

ÉTUDE COMPARATIVE DE LA FAISABILITÉ DE BIOTRAITEMENTS DES SOLS POLLUÉS PAR DES PRODUITS PÉTROLIERS

Diana Juc*, Jean Carré**, Jean-Marie Blanchard***

*Institut des sols de Moldavie (Moldavie), **Laboratoire d'application de la chimie à l'environnement,

***Laboratoire d'analyse environnementale des systèmes et procédés industriels

Cette étude comparative de la faisabilité de biotraitement a porté sur les sols de deux dépôts pétroliers moldaves. Après une détermination des caractéristiques des sols à traiter, l'étude a été effectuée avec cinq réacteurs de laboratoire en appliquant des méthodes adaptées, mais différentes. Le suivi des processus est développé et un bilan comparatif sur l'efficacité du traitement est fait.

Nous avons étudié les possibilités de bioremédiation de ces deux dépôts de produits pétroliers moldaves: le site de Vatra étant principalement pollué par de l'essence et du gazole et le site désaffecté d'Orhei par des huiles minérales.

This comparative study of the feasibility of biotreatments is focused on the soils of two moldavian oil deposits. After the determination of soil characteristics to be processed, the study has been undertaken with five laboratory scale reactors by applying adapted different methods. The continuation of the process is developed and a comparative statement on the efficiency of the process is done.

We have studied possibilities of bioremediation of two moldavian oil deposits: the site of Vatra is polluted with gasoline and diesel oil and Orhei disused site is polluted by mineral oils.

La biodécontamination prend aujourd'hui de plus en plus d'importance [1, 2] par rapport aux techniques physico-chimiques. Ainsi, aux USA, son développement technologique est maximum et elle représente la seconde méthode utilisée (après les techniques de venting) en alternative aux solutions « classiques » de confinement et d'incinération, pour le traitement des produits organiques volatils et semivolatils [3].

Le choix d'une filière de décontamination fait intervenir de nombreux facteurs [3, 4]:

- ceux corrélés à des critères techniques;
- les contraintes économiques.

Une démarche en 5 phases pour une sélection d'un procédé de réhabilitation est proposée par le BRGM [5]. Mais, quelle que soit l'approche, il est impératif d'effectuer:

- une étude préalable du site,

- une étude de laboratoire sur la validité des principes retenus,
- une étude de laboratoire de faisabilité de la ou (des) technique(s) retenue(s) (réacteurs, pilotes de laboratoire), ainsi que de procédé(s) sélectionné(s) pour la réhabilitation du site concerné.

Nous avons eu comme priorité dans notre étude de définir la solution optimale de réhabilitation des sites pollués par des produits pétroliers, en choisissant la voie biologique, solution la plus adaptée aux critères économiques de la Moldavie.

CHARGEMENT DES RÉACTEURS ET PARAMÈTRES DE FONCTIONNEMENT

Pour effectuer les essais comparatifs de bioremédiation des sols de ces deux sites nous avons utilisé des récipients en polycarbonate ($V_{max} = 10$ L) en les adaptant aux conditions opératoires. Les paramètres correspondants ont été établis d'après une étude bibliographique complète sur les plus récentes applications et intégrant bien évidemment les caractéristiques des sols à traiter.

Nous avons essayé d'imiter au maximum les conditions d'un sol réel (fig. 1) et de faire varier d'un pilote à l'autre les conditions opératoires (tableaux 3 et 4) afin d'obtenir des renseignements précis sur le déroulement des biotraitement et les difficultés rencontrées.

L'absence de données sur les sols des deux sites, nous a conduit à déterminer avant chargement des réacteurs un certain nombre de paramètres concernant ces deux sols dans leur état pollué, car les traitements s'appliquent dans cet état: – perméabilité: $6 \cdot 10^{-5}$ m.s⁻¹ pour le sol de Vatra et de $8,1 \cdot 10^{-3}$ m.s⁻¹ pour celui d'Orhei

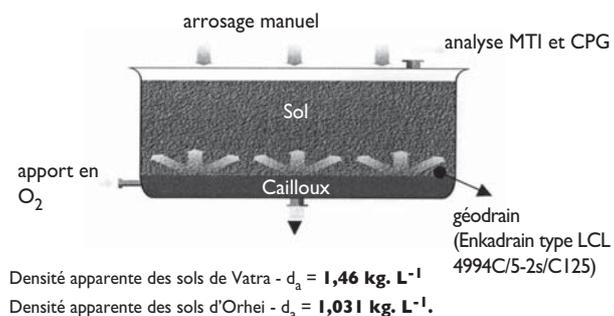


Figure 1 : Schéma du fonctionnement du bioréacteur

Tableau 1 : Résultats d'analyses microbiologiques des sol

Échantillon	Nombre bactéries aérobies à 30 °C (72 h) par gramme sol	Identification de la souche la plus développée
Sol Vatra profondeur: (0-50 cm)	860 000	Bacillus lentus
(50-160 cm)	73 000	Bacillus megaterium
Sol Orhei profondeur: (0-50 cm)	1 080 000	Citrobacter diversus/Amalanicus
(50-160 cm)	63 000	Bacillus cereus

– granulométrie: 82,8 % de particules fines pour Vatra et 72,1 % pour Orhei.

Ces valeurs confirment l'observation visuelle d'une terre alluvionnaire et fine. Elle sera donc utilisée telle quelle sans séparation granulométrique pour être le plus proche possible d'une application sur site.

Avant de charger les réacteurs nous avons simplement homogénéisé le sol provenant des divers points de forage et nous avons prélevé un échantillon du sol de chaque réacteur pour l'analyse des produits pétroliers lors du démarrage du biotraitement. Nous avons compacté par la suite le sol dans les réacteurs (afin de simuler les conditions naturelles des sols), en appliquant une charge de 15 g. cm⁻² sur des couches successives de chargement de sol d'environ 3 cm d'épaisseur, et nous avons déterminé la densité apparente (d_a) du sol dans chaque réacteur.

Analyses chromatographiques

Le dosage de l'essence dans le sol (avant et pendant traitement) a été effectué à l'aide d'un microchromatographe MTI P200H équipé d'une colonne microbore OVI (8 mètres de long, 0,1 mm de diamètre et 1 µ m d'épaisseur de phase stationnaire) par désorption thermique à 100 °C des polluants légers présents dans le sol, la majorité des composants du gazole et à fortiori de l'huile restant dans le sol dans des conditions opératoires déjà définies [6].

Le dosage du gazole et de l'huile (avant et pendant traitement) a été effectué par chromatographie en phase gazeuse après extraction avec des conditions opératoires déjà décrites [7]. Les résultats sont reportés ci-après (figures 2 à 4) avec l'évolution des concentrations en polluants au cours des traitements.

Teneur en azote, phosphore et matière organique

De même, les analyses des teneurs en azote (selon la norme NF ISO [8]), phosphore (méthode Joret-Hébert, selon la norme Afnor [9]) et matière organique (selon la norme NF

Tableau 2 : Teneur en matières organiques des sols

Sol site	N %	P %	COT %	Résidu sec %
Vatra	0,09	0,036	1,81	85,24
Orhei	0,07	0,030	4,76	82,83

ISO [10]) ont été effectuées préalablement à la mise en route des réacteurs.

Nous constatons d'après les résultats obtenus avec les techniques disponibles que les éléments déficitaires de ces sols, par rapport aux données bibliographiques [11] relatives à la composition élémentaire optimale pour le développement bactérien, sont l'azote et le phosphore. Il faudra donc prendre en compte pour nos essais ce déficit en azote et phosphore.

Analyses microbiologiques

Toutes les mesures (avant et après traitement) ont été effectuées en prestation de service au Laboratoire santé environnement hygiène de Lyon (LSEHL, 321, avenue Jean Jaurès, 69007 Lyon), car ceci n'est pas notre domaine de compétences qui est plutôt le diagnostic des pollutions, la mise en œuvre et le suivi des retraitements.

Nous avons constaté une décroissance du nombre des bactéries avec la profondeur ce qui est tout à fait logique et nous prendrons cette remarque en considération lors de la mise au point des méthodes de biotraitement.

Le tableau 3 résume les conditions opératoires définies pour chaque réacteur.

L'eau de percolation est retirée régulièrement en utilisant un bouchon de vidange. L'étanchéité entre le corps du réacteur et son couvercle est assurée par serrage mécanique sur une plaque de caoutchouc.

De ce fait, il existe seulement une arrivée d'oxygène à la base du réacteur et un départ des gaz issus du sol à la partie supérieure, ce qui permet l'éventuelle détection par microchromatographie (voir ci-dessus) des polluants présents dans l'oxygène sortant des pilotes.

Tableau 3 : Paramètres des techniques de biotraitement

n° Vsol réacteur	Sol/site	Conditions opératoires	(L)
R2	Vatra	Aération (O ₂), ajout du fumier (m=0,935kg) pour 7,645kg de terre, arrosage eau permutée	8.5
R3	Vatra	Aération (O ₂), ajout des souches bactériennes Arrosage solution nutritive	8.5
R4	Vatra	Aération (O ₂), arrosage solution nutritive	8.5
R5	Orhei	Aération (O ₂), ajout des souches bactériennes Arrosage solution nutritive	7
R6	Orhei	Arrosage solution nutritive + tensio-actif	6.5

Conditions opératoires pendant le processus de biotraitement

Nous avons placé tous les réacteurs dans une chambre thermostatée à environ 29 °C, température optimale pour l'activité des bactéries d'après les données bibliographiques. Ceci, en plus correspond bien aux conditions climatiques en Moldavie avec un hiver rude, mais court, et un été long (d'avril à octobre) et chaud.

Nous avons appliqué un bioventing des sols avec de l'oxygène pur pour tous les réacteurs (R6 - jusqu'au 39^e jour,

Tableau 4 : Interventions au cours du processus des biotraitement des sols

Jours	R2	R3	R4	R5	R6
1	*	***	**	***	****
	300 cm ³	300 cm ³	300 cm ³	300 cm ³	300 cm ³
3	*	*	*	*	*
4	*	**	**	**	****
6	*	**	**	**	****
10	*	**	**	**	****
16	*	***	**	***	****
20	* 200 cm ³ *****	** 200 cm ³ *****	** 200 cm ³ *****	** 200 cm ³ *****	**** 200 cm ³
31	*	***	**	***	****
38	arrêt	-	-	-	-
39	-	*** 200 cm ³	** 200 cm ³	*** 200 cm ³	**** 200 cm ³ double conc. *****
48	-	arrêt	-	-	-
52	-	-	**	** 300 cm ³ mélange terre	**** mélange terre
59	-	-	arrêt	arrêt	enlev. couvercle
64	-	-	-	-	remise couvercle
67	-	-	-	-	**** 200 cm ³
73	-	-	-	-	**** 200 cm ³
77	-	-	-	-	arrêt

tableau 4) au débit initial de 0,37 mL. s⁻¹, avec une augmentation au 20^e jour du traitement à 1,9 mL.s⁻¹.

L'absence de composés volatils dans la phase gazeuse au dessus des réacteurs a été vérifiée régulièrement par analyse microchromatographique (voir ci-dessus).

Avant de présenter les résultats du fonctionnement de chaque réacteur nous avons regroupé dans le tableau 4 les interventions faites tout au long du processus de biotraitement des sols.

Un réacteur témoin, appelé R1, avec une pollution par l'essence (produit le plus facilement dégradé) a été suivi en parallèle sans aucun traitement. Nous n'avons pas noté de variation du taux de pollution dans la durée de l'étude.

Remarques sur le tableau 4:

* - addition d'eau permutée

** - addition de solution nutritive (SN)

*** - addition de (SN) et souches bactériennes (SB), fournies par VitoBio (données non communiquées)

**** - addition de (SN) et tensio-actif (concentration initiale = 29 mg.L⁻¹)

***** - changement du débit d'oxygène (ou mise sous oxygène pour R6).

La solution nutritive a la composition suivante (pour 1L d'eau permutée):

1,2 g NH₄Cl; 0,84 g K₂HPO₄; 0,168 g KH₂PO₄;
0,04 g MgSO₄, 7H₂O; 0,06 g CaCl₂, 2H₂O;
0,02 g MnSO₄, H₂O; 0,02 g FeSO₄, 7H₂O.

Nous avons ajouté pour le bioréacteur R6 de la SN (même composition) avec un surfactant, afin de pouvoir désorber l'huile du sol. Le surfactant choisi est le Rhodasurf ID 070, dont la formule moyenne est C_xH_{2x+1}O (CH₂CH₂O)_yH.

DISCUSSION

L'efficacité des traitements est définie ci-après par le rendement de la dépollution. Une incertitude maximale de 5 % sur les valeurs données est due essentiellement à une répartition hétérogène des polluants au sein du réacteur.

Bioréacteur R2

Nous avons mélangé l'échantillon du sol avec du fumier, en respectant bien évidemment les normes d'utilisation des engrais naturels. Nous avons choisi cette technique de bioremédiation pour plusieurs raisons: échantillon de terre de la couche superficielle du sol, donc riche en bactéries et mélange fait facilement *in situ*. En considérant l'apport en nutriments significatif nous avons arrosé le sol avec de l'eau permutée (tableau 3 et 4). Lors du processus de biotraitement la flore microbienne s'est bien développée (avant l'arrêt du réacteur nous avons détecté 3,8 · 10⁷ bactéries par g de terre par rapport à la teneur initiale: 8,6 · 10⁵ bac. g⁻¹). La dégradation des polluants s'est révélée quasiment linéaire les 20 premiers jours, avec une amélioration du processus après l'augmentation du débit d'oxygène. La biodégradation totale (rendement 100 %) de l'essence (vitesse moyenne de 0,007 mg. g⁻¹. jour⁻¹) a duré 26 jours (Fig. 2). Il faut également signaler qu'il s'agissait de quantités modestes de polluant, et d'une pollution ancienne, donc plus difficile à dégrader.

Le gazole avec une concentration initiale de 29,7 mg. g⁻¹ a été biodégradé pendant 32 jours (Fig. 3), avec une vitesse de 0,93 mg. g⁻¹. jour⁻¹.

Bioréacteur R3

L'analyse microbiologique du sol à la 33^e journée a détecté une concentration en bactéries de 1,54 · 10⁵ bac. g⁻¹ (par rapport 7,3 · 10⁴ bac. g⁻¹ au début du processus), avec la prédominance de la même bactérie (Bacillus Megaterium). L'essence a été totalement dégradée en 28 jours (vitesse 0,005 mg. g⁻¹. jour⁻¹) et le gazole en 45 jours (vitesse moyenne 1,8 mg. g⁻¹. jour⁻¹).

Bioréacteur R4

La vitesse de dégradation de l'essence pendant les premiers 20 jours était de 0,005 mg. g⁻¹ jour⁻¹ et gazole - 2,2 mg. g⁻¹. jour⁻¹. Une légère stagnation du processus a été remarquée (malgré l'augmentation du débit d'O₂), car il s'agissait de petites quantités de polluants dans le sol. Pour dégrader de 12 mg. g⁻¹ à 7,85 mg. g⁻¹ du gazole il a fallu 33 jours, tandis que pour dégrader de 65,2 mg. g⁻¹ à 12,0 mg. g⁻¹ nous avons passé 12 jours. Les analyses microbiologiques du sol au bout de 33 jours ont montré un bon développement de la flore microbienne (3,2 · 10⁶ bac. g⁻¹ sol).

Bioréacteur R5

Un bon déroulement du processus de biodégradation de l'huile a été observé les 26 premiers jours (vitesse 0,6 mg. g⁻¹. jour⁻¹). Mais ensuite, nous avons eu le même phénomène d'adaptation des micro-organismes aux faibles concen-

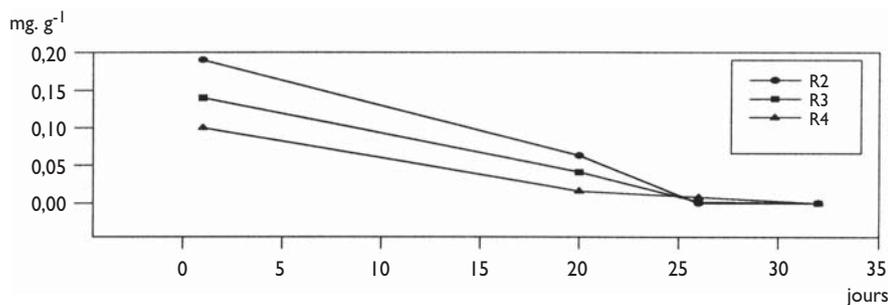


Figure 2 : Biodégradation d'essence

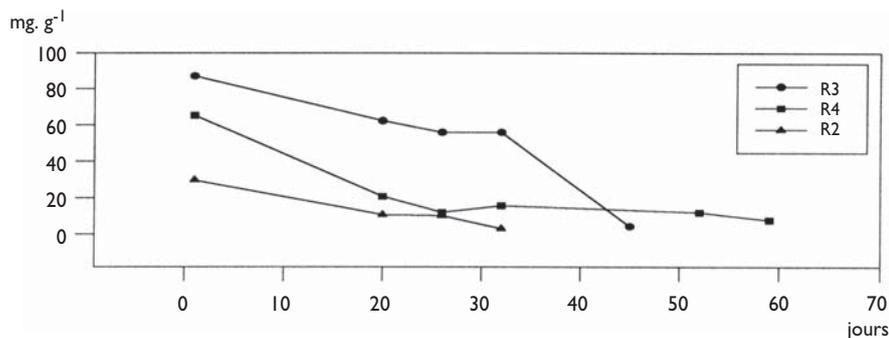


Figure 3 : Biodégradation de gazole

trations (3,5 mg.g⁻¹) du polluant. Pour arriver à dégrader jus-

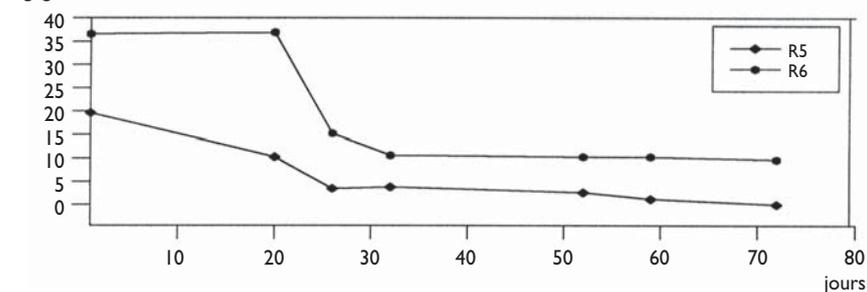


Figure 4 : Biodégradation d'huile

qu'à 1,2 mg.g⁻¹ nous avons attendu 33 jours. L'augmentation du débit d'O₂ n'a pas amélioré d'une façon évidente le fonctionnement du réacteur. En ce qui concerne la flore microbienne, nous avons remarqué une augmentation de $6,3 \cdot 10^5$ à $6,9 \cdot 10^6$ bac.g⁻¹ du sol, mais avec un changement d'espèce prédominante de bactérie aérobie (*Klebsiella Pneumoniae*).

Bioréacteur R6

Une baisse de la teneur en huile a été détectée après 10 jours. Mais nous n'avons pas pu dégrader l'huile en dessous de 9,7 mg.g⁻¹, malgré un apport d'oxygène au 39^e jour, doublement de la concentration du surfactant et mélange (homogénéisation) du sol le 59^e jour. Le développement de la flore microbienne dans ce réacteur était le plus faible de l'ensemble des réacteurs (concentration initiale: $1,0^8 \cdot 10^6$ bac.g⁻¹, concentration finale: $1,5 \cdot 10^6$ bac.g⁻¹). Nous avons arrêté le processus, car nous dépassions les délais prévus initialement pour le traitement.

CONCLUSION

Pour comparer l'efficacité des méthodes de biotraitement appliquées nous présentons ci-après l'ensemble des graphiques de biodégradation de polluants (figures 2 à 4).

En ce qui concerne les trois méthodes appliquées sur le sol du site de Vatra, nous avons trouvé que la meilleure technique pour dégrader l'essence est l'ajout de fumier (R2). C'est un additif nutritif naturel, riche en micro-organismes et très efficace. Le rendement du processus est de l'ordre de 100 %. Un autre avantage de son utilisation est son coût symbolique et la facilité de la mise en place in situ. Il faut d'ailleurs signaler que nous n'avons pas trouvé d'études récentes sur l'application du fumier comme additif aux traitements des sols pollués par des composés pétroliers.

Pour la dégradation du gazole (figure 3), l'ajout de souches bactériennes augmente simplement la quantité de bactéries identiques déjà présentes dans le sol. Ceci explique la valeur élevée du rendement obtenu (95 %), mais la méthode reste coûteuse, avec plus de contraintes de mise en œuvre.

En ce qui concerne les deux autres sols (R5 et R6) pollués par de l'huile, la technique utilisée dans R6 sera difficilement applicable in situ, mais

tenant compte qu'une infime partie du site est à traiter, cette contrainte ne nous gêne pas. Il faudra appliquer une aération biologique et effectuer périodiquement le mélange de la terre, avec ou sans apport en bactéries ou d'autres nutriments naturels.

L'ajout des souches bactériennes dans R5 a donné des résultats très positifs (rendement 94 %, valeur significativement plus élevée que celle citée dans la littérature). Mais le problème qui reste à résoudre est la dégradation des petites quantités: ceci nécessite des investigations supplémentaires, que nous n'avons pas pu effectuer dans le cadre de ce travail.

Si on prend en compte les critères économiques, le traitement dans un pays ayant des difficultés est réservé à une pollution surfacique, faisant appel à des techniques agricoles, à priori disponibles dans les anciennes fermes collectives. Le fumier étant également disponible, le coût d'un traitement en andains est voisin de celui d'une remise en culture. Il est impossible d'être plus précis, les coûts étant très difficiles à comparer entre un pays « ex URSS » et la France. Mais il est important de montrer dans ce contexte économiquement

difficile qu'un traitement est possible même si son action est limitée à une couche superficielle du sol.

***Diana Juc**

Ingénieur, Chargé mission Europe - Institut des sols de Moldavie - 100, str. Ialoveni - 2070 Chisinau, Moldavie

****Jean Carré**

Maître des Conférences, Laboratoire d'application de la chimie à l'environnement - UMR CNRS 5634 - Université Claude Bernard Lyon I - 43, Bd. du 11 novembre 1918 - 69622 Villeurbanne Cedex, France

*****Jean-Marie Blanchard**

Professeur, Laboratoire d'analyse environnementale des systèmes et procédés industriels - Institut national des sciences appliquées de Lyon, 20 Av. A. Einstein - 69621 Villeurbanne Cedex, France

Références

[1] Hincsee R., Arthur M. *Bench scale studies of the soil aeration process for bioremediation of petroleum hydrocarbons through soil venting*. Journal of Hazardous Materials, 1991, 27, 315-325.

[2] Kremer F. V., Dean N. *Progress in the field applications of bioremediation*. In: Bioremediation of Hazardous Wastes/Rapport EPA, 1994, 23 p.

[3] Lecompte P. *Les sites pollués : traitement des sols et des eaux souterraines*. Paris : Lavoisier, 1995, 187p.

[4] Kostecki P. T., Calabrese E. J. *Contaminated soils : diesel fuel contamination*. Michigan : Lewis Publishers, 1992, 20p.

[5] *Le traitement des anciens sites industriels pollués*. Conférence 311 / Établissement Public Foncier. Pas de Calais, 1994.

[6] Juc D., Thèse Lyon

[7] Juc D., Carré J., Blanchard J. M., Andries S. *Étude de la pollution des sols moldaves par des hydrocarbures : prélèvement, extraction et analyses du sol du dépôt d'huile d'Orhei*. Déchets, Sciences et Techniques, N°8, p 20-22, 1997

[8] Norme AFNOR NF ISO 11 261, juin 1995

[9] Norme AFNOR NF X31-161, juillet 1993

[10] Norme AFNOR NF ISO 10 694, juin 1995

[11] Berg M., Loehr R. C., Webster M. *Bioavailability of organic chemicals in field soils*. In: *In Situ and On - Site Bioremediation/papers from Fourth International Symposium*, Orleans, 1997. - vol. 5, 603-605.

MANUEL DU MANAGEMENT ENVIRONNEMENTAL

Michel Jonquières

Sommaire des tomes 1et 2

L'usage de la norme ISO 14001 est indispensable à tout organisme qui souhaite pérenniser ses activités et conserver ses parts de marché. Proposé par un des pères de la norme ISO 14001, le Manuel du Management Environnemental (MaME) est l'outil de référence de sa mise en œuvre, nourri de l'expérience permanente de son auteur.

Tome 1 :

- Le management environnemental
- La mise en œuvre d'un système de management environnemental selon la norme ISO 14001

Tome 2 :

- Améliorations et développements autour de la norme ISO 14001
- Les évolutions
- Et si vous alliez plus loin ?

Formats : 155 x 240 – **Tome 1** : 240 pages, 47,72 € TTC Franco de port (310 F) – **Tome 2** : 184 pages, 32,01€ TTC Franco (210 F) – **Tomes 1 et 2** : 72,41 € TTC Franco (475 F)

Bon de commande

A retourner à **Société Alpine de Publications**, 7 chemin de Gordes
38100 Grenoble - Tél. : 04 76 43 28 64 - Fax : 04 76 56 94 09
avec votre règlement

Je soussigné : _____

Entreprise : _____

Adresse : _____

Code postal : _____ Ville : _____

Je déclare passer commande de exemplaire(s) des tomes 1 et 2 ou du tome 1 , ou du tome 2 du *Manuel du Management Environnemental* au(x) prix indiqué(s) en Euros ou Francs dans l'encadré ci contre, à rajouter manuscritement ici :

Règlement à la commande par chèque ci-joint

Je désire une facture en retour en exemplaire(s).

Signature : _____

BRÉVIAIRE DE L'INSTALLATION CLASSÉE

Cabinet Murat - **Entreprise Environnement Consultants** - Roger Pellegrini
Préface de Philippe Vesseron

SOMMAIRE de l'ouvrage

La deuxième édition de cet ouvrage développe l'approche pratique et opérationnelle qui a fait le succès de la première. Conçu à partir de l'expérience quotidienne de praticiens rompus à l'utilisation des nomenclatures ICPE, eau, déchets, et de l'arrêté du 2 février 1998 lors de la constitution de dossiers d'installations classées cet ouvrage éclaire et rend accessible à ceux qui en ont un besoin professionnel une réglementation caractérisée par sa complexité et sa grande précision. Les auteurs répondent à la nécessité de comprendre, intégrer et utiliser sans faute ou omission les textes réglementaires dont ils proposent sous une forme originale et structurée une lecture claire et enrichie.

1 : La nomenclature des installations classées

2 : L'arrêté du 3 février 1998

3 : La nomenclature déchets

4 : La nomenclature eau

Format : 152 x 240 – 224 pages – 47,72 € TTC franco de port, (313 F)

Bon de commande

A retourner à **Société Alpine de Publications**, 7 chemin de Gordes
38100 Grenoble - Tél. : 04 76 43 28 64 - Fax : 04 76 56 94 09
avec votre règlement

Je soussigné : _____

Entreprise : _____

Adresse : _____

Code postal : _____ Ville : _____

Je déclare passer commande de exemplaire(s) du *Bréviaire de l'installation classée* au prix unitaire de 313 FTTC, franco de port, soit 47,72 €. Règlement à la commande par chèque ci-joint

Je désire une facture en retour en exemplaire(s).

Signature : _____