du être estimées en divisant la concentration sur une base humide par le contenu en eau des échantillons au jour 73.

#### Colonne 1

##### Échantillons prélevés à une hauteur

à partir de la base de la colonne de 18 cm (bas)

Temps (jours)	C <sub>10</sub> -C <sub>20</sub>	C <sub>20</sub> -C <sub>30</sub>	C <sub>30</sub> -C <sub>40</sub>	C <sub>40</sub> -C <sub>50</sub>	C <sub>10</sub> -C <sub>50</sub>
0	4200	4700	2400	860	12160
30	2200	5100	2800	1500	11600
86	3700	4300	2400	1000	11400
86	3900	4600	2600	1100	12200
128	4000	4500	2500	1200	12200
128	3400	3800	2200	1100	10500
128	4100	4600	2700	1300	12700
128	3600	4100	2300	1200	11200
résultats révisés pour une teneur en eau de 7,9 %					
30	2389	5537	3040	1629	12595

##### Échantillons prélevés à une hauteur

à partir de la base de la colonne de 55 cm (milieu)

Temps (jours)	C <sub>10</sub> -C <sub>20</sub>	C <sub>20</sub> -C <sub>30</sub>	C <sub>30</sub> -C <sub>40</sub>	C <sub>40</sub> -C <sub>50</sub>	C <sub>10</sub> -C <sub>50</sub>
0	3500	4000	2200	870	10570
30	1500	3700	1900	1300	8400
86	3100	3300	1800	780	8980
86	3100	3500	2000	830	9430
128	3700	4000	2300	1200	11200
128	2900	3200	1800	920	8820
128	2900	3200	1900	1300	9300
128	3100	3400	2000	1500	10000
résultats révisés pour une teneur en eau de 6,7 %					
30	1608	3966	2036	1393	9003

**Échantillons prélevés à une hauteur  
à partir de la base de la colonne de 92 cm (haut)**

Temps (jours)	C <sub>10</sub> -C <sub>20</sub>	C <sub>20</sub> -C <sub>30</sub>	C <sub>30</sub> -C <sub>40</sub>	C <sub>40</sub> -C <sub>50</sub>	C <sub>10</sub> -C <sub>50</sub>
0	3300	3800	2000	960	10060
30	2100	4300	2500	1500	10400
86	3100	3600	2000	990	9690
86	3600	4100	2300	970	10970
128	3300	3800	2200	1600	10900
128	2800	3200	1900	1500	9400
128	2800	3200	1900	1300	9200
128	2900	3400	2100	1700	10100
résultats révisés pour une teneur en eau de 6,3 %					
30	2241	4589	2668	1601	11099

**Colonne 2**

**Échantillons prélevés à une hauteur  
à partir de la base de la colonne de 18 cm (bas)**

Temps (jours)	C <sub>10</sub> -C <sub>20</sub>	C <sub>20</sub> -C <sub>30</sub>	C <sub>30</sub> -C <sub>40</sub>	C <sub>40</sub> -C <sub>50</sub>	C <sub>10</sub> -C <sub>50</sub>
0	4100	3700	1900	790	10490
30	2600	5100	2900	1900	12500
44	1800	4200	1900	1200	9100
59	3200	3300	1700	860	9060
73	3700	2900	1600	550	8750
86	3200	3400	1800	740	9140
86	3000	3300	1700	740	8740
128	4100	4300	2300	1300	12000
128	3800	3900	2100	1500	11300
128	3400	3400	1800	1200	9800
128	3600	3800	2000	1100	10500
résultats révisés pour une teneur en eau de 11 %					
30	2921	5730	3258	2135	14045
44	2022	4719	2135	1348	10225
59	3596	3708	1910	966	10180

**Échantillons prélevés à une hauteur  
à partir de la base de la colonne de 55 cm (milieu)**

Temps (jours)	C <sub>10</sub> -C <sub>20</sub>	C <sub>20</sub> -C <sub>30</sub>	C <sub>30</sub> -C <sub>40</sub>	C <sub>40</sub> -C <sub>50</sub>	C <sub>10</sub> -C <sub>50</sub>
0	4200	4800	2700	1100	12800
30	2300	4700	2700	1600	11300
44	2200	4500	2600	1400	10700
59	4400	4900	2700	1400	13400
73	3800	3400	1900	700	9800
86	3900	4400	2500	1000	11800
86	5500	6400	3400	1400	16700
128	3600	4100	2400	1600	11700
128	4600	5100	2800	1500	14000
128	3300	3700	2000	1000	10000
128	3600	4200	2400	1300	11500
résultats révisés pour une teneur en eau de 7,5 %					
30	2486	5081	2919	1730	12216
44	2378	4865	2811	1514	11568
59	4757	5297	2919	1514	14486

**Échantillons prélevés à une hauteur  
à partir de la base de la colonne de 92 cm (haut)**

Temps (jours)	C <sub>10</sub> -C <sub>20</sub>	C <sub>20</sub> -C <sub>30</sub>	C <sub>30</sub> -C <sub>40</sub>	C <sub>40</sub> -C <sub>50</sub>	C <sub>10</sub> -C <sub>50</sub>
0	3000	6500	1800	820	12120
30	1500	3400	1800	1100	7800
44	1300	3100	1600	990	6990
59	2300	2600	1400	760	7060
73	2900	2600	1400	610	7510
86	2500	3000	1700	820	8020
86	2100	2500	1400	670	6670
128	1800	2200	1300	910	6210
128	2000	2500	1400	1000	6900
128	2100	2500	1400	1000	7000
128	1900	2300	1300	990	6490
résultats révisés pour une teneur en eau de 6,5 %					
30	1604	3636	1925	1176	8342
44	1390	3316	1711	1059	7476
59	2460	2781	1497	813	7551