

# Les expériences de laboratoire permettent-elles de prévoir le transport de HAP et de métaux à l'échelle du lysimètre de terrain ?

Julien Michel, Valérie Gujisaite, Stéphanie Ouvrard, Sébastien Denys,  
Marie-Odile Simonnot

## ► To cite this version:

Julien Michel, Valérie Gujisaite, Stéphanie Ouvrard, Sébastien Denys, Marie-Odile Simonnot. Les expériences de laboratoire permettent-elles de prévoir le transport de HAP et de métaux à l'échelle du lysimètre de terrain?. 2. Rencontres nationales de la recherche sur les sites et sols pollués, Oct 2009, Paris, France. ADEME Editions. Angers, pp.NC, 2009. <ineris-00973355>

**HAL Id: ineris-00973355**

**<https://hal-ineris.archives-ouvertes.fr/ineris-00973355>**

Submitted on 4 Apr 2014

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

# Les expériences de laboratoire permettent-elles de prévoir le transport de HAP et de métaux à l'échelle du lysimètre de terrain ?

**Julien Michel<sup>(1)</sup>, Valérie Gujsaite<sup>(1,2)</sup>, Stéphanie Ouvrard<sup>(2)</sup>, Sébastien Denys<sup>(3)</sup>, Marie-Odile Simonnot<sup>(1)</sup>,**

<sup>(1)</sup> Laboratoire des Sciences du Génie Chimique, Nancy Université, INPL – CNRS, 1 rue Grandville BP 20451, 54001 NANCY Cedex, julien.michel@ensic.inpl-nancy.fr

<sup>(2)</sup> Laboratoire Sols et Environnement, Nancy Université, INPL – INRA, 2 avenue de la Forêt de Haye, BP172, 54505 VANDOEUVRE LES NANCY Cedex

<sup>(3)</sup> INERIS, Direction des Risques Chroniques, Pôle Risques et Technologies Durables, Unité Impact Sanitaire et Exposition, Parc Technologique ALATA, BP 2, 60550 VERNEUIL EN HALATTE

## **RESUME**

Dans les régions à forte tradition industrielle, l'arrêt des usines métallurgiques et des cokeries a généré de vastes superficies de friches polluées par des hydrocarbures lourds (de type Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques, HAP) et des métaux. Certains de ces composés sont connus pour être cancérigènes et/ou mutagènes. Il est donc indispensable de mesurer leur distribution et leur teneur sur le terrain et d'être capable de prévoir leur éventuelle migration dans le sol. Ce travail, mené dans le cadre du GISFI ([www.gjsfi.fr](http://www.gjsfi.fr)), a pour objectif d'évaluer le transfert de HAP et métaux issus d'une terre de cokerie vers la ressource en eau, à différentes échelles et de déterminer laquelle est la plus représentative des conditions de terrain et pourra être utilisée lors de la conduite d'études de risque. Trois systèmes expérimentaux ont été utilisés : une colonne de laboratoire en conditions saturées et non saturées, un lysimètre de terrain et un « mini-lysimètre ». Les courbes de percée des HAP ont montré que leur sortie était surestimée en colonne de laboratoire par rapport à ce qui se passe sur le terrain, et qu'un « mini-lysimètre » fonctionnant en conditions non saturées et en régime transitoire offrait un bon compromis pour évaluer leur transport dans les sols. La sortie des métaux (zinc et plomb) à l'échelle du terrain est en revanche bien prédite par des expériences en colonne de laboratoire et en « mini-lysimètre ».

## **1. INTRODUCTION**

Le sol, longtemps considéré comme ayant une capacité d'absorption illimitée, fait partie des ressources non renouvelables menacées. Il est le support de toute activité humaine et reçoit de ce fait des pollutions multiples. Dans les régions à forte tradition industrielle, on rencontre de vastes superficies de friches suite à l'arrêt des usines métallurgiques et des cokeries. Ces sols de friches sont contaminés en particulier par des Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP), des métaux, de l'arsenic et du cyanure.

Pour les études de risque, il est indispensable d'évaluer la quantité de polluants capable de migrer dans le sol et d'atteindre la ressource en eau. Dans cet objectif, la colonne de laboratoire en conditions saturées et en régime d'écoulement permanent est souvent choisie comme dispositif de référence. Or, on peut se demander si une telle expérience estime correctement la quantité de HAP et de métaux lixiviables en conditions réelles. En effet, ces expériences de laboratoire sont mises en œuvre avec des terres tamisées, en régime permanent, donc dans des conditions assez différentes de celles du terrain. Il faut donc les comparer à des expériences menées à l'échelle du lysimètre. Or l'expérimentation à cette échelle nécessite des durées longues de l'ordre de plusieurs années. On a donc cherché à mettre en œuvre un dispositif de laboratoire de taille intermédiaire entre la colonne et le lysimètre, fonctionnant avec une terre non tamisée, en conditions non saturées, et en écoulement transitoire.

Trois systèmes expérimentaux différents ont donc été utilisés : une colonne de laboratoire, un lysimètre de terrain et un « mini-lysimètre », remplis d'une terre prélevée sur une ancienne cokerie lorraine. Après avoir présenté ces systèmes ainsi que la démarche d'étude,

le transport des 16 HAP recensés par l'US EPA et de deux métaux modèles, le zinc et le plomb, est comparé à ces trois échelles.

## **2. MATERIELS ET METHODES**

### **2.1 Terre contaminée**

La terre polluée provient d'une friche de cokerie située à Homécourt (Meurthe-et-Moselle). Les installations ont été arrêtées en 1980 et démantelées en 1985. Les sols y sont pollués sur une profondeur de 5 m par des goudrons et des HAP [1-3], des métaux et localement par des cyanures. Les terres ont été prélevées lors de deux campagnes lors desquelles elles ont été criblées à 15 puis à 4 cm après homogénéisation et quartage. Pour les expériences en colonne de laboratoire, 50 kg ont été récupérés, puis tamisés entre 50 µm et 2 mm, après séchage à l'air à température ambiante (fraction TP1). Pour les expériences en lysimètre et en « mini-lysimètre », la terre a été utilisée telle quelle (fraction TP2). Leurs principales propriétés physico-chimiques sont présentées dans le Tableau 1.

	<b>TP1</b>	<b>TP2</b>
<b>pH</b>	8,8	8,3
<b>Eléments traces totaux (mg kg<sup>-1</sup>)</b>		
Cr	56,3	63,8
Cu	27,6	45,5
Ni	24,5	26,1
<b>Zn</b>	<b>362</b>	<b>391</b>
Co	10,2	11,7
<b>Pb</b>	<b>115</b>	<b>153</b>
Cd	5,62	7,69
<b>HAP totaux (mg kg<sup>-1</sup>)</b>	<b>6 789</b>	<b>4 908</b>

**Tableau 1 - Propriétés physico-chimiques des terres polluées**

Cette terre est majoritairement sableuse et son pH relativement élevé à cause du taux de calcaire [4 ; 5]. Le taux de carbone organique est élevé (12,2 et 13,9 % pour TP1 et TP2 respectivement) en raison des activités qui ont eu lieu sur le site. Les teneurs en métaux des terres polluées restent inférieures aux valeurs de constat d'impact (VCI) pour un usage sensible publiées par le BRGM en 2002, à savoir (en mg kg<sup>-1</sup> de terre) : Cr 130 ; Cu 190 ; Ni 140 ; Zn 9 000 ; Co 240 ; Pb 400 ; Cd 20). Cette terre ne serait donc pas considérée comme polluée du point de vue des métaux, car les teneurs en Cu, Zn, Pb et Cd sont inférieures aux VCI. Elles sont pourtant supérieures à celles rencontrées habituellement dans les terres agricoles [6], ce qui montre qu'une pollution par les métaux a bien eu lieu sur ce site.

La concentration en HAP de cette terre de cokerie est relativement élevée, même si certains sites d'anciennes cokeries peuvent présenter des teneurs en HAP de l'ordre de 30 g kg<sup>-1</sup> [7].

### **2.2 Colonne de laboratoire**

Le montage utilisé pour la lixiviation des HAP et des métaux en régime permanent sur la terre TP1, en colonne de laboratoire en conditions saturées et non saturées, permet la conduite d'expériences de lixiviation sur des milieux poreux à une teneur en eau constante et contrôlée, en régime d'écoulement permanent [8 ; 9]. Il se compose d'une colonne en inox (diamètre 9,4 cm, hauteur 21 cm), remplie d'environ 1830 g de terre, alimentée par une pompe péristaltique multicanaux (Ismatec). Le dispositif est équipé d'un collecteur de fractions (Spectra/Chrom), le tout est piloté par ordinateur. Les colonnes de terre ont été préalablement saturées de bas en haut avec une solution de Ca(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub> de concentration 2 mM, à un débit de 0,2 mL min<sup>-1</sup>. Elles ont été pesées avant et après saturation. Les expériences ont été ensuite menées à un débit de 3,5 mL min<sup>-1</sup> à 22 ± 2 °C.

En conditions saturées, l'expérience a été démarrée dès la fin de la saturation de la colonne. La percolation a été effectuée du bas vers le haut. En conditions non saturées, l'écoulement a été établi du haut vers le bas, avec une alimentation goutte à goutte. Une succion à

dépression constante (31 cm d'eau) a été imposée dans le réservoir de 5 L se trouvant en sortie de colonne, à l'aide d'une pompe à vide à membrane (KNF).

### **2.3 Mini-lysimètre de laboratoire**

Le mini-lysimètre [10], en PVC translucide, est composé de trois parties :

- La partie alimentation, de hauteur 50 cm et de diamètre 15 cm, n'est pas remplie de terre. Elle permet le développement d'une lame d'eau éventuelle en cas d'écoulement difficile. A sa base, elle comporte une plaque d'alimentation composée de trous de diamètre 0,6 cm, espacés de 1,5 cm, et surmontés de tubes PVC de 1 cm de hauteur. Ainsi, l'alimentation en eau de la colonne s'effectue par trop plein et de manière homogène sur toute la surface supérieure.
- La partie centrale, de hauteur 30 cm et de diamètre 15 cm est remplie de terre. Un filtre en inox de porosité 180 µm est fixé à la base de cette partie, et l'écoulement a lieu dans un entonnoir en inox.
- La partie inférieure sert de socle pour la colonne. Celle-ci est posée en permanence sur une balance, afin de contrôler sa teneur en eau.

Le mini-lysimètre a été rempli avec 9,2 kg de terre, par couches successives de 1,5 kg. Il a été alimenté conformément à une pluie d'automne, à savoir une pluie longue d'intensité modérée. D'après l'examen des données météo à Homécourt, l'intensité moyenne d'une telle pluie est de 1,1 mm h<sup>-1</sup>, soit 1,1 L m<sup>-2</sup> h<sup>-1</sup>. En rapportant cette intensité à la surface du mini-lysimètre, le débit appliqué était de 0,3 mL min<sup>-1</sup>. Afin de simuler des cycles de séchage/humidification, 7 cycles d'écoulement/séchage ont été réalisés. Chaque écoulement a duré 24 h, permettant d'effectuer deux collectes de 250 mL et les durées de séchage ont varié entre 6 et 60 jours.

### **2.4 Lysimètre de terrain**

Le lysimètre est situé sur la station expérimentale du GISFI à Homécourt. C'est une « colonne » de terre enterrée, en inox, de 2 m de hauteur et de 1 m<sup>2</sup> de section. Il est placé sur peson, ce qui permet de connaître à tout instant sa masse et donc sa teneur en eau. L'eau de drainage est évacuée par un orifice en fond de lysimètre et récupérée dans une bonbonne en verre. Un jeu de trois sondes (une sonde TDR, un tensiomètre et une bougie poreuse permettant le prélèvement de la solution du sol) est placé à trois profondeurs différentes (50, 100 et 150 cm) et la température du sol est également mesurée. Les sondes TDR (Time Domain Reflectometry) sont utilisées pour mesurer la teneur en eau volumique du sol. Les tensiomètres permettent de mesurer la charge hydraulique du sol. Toutes les données sont recueillies et enregistrées par un Data Logger toutes les heures. Le lysimètre est soumis aux conditions naturelles et il est laissé en « terre nue ». Une station météo permet de mesurer la pluviométrie. Le lysimètre a été rempli avec 3 090 kg de terre non tamisée par couches successives de 200 kg.

### **2.5 Analyse des solutions**

Les HAP ont été dosées par HPLC à détection de fluorescence et les métaux (zinc et plomb) par ICP-MS. Deux traitements différents ont été appliqués aux échantillons avant dosage du zinc et du plomb :

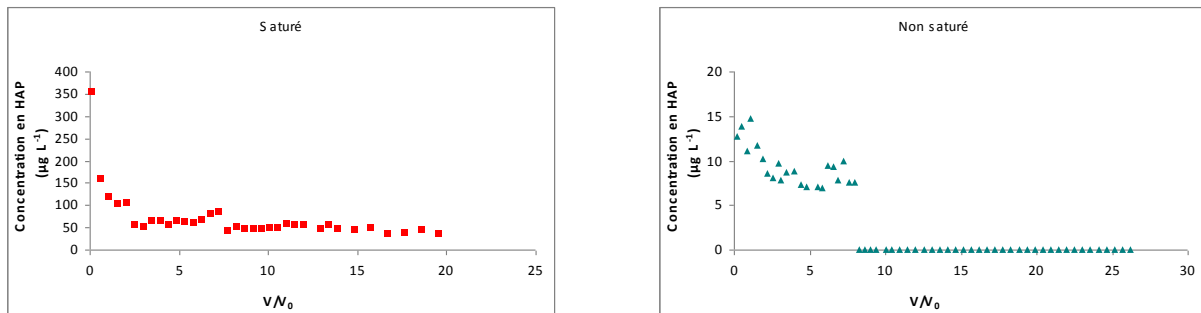
- Traitement dissous (D) : filtration à 0,22 µm puis acidification à 1 % vol. à l'aide d'acide nitrique concentré. Ce traitement permet d'avoir accès uniquement aux éléments dissous.
- Traitement particulaire (P) : Acidification à 1 % vol. à l'aide d'acide nitrique concentré, puis filtration à 0,22 µm. Ce traitement permet d'avoir accès aux composés dissous et associés à des colloïdes et /ou particules.

### **3. RESULTATS ET DISCUSSION**

#### **3.1 Evolution des HAP**

##### **3.1.1 Evolution des HAP en colonne de laboratoire**

Les courbes de percée des 16 HAP US EPA pour l'expérience de lixiviation en colonne de laboratoire, en conditions saturées et non saturées sont présentées sur la Figure 1. L'abscisse correspond au volume réduit, à savoir le rapport du volume de solution percolé et du volume d'eau contenu dans la colonne.



**Figure 1 - Courbes de percée des 16 HAP US EPA en colonne de laboratoire**

La courbe de percée des HAP en conditions saturées se décompose en deux parties. Tout d'abord, on observe une décroissance rapide de la concentration sur les deux premiers volumes poreux percolés. Elle atteint ensuite un palier et reste constante jusqu'à la fin de l'expérience. Le fait que les concentrations des deux premières collectes étaient plus élevées s'explique par la méthode de saturation de la colonne : le temps de contact entre le sol et la solution qui sort de la colonne lors des deux premières collectes (premier volume poreux) a été beaucoup plus élevé que pour les solutions suivantes qui ont traversé la colonne à un débit de  $3,5 \text{ mL min}^{-1}$ . Ceci a donc permis une désorption plus importante des HAP. En effet, il a été montré que lors d'expériences en colonne, la sortie des HAP était limitée par la diffusion au sein des particules de sol et que le relargage des HAP d'une terre polluée en condition saturées dépendait principalement du temps de contact entre la solution et la terre [3 ; 11 ; 12]. Cette limitation est bien illustrée par le palier atteint par la concentration en HAP pour la suite des expériences. L'examen des courbes présentant la concentration en chaque HAP ainsi que leur concentration rapportée à leur solubilité dans l'eau à  $20 \text{ °C}$  (non présenté ici) montre que dans les deux cas, ils peuvent être divisés en deux groupes au regard de leur mode de transport : les HAP légers (du fluorène au pyrène) qui migrent sous forme dissoute, et les HAP lourds (du chrysène à l'indéno(1,2,3-cd)pyrène) qui sont transportés sous forme colloïdale et/ou associé à des particules de taille inférieure à  $0,5 \text{ µm}$ . De plus, la proportion de HAP lixiviée est très faible (0,014 %) conformément à ce qui a été reporté dans la littérature lors de lixiviations de terres polluées par des HAP en conditions saturées [3;9;13;14]. Cette tendance peut également s'expliquer par une séquestration des HAP due à leur vieillissement [7 ; 15].

La courbe de percée des HAP en conditions non saturées n'a pas la même allure et présente trois parties : tout d'abord, on observe une décroissance rapide de la concentration totale (de  $15 \text{ à } 7 \text{ µg L}^{-1}$ ), puis un palier autour de  $6 \text{ µg L}^{-1}$ . Enfin, la concentration totale en HAP chute brutalement en dessous des limites de quantification et de détection de l'HPLC après  $8 V_0$  percolés, (les points correspondants sur la Figure 1 ont été placés à une valeur nulle). Les concentrations en HAP dans les collectes sont, de plus, très inférieures à celles mesurées en conditions saturées (de l'ordre de 20 fois inférieures en début d'expérience et 10 fois inférieures au niveau du palier). Par ailleurs, seuls trois HAP ont été détectés dans les collectes : l'acénaphthène, le fluoranthène et le pyrène. Ces deux derniers correspondent aux HAP légers les plus abondants dans la terre et ils sont tous les trois transportés sous forme dissoute, conformément à ce qui a été montré en conditions saturées. Ceci confirme donc le peu de résultats publiés dans la littérature à ce sujet, à savoir un transport de HAP faible en conditions non saturées, ceux-ci ayant une affinité plus grande pour la matrice solide immobile que pour la phase mobile [9 ; 16]. Par ailleurs, en conditions non saturées,

l'espace poral n'est pas totalement rempli d'eau et la solution ne « visite » pas tous les pores lors de l'écoulement. Ainsi, elle va donc plutôt éviter les zones hydrophobes où se trouvent les HAP, permettant un passage moindre en solution des molécules organiques. La proportion de HAP lixiviée par rapport à ce que contenait la terre est ici encore très faible (0,0004 %).

### 3.1.2 Evolution des HAP en lysimètre

La Figure 2 présente la courbe de percée des 16 HAP US EPA en lysimètre de terrain. Au niveau du percolat, la sortie des HAP a lieu de manière continue, avec des concentrations inférieures à  $1 \mu\text{g L}^{-1}$ . Ces concentrations sont inférieures à celles mesurées lors des expériences de laboratoire en conditions non saturées qui variaient entre 7 et  $15 \mu\text{g L}^{-1}$ . Les expériences en conditions non saturées au laboratoire, en régime d'écoulement permanent surestiment donc la quantité de HAP mobilisables à l'échelle du terrain, mais sont néanmoins plus proches que les expériences en conditions saturées, pour lesquelles les concentrations dans les collectes étaient comprises entre 50 et  $350 \mu\text{g L}^{-1}$ . On note ici cependant deux points hauts à 2,75 et  $3,5 \mu\text{g L}^{-1}$ , ce qui reste du même ordre de grandeur. Tous les percolats ne contiennent pas de HAP puisque pour certains points, la concentration en HAP était inférieure à la limite de quantification de l'HPLC.

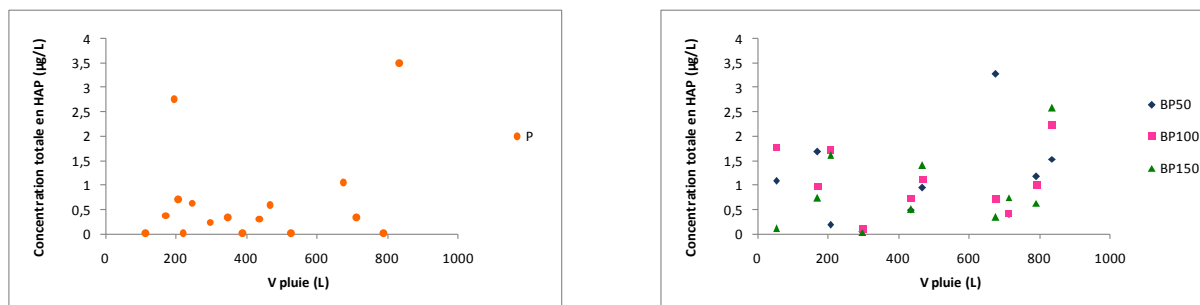


Figure 2 - Courbes de percée des 16 HAP US EPA en lysimètre

Le comportement des HAP totaux est le même au niveau des bougies poreuses, avec une sortie continue. Les concentrations sont du même ordre de grandeur que dans le percolat aux trois niveaux de prélèvement. Les répartitions des concentrations suivant les profondeurs de prélèvement ne semblent pas pour le moment suivre un ordre logique. De plus, tous les HAP sont majoritairement transportés sous forme dissoute puisque leur concentration dans les collectes est inférieure à leur limite de solubilité dans l'eau à  $20^\circ\text{C}$ . Néanmoins, les HAP lourds sont probablement transportés également sous forme particulière puisque dans certaines collectes ils s'en rapprochent ou la dépassent légèrement (pour le benzo(ghi)perylène et l'indéno(1,2,3-cd)pyrène, les deux HAP les plus lourds, au niveau du percolat). Ainsi, à ce stade de l'expérience, il semble que les expériences de laboratoire, en conditions non saturées et en régime d'écoulement permanent surestiment la migration des HAP telle qu'elle a lieu à l'échelle du terrain, puisque les HAP qui étaient mobilisés n'étaient pas les mêmes (seul l'acénaphthène, le fluoranthène et le pyrène migraient) et les concentrations étaient plus élevées (entre 7 et  $15 \mu\text{g L}^{-1}$ ).

### 3.1.3 Evolution des HAP en mini-lysimètre

La Figure 3 présente la courbe de percée des 16 HAP US EPA en mini-lysimètre. Tout comme en lysimètre, la sortie des HAP s'effectue plutôt de manière constante, et la durée de l'arrêt ne semble pas avoir d'influence sur la sortie des HAP.

Les concentrations en HAP sont du même ordre de grandeur que celles mesurées en lysimètre, puisqu'elles sont ici principalement inférieures à  $1,5 \mu\text{g L}^{-1}$ , mais nettement inférieures à celles observées en conditions non saturées en colonne de laboratoire. De plus, les HAP migrent principalement sous forme dissoute, sauf les deux plus lourds (benzo(ghi)perylène et Indéno(1,2,3-cd)pyrène) qui se trouvent dans quelques collectes à des concentrations supérieures à leur limite de solubilité dans l'eau, montrant un transport sous forme colloïdale et/ou particulière.

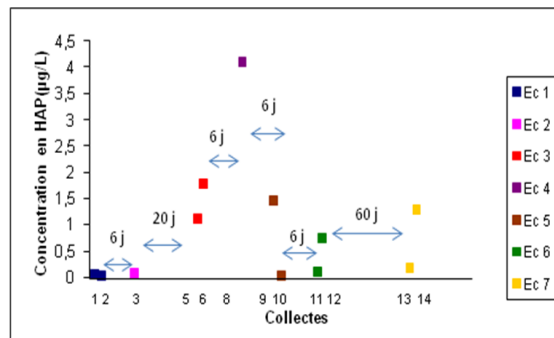


Figure 3 - Courbe de percée des 16 HAP US EPA en « mini-lysimeètre »

A ce stade de l'expérience, ce dispositif est donc un bon outil pour prédire la sortie des HAP à l'échelle du terrain, tant au niveau des concentrations en solution que du mode de transport de ceux-ci.

### 3.2 Evolution des concentrations en métaux

#### 3.2.1 Evolution des concentrations en métaux en colonne de laboratoire

En conditions saturées et non saturées (Figure 4), la sortie du zinc a lieu de manière continue, principalement à des valeurs inférieures à  $10 \mu\text{g L}^{-1}$  pour les traitements dissous et particulaire, à l'exception de quelques points hauts après traitement particulaire, résultant vraisemblablement de contaminations des échantillons lors de leur filtration. Contrairement aux HAP, il ne semble donc pas y avoir d'épuisement du zinc au cours de cette expérience, ce qui montre que le zinc provenait d'une « source ». Le « réservoir » de zinc, tel que le zinc échangeable et la dissolution des précipités de zinc comme les sulfates et les carbonates de zinc, n'a pas été épuisé au cours de cette expérience, résultant ainsi en une concentration constante en zinc en sortie de colonne.

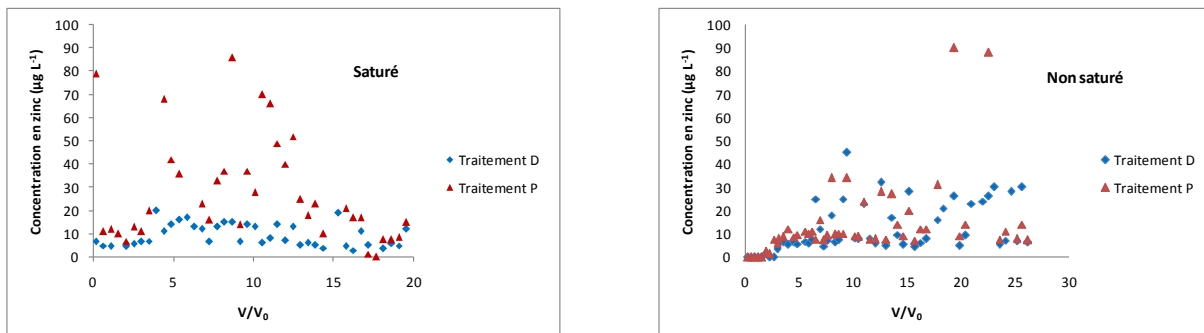


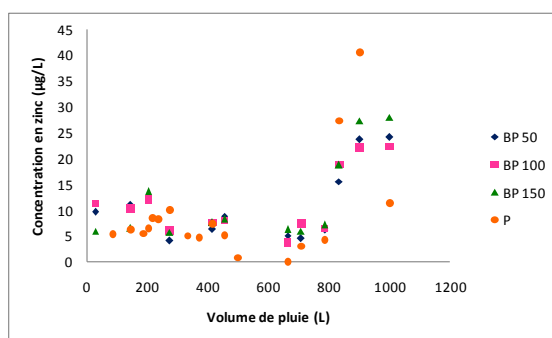
Figure 4 - Courbes de percée du zinc en colonne de laboratoire

Ce comportement a également été observé par Voegelin lors d'expériences de lixiviation sur une terre polluée par des métaux, en colonne, en conditions saturées ( $\text{Zn}: 700 \text{ mg kg}^{-1}$ ;  $\text{pH } 6,9$ ) avec une solution de  $\text{CaCl}_2$  [17]. Les concentrations en zinc étaient du même ordre de grandeur que celle observées ici, autour de  $35 \mu\text{g L}^{-1}$ . Les concentrations en zinc sont également du même ordre de grandeur pour les traitements D et P, ce qui prouve que la plupart du zinc transporté lors de cette expérience a migré sous forme dissoute en solution. Contrairement au zinc, le plomb n'a pas été détecté lors de ces expériences : sa concentration était inférieure à la limite de quantification de l'ICP-MS ( $1 \mu\text{g L}^{-1}$ ). Cette observation confirme le fait que le plomb a une très forte affinité pour la matrice solide [18]. De plus, lorsque le pH est supérieur à 6 (ce qui est le cas ici), le plomb est fortement sorbé sur les argiles et les surfaces minérales [19].

#### 3.2.2 Evolution des concentrations en métaux en lysimeètre

Au niveau du percolat et des bougies poreuses, les concentrations en zinc sont du même ordre de grandeur (Figure 5). De plus, sa sortie s'effectue plutôt de manière continue, conformément à ce qui a été observé en laboratoire, en conditions saturées et non saturées. Les concentrations sont du même ordre de grandeur, principalement inférieures à  $10 \mu\text{g L}^{-1}$ .

On observe cependant des points « hauts » pour les 3 dernières collectes, mais cette augmentation n'est pas significative au vue des faibles concentrations mesurées. Tout comme pour les expériences de laboratoire, cette sortie continue s'explique par une source de zinc disponible provenant des carbonates et sulfates de zinc, ainsi que du zinc échangeable, qui n'a pas été épuisée sur la période d'étude [17]. De plus, les concentrations en zinc sont du même ordre de grandeur pour les traitements D et P (non représenté ici), ce qui montre que le zinc est majoritairement transporté sous forme dissoute, conformément à ce qui a été observé au laboratoire. Ceci montre que la sortie du zinc en lysimètre est bien représentée par une expérience de laboratoire en colonne, en conditions saturées ou non saturées.



**Figure 5 - Courbe de percée du zinc en lysimètre**

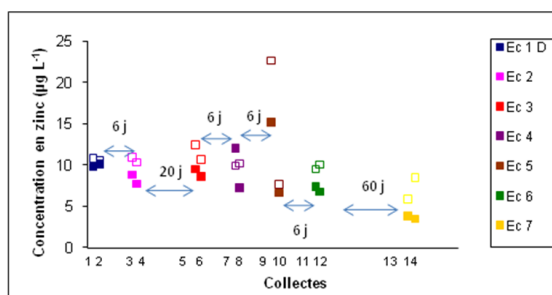
Les concentrations en plomb au niveau du percolat et des bougies poreuses sont du même ordre de grandeur (non représenté ici). De plus, il est uniquement détecté dans quelques collectes à des concentrations inférieures à  $0,2 \mu\text{g L}^{-1}$ . On note cependant quelques points plus hauts, mais toujours inférieurs à  $1 \mu\text{g L}^{-1}$ . Cette différence n'est pas significative au vue des très faibles concentrations dosées ici. En lysimètre, le plomb est très fortement retenu. Ceci confirme ce qui a été observé en laboratoire, mais également ce qui a été observé par Elzhabi et Yong à savoir une rétention du plomb favorisée par un pH élevé, un fort taux de carbonates et un faible taux de saturation [20].

### **3.2.2 Evolution des concentrations en métaux en mini-lysimètre**

La Figure 6 présente les courbes de percée du zinc pour les traitements D (carrés pleins) et P (carrés vides). Tout comme lors des expériences de lixiviation en conditions saturées et non saturées, la sortie du zinc s'effectue plutôt de manière continue et les concentrations s'établissent autour de  $10 \mu\text{g L}^{-1}$ .

On ne relève pas de différence entre les traitements D et P, montrant que le zinc est majoritairement transporté sous forme dissoute.

Les différentes périodes d'arrêt n'ont pas d'influence sur la sortie du zinc. Le plomb n'a pas été détecté dans les collectes relatives à cette expérience : les concentrations étaient inférieures à la limite de quantification de l'ICP-MS utilisé pour son dosage ( $1 \mu\text{g L}^{-1}$ ). Ceci est conforme à ce qui a été observé en lysimètre.



**Figure 6 - Courbe de percée du zinc en mini-lysimètre**



## 4. CONCLUSION

La comparaison de trois systèmes permettant l'évaluation du transport des polluants dans les sols a permis de montrer que la migration des HAP au niveau du terrain était largement surestimée par des expériences de laboratoire en conditions saturées et non saturées, en régime d'écoulement permanent. Par contre, la sortie des métaux était bien représentée à l'échelle de la colonne de laboratoire. **A ce stade de l'expérience, le mini-lysimètre, simple et rapide à mettre en œuvre, semble être une bonne alternative permettant d'évaluer la sortie des HAP et des métaux à l'échelle du terrain et pourrait être un bon outil lors de la conduite d'études de risque.**

## 5. REFERENCES

- [1] Benhabib, K., M.O. Simonnot and M. Sardin (2006), "PAHs and organic matter partitioning and mass transfer from coal tar particles to water." *Environmental Science and Technology* **40**: 6038-6043.
- [2] Benhabib, K., P. Faure, M. Sardin and M.O. Simonnot (2009), "Characteristics of a solid coal tar sampled from a contaminated soil and of the organics transferred into water." *Fuel* *in press*
- [3] Benhabib, K (2005), "Transport dans les sols de cokerie de HAP issus de particules de goudron de houille" Nancy, Doctorat INPL : 248.
- [4] Lassabatere, L., T. Winiarski and R. Galvez-Cloutier (2004). "Retention of three heavy metals (Zn, Pb, and Cd) in a calcareous soil controlled by the modification of flow with geotextiles." *Environmental Science and Technology* **38**(15): 4215-4221.
- [5] Zhang, M., W. Li, Y. Yang, B. Chen and F. Song (2005). "Effects of readily dispersible colloid on adsorption and transport of Zn, Cu, and Pb in soils." *Environment International* **31**(6): 840-844.
- [6] Baize, D. (2000). "Teneurs totales en métaux lourds dans les sols français-Résultats généraux du programme ASPITET." *Le Courrier de l'environnement* **39**.
- [7] Vessigaud, S. (2007). Re-mobilisation des hydrocarbures aromatiques polycycliques de terres industrielles de cokerie et mécanismes impliqués dans le vieillissement du fluoranthène Nancy, INPL: 249.
- [8] Totsche, K. U. and R. Scheibke (1999). Scalable semi-open column for determination of chemical, physical and hydraulic parameters of water and mass transfer in porous media Germany, DE 19800887.
- [9] Gujisaite, V. (2008). "Transport réactif en milieu poreux non saturés- Couplage écoulement-interactions." Nancy, Doctorat INPL: 231.
- [10] Larmet, H. (2006). "Mobilisation et transfert de Zn, Cd, Cu et des colloïdes bactériens dans les bassins d'infiltration d'eaux pluviales : influence des conditions hydrodynamiques, Grenoble, Doctorat UJF : 327.
- [11] Wehrer, M. and K. U. Totsche (2005). "Determination of effective release rates of polycyclic aromatic hydrocarbons and dissolved organic carbon by column outflow experiments." *European Journal of Soil Science* **56**(6): 803-813.
- [12] Totsche, K. U., S. Jann and I. Kögel-Knabner (2006). "Release of polycyclic aromatic hydrocarbons, dissolved organic carbon, and suspended matter from disturbed NAPL-contaminated gravelly soil material." *Vadose Zone Journal* **5**(1): 469-479.
- [13] Reemtsma, T. and J. Mehtens (1997). "Determination of Polycyclic Aromatic Hydrocarbon (PAH) leaching from contaminated soil by a column test with on-line solid phase extraction." *Chemosphere* **35**(11): 2491-2501.
- [14] Enell, A., F. Reichenberg, P. Warfvinge and G. Ewald (2004). "A column method for determination of leaching of polycyclic aromatic hydrocarbons from aged contaminated soil." *Chemosphere* **54**(6): 707-715.
- [15] Nam, K., N. Chung and M. Alexander (1998). "Relationship between organic matter content of soil and the sequestration of phenanthrene." *Environmental Science and Technology* **32**(23): 3785-3788.
- [16] Marschner, B. (1999). "Sorption of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH) and polychlorinated biphenyls (PCB) in soil." *Sorption von polyzyklischen aromatischen Kohlenwasserstoffen (PAK) und polychlorierten Biphenylen (PCB) im Boden*, *Journal of Plant Nutrition and Soil Science* **162**(1): 1-14.
- [17] Voegelin, A., K. Barmettler and R. Kretzschmar (2003). "Heavy metal release from contaminated soils: Comparison of column leaching and batch extraction results." *Journal of Environmental Quality* **32**(3): 865-875.
- [18] Igloria, R. V., W. E. Hathhorn and D. R. Yonge (1996). "Effects of natural organic matter on heavy metal transport during infiltration." *Transportation research record*(1523): 167-172.
- [19] Newman, M. E., A. W. Elzerman and B. B. Looney (1993). "Facilitated transport of selected metals in aquifer material packed columns." *Journal of Contaminant Hydrology* **14**: 233-246.
- [20] Elzahabi, M. and R. N. Yong (1997). *Vadose zone transport of heavy metals*. Contaminated ground : fate of pollutants and remediation, Cardiff.