

Le transport d'hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) dans les sols non saturés

Julien Michel, Sébastien Denys

► **To cite this version:**

Julien Michel, Sébastien Denys. Le transport d'hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) dans les sols non saturés. Rapport Scientifique INERIS, 2010, 2009-2010, pp.38-40. ineris-01869272

HAL Id: ineris-01869272

<https://hal-ineris.archives-ouvertes.fr/ineris-01869272>

Submitted on 6 Sep 2018

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.

Le transport d'hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) dans les sols non saturés



J. Michel/S. Denys

Dans les régions à forte tradition industrielle, comme la Lorraine, l'arrêt des usines métallurgiques et des cokeries a généré de vastes superficies de friches industrielles. Les sols de ces friches peuvent être pollués par des contaminants organiques, comme les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP), des métaux tels que le cadmium, le plomb, le zinc ou encore des cyanures. Les HAP sont des composés organiques neutres, hydrophobes et apolaires. Leur limite de solubilité dans l'eau à 20 °C varie entre 32 mg/L, pour les plus solubles comme le naphthalène, et 10^{-4} mg/L pour les moins solubles comme l'indéno[1,2,3-cd]pyrène. Certains de ces composés sont cancérigènes et/ou mutagènes (HAP, cadmium). Ces polluants peuvent être

fortement retenus dans les sols et les sédiments, mais peuvent également migrer et atteindre les ressources en eau. Il est donc indispensable d'étudier et de prévoir leur migration dans les sols ainsi que leur éventuel transfert vers la nappe phréatique, pouvant résulter en la contamination de la nappe et en l'exposition des personnes et des écosystèmes.

En général, l'étude des mécanismes régissant le transport des polluants dans les sols est réalisée d'abord en laboratoire, en réacteur fermé, puis par des expériences en colonnes, de petites dimensions (10 cm de diamètre et 20 cm de haut au maximum) et qui sont remplies avec une terre tamisée, ce qui peut amplifier ou masquer certains phénomènes. De plus, la majeure partie des études est réalisée en conditions d'écoulement saturées (tout l'espace poral du sol est rempli d'eau), alors que, dans la plupart des cas, la pollution pénètre dans le sol par la zone non saturée (un mélange d'eau et d'air est présent dans l'espace poral du sol). Pour conduire des études dans des conditions représentatives de la réalité, il est donc nécessaire d'étudier le sol en conditions non saturées afin de mettre en évidence l'influence d'un mélange d'eau et d'air sur la migration et la réactivité des contaminants.

L'objectif de ce travail de thèse (réalisé au GISFI – Groupement d'Intérêt Scientifique sur les Friches Industrielles – en partenariat avec l'INERIS) était d'évaluer

la migration des HAP dans un système qui reflète au mieux les conditions du terrain, et de comparer les résultats avec ceux obtenus en colonne de laboratoire. Il a été choisi de travailler à une échelle intermédiaire entre le laboratoire et le terrain, en utilisant une colonne lysimétrique originale (2 m de hauteur), soumise aux conditions naturelles régissant sur un site, pendant une période de suivi de 15 mois.

MATÉRIELS ET MÉTHODES

Terre contaminée

Dans le cadre de ces travaux, les expériences ont été effectuées sur une terre provenant d'une friche de cokerie lorraine, située à Homécourt (Meurthe-et-Moselle). Sur ce site, les installations ont été démantelées en 1985. Les sols y sont pollués sur une profondeur de 5 m par des goudrons et des HAP, des métaux et, localement, par des cyanures. De grandes quantités de terre ont été prélevées dans les deux premiers mètres, homogénéisées, quartées (c'est-à-dire séparées en sous-échantillons de même masse) puis criblées à 15 et à 4 cm.

Cette terre est majoritairement sableuse et son pH relativement élevé (8,3) en raison du taux de calcaire présent (287 g/kg). Le taux de carbone organique est également élevé (13,9 %) en raison des activités qui ont eu lieu sur le site, comme les dépôts de charbon par exemple. Les teneurs en Cu, Zn, Pb et Cd (respectivement

RÉFÉRENCES

- [1] Baize D. Teneurs totales en métaux lourds dans les sols français – Résultats généraux du programme ASPITET. Le Courrier de l'environnement 39, 2000.
- [2] Michel J. Transport d'hydrocarbures aromatiques polycycliques et de métaux dans les sols non saturés. Thèse de doctorat, Nancy, INPL: 253, 2009.
- [3] Michel J., Gujisaité V., Ouvrard S., Denys S., Simonnot M.O., Les expériences de laboratoire permettent-elles de prévoir le transport de HAP et de métaux à l'échelle du lysimètre de terrain ? Actes du congrès Deuxièmes rencontres nationales de la recherche sur les sites et sols pollués : pollutions locales et diffuses, 2009.
- [4] Ngo V. V., Michel J., Latifi M. A., Lucas L., Simonnot M. O., Analyse de sensibilité et d'estimabilité des paramètres affectant la percée des bromures – Comparaison entre le modèle de porosité uniforme et le modèle de double porosité, Actes du congrès SFGP, 2009.

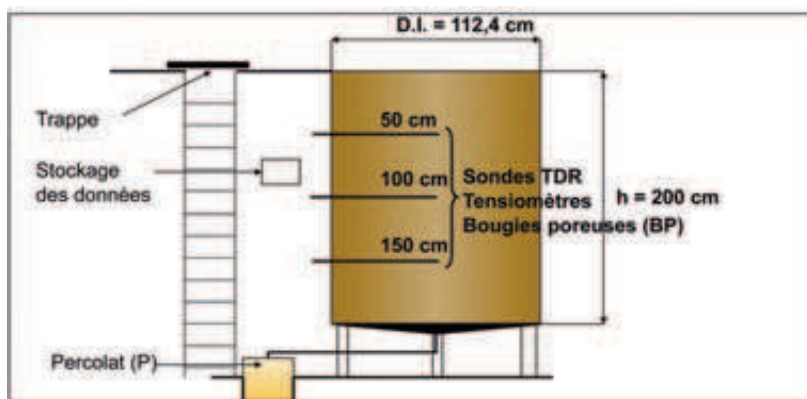


FIGURE 1

VUE EN COUPE DU LYSIMÈTRE

La solution du sol est prélevée à 4 niveaux différents dans le lysimètre : 50, 100, 150 cm (3 bougies poreuses, notées BP) et 200 cm (percolat, noté P, drainage libre, en fond de lysimètre). Aux profondeurs 50, 100 et 150 cm, une sonde TDR et un tensiomètre sont également mis en place.

45,5 ; 391 ; 153 et 7,69 mg/kg) sont supérieures aux valeurs habituellement rencontrées dans les terres agricoles françaises [1], montrant qu'une pollution par les métaux a bien eu lieu sur ce site – bien que n'étant pas énormément plus élevées (2 à 4 fois plus élevées, sauf pour le Cd pour lequel elles sont 17 fois plus élevées). La concentration totale en 16 HAP « US EPA » (16 HAP répertoriés par l'agence de la protection de l'environnement aux États-Unis US EPA en raison de leur grande toxicité) est d'environ 5 µg/kg de terre (les bruits de fond rural et urbain sont inférieurs à 5 µg/kg).

SYSTÈME EXPÉRIMENTAL

Le lysimètre est un cylindre enterré, en inox, de 2 m de hauteur et de 1 m² de section (figure 1). 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 (Time Domain Reflectometry), 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) ; la température du sol est également mesurée. La solution du sol est ainsi prélevée à quatre niveaux différents : 50, 100, 150 cm (3 bougies poreuses, notées BP) et 200 cm (percolat noté P,

drainage libre, en fond de lysimètre).

Les sondes TDR sont utilisées pour mesurer la teneur en eau volumique du sol. Les tensiomètres permettent de mesurer la charge hydraulique du sol. Les données sont recueillies et enregistrées sur des pas de temps horaires. Le lysimètre est soumis aux conditions naturelles de température et de pluviométrie et il est maintenu en « terre nue ». Une station météo permet de mesurer la pluviométrie. En fond de lysimètre, une couche de 15 cm de sable a été placée afin d'éviter l'entraînement et l'accumulation de terre dans les tuyaux. Il a ensuite été rempli avec 3 tonnes de terre, par couches successives de 200 kg.

Le lysimètre a été suivi sur une période de 15 mois, au cours desquels 19 campagnes de prélèvement d'eau (eau interstitielle et/ou percolat) ont été réalisées. Les analyses des 16 HAP dans les collectes ont été effectuées sans filtration.

Dans le cadre d'autres travaux de

recherche (Michel, 2009), des échantillons de terre provenant du même lot ont été tamisés et placés en colonne (diamètre intérieur = 9,4 cm, hauteur = 21 cm). Ces colonnes de terre ont été soumises à des écoulements en milieu saturé et non saturé au laboratoire. Les conditions opératoires étaient contrôlées et les débits d'alimentation constants. Les 16 HAP ont été dosés dans les collectes.

RÉSULTATS ET DISCUSSION

La figure 2 présente l'évolution des concentrations totales en 16 HAP dans les bougies poreuses et dans le percolat, au cours des 15 mois de suivi.

Au niveau du percolat (P), les concentrations totales en HAP sont faibles et en moyenne de 1 µg/L. On note deux points à 2,75 et 3,5 µg/L, ce qui reste cependant dans une gamme de concentrations basses. Dans certains percolats, les 16 HAP n'ont pas été détectés.

Le comportement des HAP totaux est le même au niveau des bougies poreuses

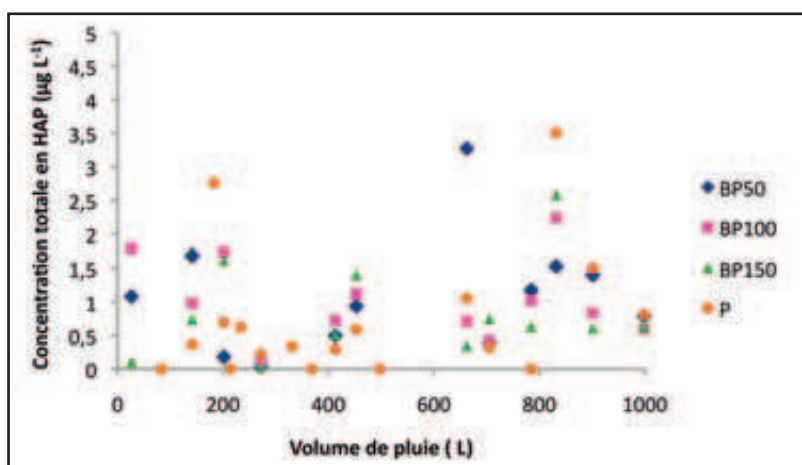


FIGURE 2

ÉVOLUTION DES CONCENTRATIONS TOTALES EN HAP DANS LE PERCOLAT (P) ET LES BOUGIES POREUSES (BP)

Au niveau du percolat (P) et des bougies poreuses (BP), les concentrations totales en HAP dans l'eau du sol sont du même ordre de grandeur. Elles sont faibles et en moyenne de 1 µg/L.

(BP). Les concentrations sont du même ordre de grandeur que dans le percolat aux trois niveaux de prélèvement. Les répartitions des concentrations en fonction des profondeurs de prélèvement ne semblent pas suivre un ordre logique. De même, l'alternance d'épisodes pluvieux et de périodes de séchage auxquels est soumis le lysimètre n'a pas d'effet sur le relargage des HAP aux quatre profondeurs de prélèvement.

En colonne de laboratoire, les concentrations mesurées dans les collectes étaient largement supérieures à celles obtenues en lysimètre (entre 50 et 350 $\mu\text{g/L}$ et entre 7 et 15 $\mu\text{g/L}$ pour les conditions saturées et non saturées respectivement). Ceci montre que les conditions opératoires, et en particulier le tamisage de la terre et le taux de saturation du milieu, influencent fortement le relargage des HAP. Ainsi, lors du tamisage de la terre, les agrégats peuvent être cassés et peuvent de ce fait exposer à la solution des contaminants qui auraient été « piégés » dans la matrice solide, permettant un relargage plus élevé. Par ailleurs, les concentrations faibles mesurées en lysimètre s'expliquent également par un taux de saturation très faible de ce dernier (proche de celui régnant dans la zone non saturée du sol sur le terrain). Ainsi, l'eau ne va pas être en contact avec tout l'espace poral lors de l'écoulement, et va éviter les zones hydrophobes contenant les HAP, impliquant un passage en solution moins élevé de ceux-ci. Ceci permet également d'expliquer le fait que l'intensité et la durée des épisodes pluvieux et des périodes de séchage n'ont pas d'influence sur le relargage des HAP, puisque quels que soient les événements pluvieux appliqués au lysimètre, la teneur en eau était constante à l'intérieur du système. En effet, le volume poreux du système est de 1 000 L, et sa surface de 1 m^2 . Les plus fortes pluies observées sur la période de suivi étant de 30 mm, le volume d'eau introduit dans le lysimètre était de 30 L au maximum. Ainsi, un tel volume d'eau ne permet pas d'augmenter significativement la teneur en eau dans l'espace poral du sol, expliquant pourquoi elle était globalement constante sur toute la période de suivi. En lysimètre, tous les HAP peuvent avoir été majoritairement transportés sous forme dissoute puisque leur concen-

FIGURE 3
VUE DES 24 LYSIMÈTRES ÉQUIPANT LA STATION EXPÉRIMENTALE D'HOMÉCOURT



tration dans les collectes est inférieure à leur limite de solubilité dans l'eau à 20 °C. Néanmoins, certains HAP lourds sont probablement transportés également sous forme particulaire puisque dans certaines collectes ils s'en rapprochent ou la dépassent légèrement, au niveau du percolat.

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Les expériences conduites sur le lysimètre et en colonne de laboratoire ont permis de mettre en évidence l'importance du taux de saturation du milieu sur le relargage des HAP dans les sols non saturés en eau. Ainsi, dans les conditions opératoires du lysimètre, à savoir à un taux de saturation faible, proche de celui rencontré sur le terrain, les HAP sont très fortement retenus dans le sol. Les concentrations en HAP dans l'eau du sol sont donc faibles – majoritairement inférieures à 1 $\mu\text{g/L}$. Néanmoins, la quantité d'eau qui a percolé en fond de lysimètre sur les 15 mois de suivi correspond à la moitié du volume poreux de celui-ci. Or, les expériences conduites au laboratoire sur des systèmes de petites dimensions s'intéressent en général au relargage des contaminants en faisant passer une dizaine de volumes poreux dans la colonne. C'est pourquoi une étude du système lysimétrique sur une plus longue durée, engendrant des volumes plus importants serait pertinente, afin de confirmer à long terme les tendances observées ici. Ceci permettra de mettre en évidence les phénomènes responsables de la mobilité des contaminants organiques dans les sols non saturés. Par ailleurs, des dispositifs plus légers et permettant de fournir des résultats sur une échelle de temps plus courte sont nécessaires. C'est pourquoi une autre partie du travail a consisté à dimensionner un essai représentatif du lysimètre en grande colonne (diamètre 15 cm,

hauteur 30 cm). Elle était remplie de terre non tamisée et soumise à des épisodes pluvieux. Les concentrations en HAP dans les collectes étaient conformes à ce qui a été observé en lysimètre. Ainsi, il pourrait être envisagé de s'intéresser plus particulièrement à l'influence du taux de saturation sur le relargage des HAP, par exemple à l'aide d'expériences de lixiviation des polluants à des teneurs en eau fixées.

ABSTRACT

In industrialized countries, numerous brownfields polluted with polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) and heavy metals are identified. Some of these pollutants are carcinogenic and mutagenic. Their migration through the soil and their likely downward transfer to the water table should be investigated. Field scale studies are essential to determine the possible impacts on groundwater, human beings and ecosystems. The aim of this PhD work carried out in the frame of the GISFI (French Scientific Interest Group working on Industrial Brownfields) was to assess PAH transport in a former coking plant soil using an original lysimetric system. The lysimeter was filled with 3 tons of a polluted soil (PAH: 5 g/kg). It was a stainless steel column (2 m high, 1.124 m diameter) equipped with tensiometers, TDR probes and suction cups at three depths (50, 100 and 150 cm). Therefore water was sampled at four levels: 50, 100, 150 and 200 cm (free drainage water at the bottom of the lysimeter). It was submitted to the natural atmospheric conditions and its surface was bare. The 16 US EPA PAHs were monitored in pore water (3 levels) and in the leaching water, at the outlet of the lysimeter. PAH concentrations in water were very low (below 1.5 $\mu\text{g/L}$) in the four sampling levels. They were below or in the range of the solubility. This study showed that PAH release was highly dependent on the water content of the soil.