

MINISTÈRE DE LA QUALITÉ DE LA VIE - ENVIRONNEMENT

(Contrat n° 75-36)

DEVENIR DES HYDROCARBURES DANS LES SOLS

par

P. DEGRANGES, T. GUGALSKI, M. LELEU, J. GREFFARD



BUREAU DE RECHERCHES GÉOLOGIQUES ET MINIÈRES

SERVICE GÉOLOGIQUE NATIONAL

Département Minéralogie, Géochimie, Analyses

B.P. 6009 - 45018 Orléans Cédex - Tél.: (38) 63.00.12

77 SGN 114 MGA

Février 1977

devenir n° 114

SOMMAIRE

	<u>Pages</u>
RESUME	1
INTRODUCTION	1
1 - MOYENS ET METHODES UTILISEES	2
1.1 - Description du site expérimental	2
1.2 - Produit utilisé	6
1.3 - Méthodologie	7
2 - RESULTATS	9
2.1 - Percolation de l'huile	9
2.2 - Biodégradation de l'huile	9
2.3 - Percolation de l'eau et taux d'humidité	12
2.4 - Eléments majeurs.....	13
2.5 - Eléments traces	21
2.6 - Analyses microbiologiques	22
CONCLUSIONS	

RESUME

Pour suivre la biodégradation et l'infiltration d'huile de vidange dans un sol, nous avons simulé une pollution sauvage par déversement d'huiles usées sur un terrain expérimental sans apporter de modification aux processus naturels d'évolution. La variation de différents paramètres physiques, chimiques et microbiologiques a été suivie périodiquement sur une période de 18 mois.

En ce qui concerne la pénétration de l'huile dans le sol, on constate qu'elle est rapide dans une zone superficielle correspondant sensiblement à l'épaisseur de terre végétale, puis qu'elle stagne dans cette zone pendant toute la durée de l'expérimentation.

La présence d'huile semble gêner les mouvements de l'eau puisqu'on relève dans la couche polluée une teneur en eau plus importante que dans un sol non pollué.

Les métaux lourds prédominants apportés par l'huile de vidange (Pb, Zn, Cu) sont fixés dans la couche superficielle du sol (0-20 cm) ; il semble probable que ces éléments sont remobilisables dans le milieu, ainsi que cela apparaît pour le cuivre.

Bien que la biodégradation soit assez faible dans ces conditions expérimentales, on constate, du point de vue microbiologique, une augmentation très forte des bactéries aérobies après deux mois d'épandage, l'inhibition des actinomycètes, la multiplication des germes ammonifiants, ainsi qu'un accroissement très important des germes adaptés aux hydrocarbures trois semaines après le déversement des huiles usées.

DEVENIR DES HYDROCARBURES DANS LES SOLS

INTRODUCTION

L'objet des travaux du B.R.G.M., tel qu'il a été défini dans la Convention de recherches passée avec le Ministère de la Qualité de la Vie, est d'étudier le devenir des hydrocarbures dans un sol et les conséquences qui peuvent en découler :

- sur le sol lui-même : modifications physiques et chimiques ;
- sur l'équilibre écologique microbien.

Ce type de contaminations semble souvent négligeable ou passe inaperçu par rapport à celles qui peuvent se produire en mer à cause de leur aspect souvent spectaculaire et de la quantité répandue localement (accidents du Torrey Canon).

Cependant, on ne peut ignorer par exemple, en France que sur 1 million de tonnes d'huile lubrifiante utilisées annuellement dans l'industrie automobile, seules 30 000 tonnes sont régénérées et 30 000 tonnes incinérées. Près de 900 000 tonnes font donc l'objet de rejets clandestins dans les cours d'eau ou d'épandages sur les sols.

C'est donc cet aspect "épandage sauvage" qui a constitué l'objectif de notre proposition et nous nous sommes efforcés d'en respecter les conditions et d'observer les phénomènes, de suivre leur évolution dans ces conditions "naturelles" au niveau des différents horizons du sol et leur infiltration dans la zone non saturée.

Nous avons donc suivi sur une période de 15 mois de nombreux paramètres physiques et chimiques ainsi que l'activité microbiologique, et cela sans modifier les conditions naturelles, soit par retournement du sol, soit par apport d'éléments nutritifs.

1 - MOYENS ET METHODES UTILISEES

1.1 - Description du site expérimental

Le terrain expérimental retenu est situé dans l'enceinte du Service géologique à Orléans-la-Source. Le sol est sableux avec lit de galets et graviers jusqu'à 10 m environ. A ce niveau, on trouve une couche d'argile jaune plastique gorgée d'eau. Sous l'argile se trouve le calcaire de Beauce.

Le log détaillé d'un sondage est le suivant :

- . 0 - 22 cm : terre végétale sablo-argileuse noire ;
- . 22 - 32 cm : terre végétale sablo-argileuse noire avec quelques cailloux ;
- . 32 - 52 cm : sable grossier avec graviers et petits cailloux ;
- . 52 - 77 cm : sable très grossier avec graviers et petits galets ;
- . 77 -120 cm : graviers avec peu de sable très grossier et petits cailloux ;
- . 120 -138 cm : sable moyen beige légèrement argileux, quelques rares cailloux ;
- . 138 -162 cm : sable moyen ocre argileux.

La figure 1 synthétise les résultats de ce log.

Les résultats des analyses granulométriques peuvent être résumés dans le tableau suivant, où l'on a exprimé le pourcentage des particules de diamètre supérieur à 0,25 mm (maille ronde) et le pourcentage de particules de diamètre supérieur à 2,5 mm.

Profondeur	$\phi > 0,25$ mm	$\phi > 2,5$ mm
0 - 20 cm	75 %	17,5 %
20 - 40 cm	72 %	20,5 %
40 - 60 cm	76 %	27,5 %
60 - 80 cm	83 %	24 %
80 - 100 cm	86,3 %	51,4 %
100 - 120 cm	76 %	31 %
120 - 140 cm	76,9 %	15,7 %
140 - 160 cm	72,4 %	15,1 %

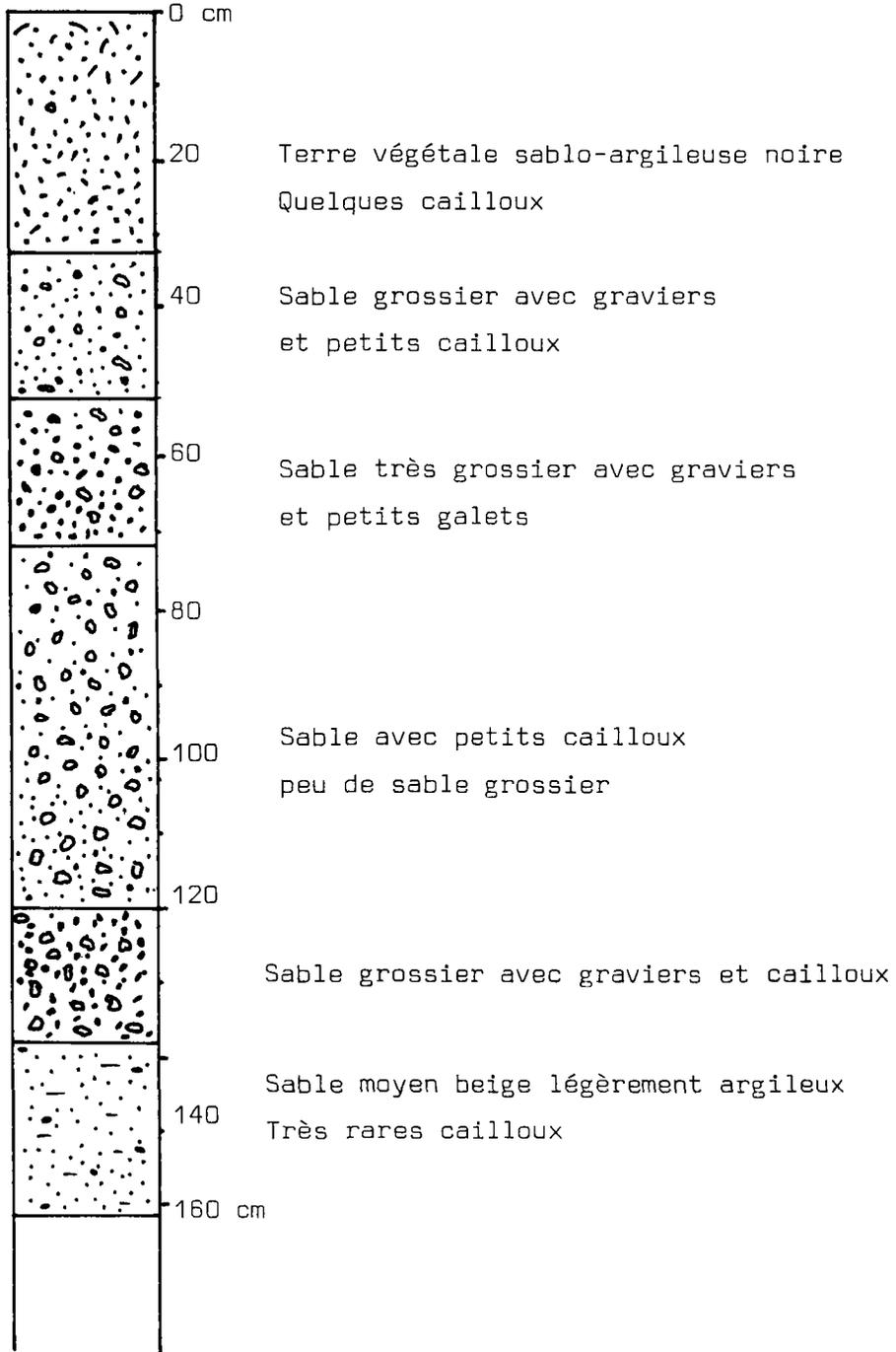


Figure 1 - Log de sondage

Profondeur (cm)	SiO ₂	C organique	Fe ₂ O ₃	TiO ₂	Na ₂ O	K ₂ O	P ₂ O ₅	S	CaO	N total
	%	%	%	%	%	%	%	%	%	%
- 0	86,40	0,92	0,76	0,27	0,61	3,10	0,06	0,012	0,15	0,05
- 10	87,00	0,50	0,68	0,24	0,57	3,05	0,05	0,010	0,08	0,017
- 20	87,40	0,27	0,77	0,28	0,60	3,12	0,05	0,006	0,11	< 0,01
- 40										

Profondeur (cm)	Zn	Pb	Co	Ni	Mn	Ba	Mo	W
	ppm	ppm	ppm	ppm	ppm	ppm	ppm	ppm
- 0	48	105	< 10	34	223	540	< 5	< 4
- 10	18	40	< 10	42	213	530	< 5	< 4
- 20	19	30	< 10	22	227	540	< 5	< 4
- 30	13	25	< 10	24	196	570	< 5	< 4
- 40	13	30	< 10	34	166	570	< 5	< 4
- 50								

Tableau 1 - Composition chimique du sol

✶ ✶ ✶ ✶ ✶

	Pb	Zn	Cu	Ni	Cr	Fe	Mn	Mo	Co	W	Ba
Fraction > 22 μ (ppm)	1680	269	11	1	10	252	-	-	-	-	-
Teneur globale (ppm)	2100	720	36	< 1	12	260	3	< 1	< 1	< 4	13

Tableau 2 - Composition de l'huile de vidange (ppm)

Une analyse minéralogique a été effectuée sur deux échantillons du profil. Elle a mis en évidence que les échantillons sont constitués essentiellement de quartz et de feldspath, les teneurs en quartz étant de l'ordre de 60 % - et d'une très faible fraction argileuse, laquelle est composée de kaolinite et d'illite.

La composition chimique du sol est donnée dans le tableau 1.

1.2 - Produit utilisé

L'huile utilisée nous a été fournie par un garagiste collectant les huiles usées de nombreux garages de la région orléanaise ; il s'agit d'une huile de lubrification de moteurs à essence ou diesel. Sa complexité ne nous permet pas d'en donner une analyse exacte ; on peut cependant considérer qu'elle comprend :

- 70 à 80 % des hydrocarbures stables (et lourds), et des produits de synthèse, de viscosités diverses, qui forment l'huile originale ;
- des produits de décomposition dûs aux grandes températures et pressions agissant sur le moteur : hydrocarbures plus légers, gommages, asphaltes, résidus carbonneux ;
- une partie de carburants et combustibles utilisés dans les moteurs à combustion interne et passant dans le carter, se mélangeant ainsi à l'huile ;
- des produits de décomposition des additifs : composés chlorés, acides organiques, des sels métalliques, de ces sels, phénol, sulfates, sulfites, composés du plomb... ;
- d'autres impuretés telles que particules métalliques, eau libre ou en émulsion, etc..

La présence de métaux lourds, soit à l'état de particules en suspension (usure des pièces mobiles d'un moteur), soit en solution (complexes organo-métalliques ou sels) est particulièrement intéressante car elle permet d'aborder l'étude de leur migration dans les sols, de leur fixation et de leur remobilisation éventuelle.

L'existence de particules en suspension nous a conduit à effectuer une analyse des métaux présents dans le produit initial après filtration du produit initial sur filtre à 0,22 μ ; le tableau 2 donne les résultats obtenus sur la composition du résidu solide par rapport à la teneur globale en métaux. On peut ainsi constater que Pb, Cr et Fe sont en majeure partie des constituants de particules en suspension.

1.3 - Méthodologie

L'expérimentation a débuté le 22 mai 1975 par l'épandage de 375 litres d'huile sur une parcelle de 25 m², soit une concentration de 15 litres au m². Des prélèvements ont été effectués à partir du 11^e jour après l'épandage sur la parcelle polluée et parallèlement sur une parcelle témoin située à quelques mètres de la précédente. Ces prélèvements ont été effectués par carottage, les carottes ayant des hauteurs de 10 ou 20 centimètres ; la profondeur maximale étudiée est de 80 centimètres : elle est croissante au cours de l'étude et déterminée par les résultats de percolation de l'huile. Une moyenne de 10 échantillons pris en différents points de chaque parcelle est prélevée à chaque fois pour les différentes analyses afin de tenir compte de l'hétérogénéité de l'épandage et de disposer de résultats plus significatifs.

L'échantillonnage global est séché 48 heures entre 80°C et 100°C, puis carté et broyé (600 µ).

1.3.1 - Percolation de l'huile

Une fraction aliquote de l'échantillonnage précédent est extraite en soxhlet au tétrachlorure de carbone durant 12 à 24 heures ; le solvant est évaporé et l'extrait sec est évalué par pesée. La même opération est effectuée sur l'échantillonnage témoin afin d'en déterminer l'apport en matière organique soluble au tétrachlorure.

1.3.2 - Analyses chimiques

L'échantillonnage précédent sert également aux analyses chimiques. Celles-ci ont été faites avant et après extraction au tétrachlorure de carbone en soxhlet, afin de suivre la mobilisation éventuelle de certains métaux présents initialement dans l'huile. L'analyse des éléments majeurs est faite par les méthodes chimiques classiques ; celle des métaux est faite par absorption atomique.

1.3.3 - Teneur en eau

Lors de chaque date prévue pour analyse, un échantillon de sol est prélevé aux différentes profondeurs étudiées ; cet échantillon est séché à l'étuve à 105°C durant 48 heures ; la quantité d'eau est déterminée par pesée avant et après étuvage, et ramenée à 100 g de terre sèche.

1.3.4 - Percolation de l'eau

Cette détermination a été faite en dehors du protocole expérimental déterminé précédemment. Sur une parcelle de 1 m² voisine du terrain expérimental ont été déversés 15 litres d'huile de vidange et 2 litres d'eau tritiée ayant une activité de 2 600 UT* environ. Des prélèvements ont été effectués périodiquement sur les tranches 0-23, 23-43 et 43-72 centimètres ; les échantillons ainsi prélevés sont lyophilisés et on analyse l'activité de l'eau recueillie lors de la lyophilisation.

1.3.5 - Analyses microbiologiques

Les effets de l'épandage d'huile usée ont été suivis sur la microflore totale et sur la microflore ammonifiante.

1° Prélèvement des échantillons

Les prélèvements du sol ont été effectués autant que possible en état d'humidité "moyenne" en évitant les périodes de fortes pluies ou de longue sécheresse.

Pour chaque échantillon, nous avons effectué plusieurs prélèvements partiels en des points différents de la parcelle examinée (une dizaine de prises, soit 5 kg environ).

Sur la totalité de l'échantillon recueilli (5 kg), après l'homogénéisation, 300 g environ ont été prélevés pour des analyses microbiologiques.

2° Techniques de microbiologie

Toutes les opérations de dénombrement des organismes constituant la microflore totale bactérienne d'une part, les principaux groupements fonctionnels d'autre part, ont été effectuées par incubation en milieu liquide de suspension-dilution, de sol. Après incubation, le développement des organismes à dénombrement est révélé suivant les cas par un aspect macroscopique ou une réaction chimique simple. La proportion des tubes où il apparaît est notée séparément pour chacun des groupes de tubes ensemencés par la même dilution. Les proportions observés pour les dilution-limites permettent, par référence, à des tables statistiques (Mc CRADY) de calculer le nombre le plus probable des organismes viables par limite de poids de l'échantillon.

* 1 UT = 1 unité tritium = 1 atome de ³H pour 10¹⁸ atomes de H.

2 - RESULTATS

2.1 - Percolation de l'huile

Le tableau 3 rend compte des résultats obtenus aux différentes profondeurs en pourcentage de la quantité totale d'huile récupérée lors de chaque prélèvement. A l'examen de ce tableau, on se rend compte que l'huile pénètre rapidement, puis semble pratiquement arrêtée à partir du 11^e jour dans les conditions expérimentales adoptées : en effet, la majeure partie de la fraction huileuse, soit 97 %, se trouve encore localisée dans les vingt premiers centimètres 15 mois après l'épandage ; il faut noter cependant, les conditions pluviométriques exceptionnelles des six derniers mois de l'expérience (printemps-été 1976).

2.2 - Biodégradation de l'huile

Nous avons fait figurer dans le tableau 4, les quantités pondérales d'huile récupérée lors de chaque prélèvement sur 100 grammes de terre sèche. On constate d'abord l'hétérogénéité relative des résultats malgré la multiplication des prélèvements réalisés pour avoir des résultats représentatifs. Ceci doit donc traduire la difficulté de réaliser "*in situ*" et sur une surface importante une répartition homogène du polluant au départ : nature du terrain, présence de végétation, site d'accumulation préférentiel... (le nombre de prélèvements aurait du être encore plus important pour suivre de façon plus représentative l'évolution du milieu).

Cependant, malgré cette imprécision relative, on n'observe pas de diminution en 15 mois de la quantité d'huile dans le sol. Il ne semble pas qu'il y ait eu une évolution significative des hydrocarbures, et ceux-ci semblent peu biodégradés.

Nous avons traduit ces résultats d'une autre façon en estimant, en fonction de la quantité initiale d'huile au cm^2 , celle récupérée lors de prélèvements. Pour une quantité théorique initiale d'huile de $1,3 \text{ g/cm}^2$ et en fonction de la densité du sol (de l'ordre de 1,6), les quantités d'huile récupérées sur une colonne cylindrique de sol ayant une section de 1 cm^2 peuvent être estimées les suivantes :

11 jours	25 jours	54 jours	117 jours	249 jours	472 jours
1,2 g	1,1 g	1,2 g	1,3 g	1,3 g	1,5g

	11 j	25 j	54 j	117 j	249 j	472 j	
0							0
10	93,2	84,2	81,5	80,5	76,2	78,6	10
20	6,4	15,0	15,4	16,4	21,0	18,2	20
30	0,4	0,8	1,3	1,7	0,5	0,8	30
40			1,1	0,8	0,5	0,5	40
50			0,7	0,7	0,6	0,5	50
60					0,6	0,6	60
70					0,6	0,5	70
80						0,3	80

cm

cm

Tableau 3 - Répartition en pourcentage de l'huile en fonction du temps après épandage

	11 jours	25 jours	54 jours	117 jours	249 jours	472 jours	
0							0
	7,11	5,75	6,03	6,55	6,19	7,52	
10							10
	0,65	1,03	1,14	1,33	1,70	1,80	
20							20
			0,09	0,14	0,04	0,10	
30							30
	0,07	0,05	0,08	0,06	0,04	0,06	
40							40
om	T = 7,83 g	T = 6,83 g					
			T = 7,39 g	T = 8,13 g			
					0,05	0,08	
							50
					0,05	0,06	
							60
					0,05	0,03	
							70
					T = 8,12 g		
							80
						T = 9,71 g	om

Tableau 4 : Quantité d'huile récupérée (en grammes) pour 100 grammes de terre sèche en fonction du temps

Bien que ces résultats ne soient qu'approximatifs, ils vont dans le sens d'une permanence de la phase huileuse dans le sol quinze mois après l'épandage⁽¹⁾.

S'il n'apparaît pas de diminution globale de la phase organique mesurable sur le terrain, celle-ci n'est certainement pas nulle malgré les conditions expérimentales, volontairement peu favorables⁽²⁾, adoptées ; comme semblent le montrer les résultats de l'étude microbiologique réalisée parallèlement.

La complexité d'une huile de vidange ne permet pas d'identifier les fractions sensibles à la biodégradation. Cependant, nous avons tenté d'en mesurer l'action par l'évolution du carbone organique des sols après extraction des hydrocarbures, comme nous le verrons par la suite.

2.3 - Percolation et rétention de l'eau

2.3.1 - Percolation de l'eau

Afin d'évaluer la vitesse de percolation de l'eau dans le type de sol étudié, et donc d'avoir une idée de sa perméabilité, nous avons réalisé une expérience parallèle avec de l'eau tritiée, selon le protocole décrit en 1.3.4. La figure 2 rend compte des résultats obtenus. Il faut noter tout d'abord que dans les conditions où cette expérience a été réalisée, la présence de l'huile ne semble pas perturber la circulation de l'eau.

En effet, l'examen de la figure 2, permet de voir que la migration du tritium (front de progression) atteint la profondeur de 40 cm en 14 jours et a pratiquement disparu au bout d'un mois. On peut donc en déduire que la percolation de l'eau devenue très rapide sur la zone que nous avons contrôlée, même si au niveau du prélèvement ponctuel, on peut supposer que les phénomènes ne sont pas aussi nets.

(1) Les possibilités de biodégradation des huiles de vidange sont faibles. En effet, lors d'expériences menées au laboratoire dans des conditions particulièrement favorables (cultures en erlens avec aération, milieu liquide riche en azote et phosphore, température de 30°C, microflore adaptée) la biodégradation n'atteint que 8 % en trois semaines, temps généralement suffisant pour calculer le taux de biodégradation dans de telles conditions.

(2) Teneur en azote du sol (0-10 cm) 0,05 %
Teneur en P₂O₅ du sol (0-10 cm) 0,05 %

2.3.2 - Teneur en eau

Le tableau 5 donne les pourcentages d'humidité dans la parcelle témoin et la parcelle polluée en fonction du temps et de la profondeur.

On observe l'apparition rapide d'une teneur en eau plus importante dans la parcelle polluée que dans la parcelle témoin.

On peut essayer de préciser les phénomènes observés par les remarques suivantes :

- Pour les trois premiers prélèvements, qui vont de fin mai à mi-juillet, on peut penser qu'une répartition équilibrée de l'huile dans l'espace poreux se réalise lentement : l'huile gêne à la fois la percolation de l'eau et l'évapo-transpiration du sol.

- Par la suite les différences de teneur en eau dans les deux parcelles s'estompent ; un état d'équilibre semble être atteint ; l'on peut penser par exemple, que l'eau s'est créée des chemins préférentiels pour ses mouvements ascendants ou descendants ; il faut cependant tenir compte des conditions climatiques particulières qui ont régné au cours de cette période et en période de pluviométrie normale, l'interprétation pourrait être différente ou plus marquée.

- Après quinze mois, on observe de légères différences dans les couches plus profondes du sol.

On constate donc, que la présence de l'huile dans un sol a une influence sur les mouvements de l'eau dans un sol dans les deux sens.

2.4 - Eléments majeurs

On observe peu de différences de composition chimique entre un sol témoin et un sol pollué par l'huile de vidange, en ce qui concerne les éléments majeurs : l'apport de l'huile en ce qui concerne ces éléments est négligeable devant les teneurs du sol. Le tableau 6 rend compte des résultats obtenus lors du premier prélèvement (11 jours) ; les mêmes analyses effectuées à 24 jours, 54 jours et 117 jours ont montré qu'il n'y a pas de variation significative de ces éléments, si ce n'est naturellement le carbone organique dont nous parlerons ci-dessous. Il faut noter toutefois dans le sol pollué une teneur en soufre légèrement plus importante, dont la provenance peut être attribuée aux hydrocarbures. On remarque également la faible teneur en phosphore du sol même pollué.

Activité Tritium
dûe à la pluie

Activité Tritium
dûe à l'addition d'eau Tritiée

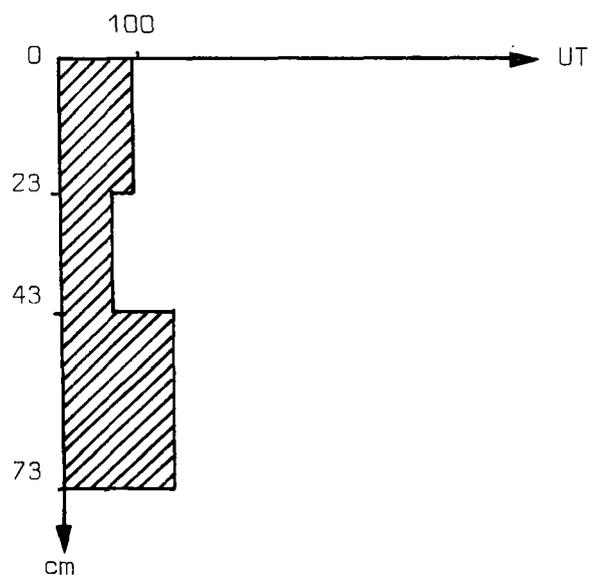
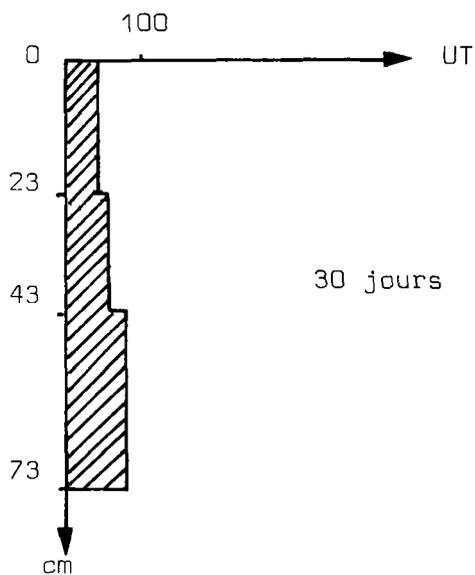
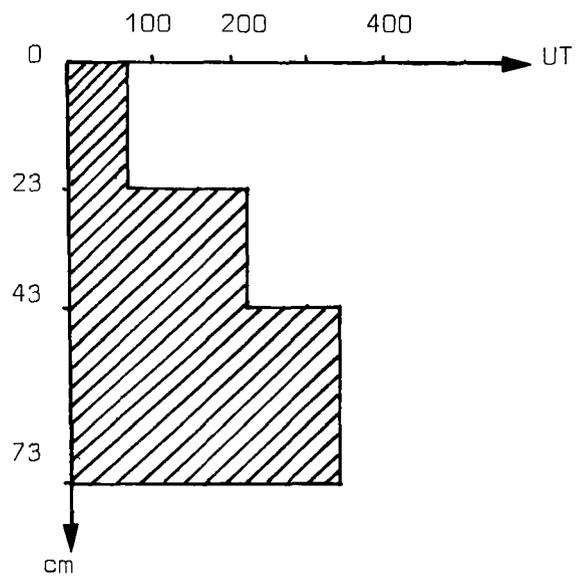
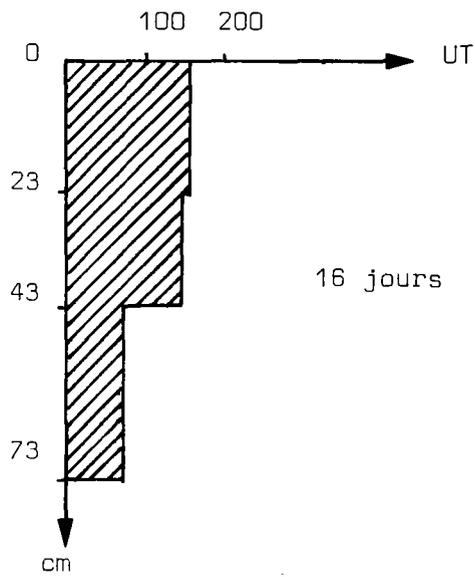
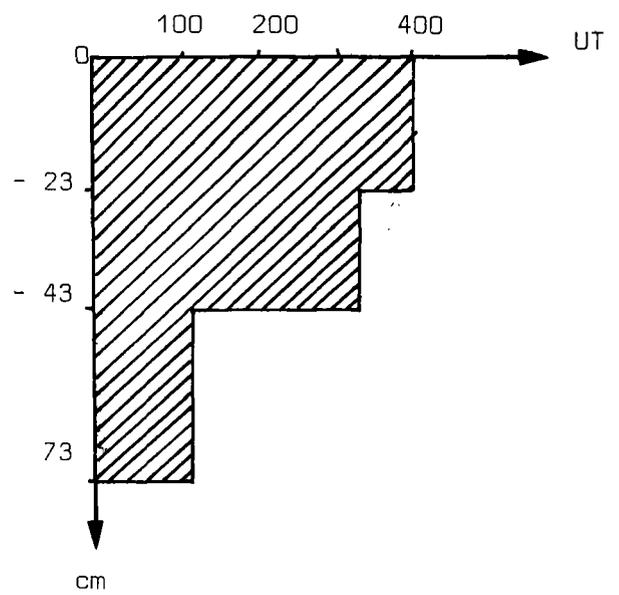
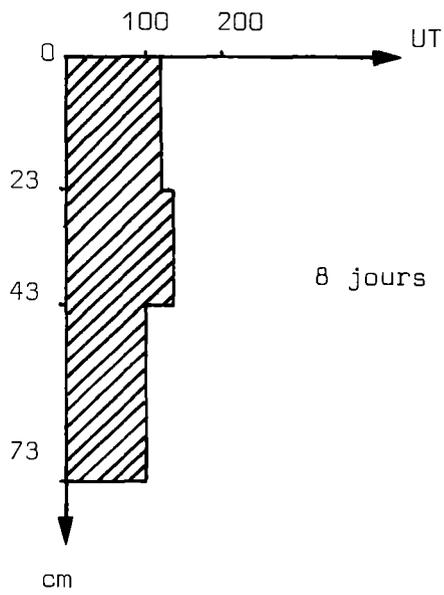


Figure 2 - Vitesse de percolation de l'eau tritiée par mesure de l'activité Tritium

	11 j		25 j		54 j		117 j		249 j		479 j	
	t	p	t	p	t	p	t	p	t	p	t	p
0												
10	4,1	7	4,7	8,5	1,9	4,5	7,4	7,5	8,3	7,8	2,9	2,1
20	5,4	6,9	2,3	7,1	2,7	7,6	6,7	7,2	6,2		5,0	4,5
30	5,3	8,8	2,4	5,4	3,8	5,9	6,8	6,5	6,8	7,1	5,0	5,2
40					4,1	6,5	6,2	6,9	6,4	6,6	4,7	6,8
50					2,8	6,5	6,2	6,2	6	5,2	3,2	6,2

Tableau 5 - Pourcentage d'humidité aux niveaux dans la parcelle témoin et la parcelle polluée

		SiO ₂ %	Fe ₂ O ₃ %	MnO %	CaO %	Na ₂ O %	K ₂ O %	P ₂ O ₅ %	C organique %	S %
0-10 cm	T	86,40	0,76	0,03	0,35	0,61	3,10	0,06	0,92	0,012
	P	77,80	0,78	0,03	0,21	0,62	2,81	0,07	8,82	0,046
10-20 cm	T	87,00	0,68	0,03	0,08	0,57	3,05	0,05	0,50	0,010
	P	83,00	0,71	0,04	0,21	0,61	3,10	0,06	1,80	0,010
20-40 cm	T	87,40	0,77	0,03	0,11	0,60	3,12	0,05	0,27	0,006
	P	84,00	0,81	0,03	0,17	0,72	3,15	0,05	0,48	0,06

Tableau 6 - Teneur en éléments majeurs dans la parcelle témoin (T) et la parcelle polluée (P) lors du premier prélèvement (2 semaines)

		11 j		25 j		54 j		117 j		249 j			
		T	P	T	P	T	P	T	P	T	P		
0	↓	0,92	1,40	-	1,36	-	1,40	1,04	1,33	1,17	2,02	0	
10		0,50	0,66	-	0,60	-	0,66	0,44	0,56	0,95	0,82	10	
20		0,27	0,35	-	0,34	-	0,34	0,30	0,29	0,42	0,39	20	
40						-	0,30	0,16	0,20	0,37	0,37	40	
						-	0,20	0,12	0,10	0,23	0,27	50	
										-	0,23	60	
										-	0,19	70	
										0,10	0,12	80	
												cm	↓

Tableau 7 - Evolution du carbone organique (en %) dans le sol témoin (T) et le sol pollué (P) en fonction du temps

SOL POLLUE

0 10 30 40 50 60 70 80 cm	11 jours		25 jours		54 jours		117 jours		249 jours		472 jours		TEMOIN SOL	0 10 20 30 40 50 60 70 80 cm
	Av. Ext.	Ap. Ext.												
	296	230	224	200	214	192	255	235	532	-	360	394	30	
	32	≤ 10	32	32	40	40	50	50	90	-	60	58	28	
	24	24	32	10	40	32	35	30	36	-	32	30	30	
					10	16	25	25	32	-	28	32	28	
					24	10	40	30	30	-	26	30	28	
									30	-	32	26	26	
									32	-	30	30	26	
									34	-	28	32	30	

Tableau 8

Répartition de Pb (ppm) dans les sols

Av. Ext. teneur dans le sol avant extraction au tétrachlorure de Carbone
 Ap. Ext. " " " " après " " " "

SOL POLLUE

0 10 20 30 40 ↓ cm	11 jours		25 jours		54 jours		117 jours		249 jours		472 jours		SOL TEMOIN	0 10 20 30 40 50 60 70 80 ↓ cm
	Avant Extraction CCl ₄	Après Ext.	Avant Ext.	Après Ext.										
	104	88	68	64	70	74	86	83	187	-	110	124	24	
	24	20	16	18	18	20	21	23	55	-	37	34	22	
					16	20	18	19	34	-	24	20	21	
	16	16	16	18	16	14	15	16	28	-	22	21	22	
					16	14	23	15	28	-	21	22	20	
									27	-	19	19	20	
									26	-	19	18	18	
									31	-	21	23	18	

Tableau 9

Répartition de Zn (ppm) dans les sols

Av. Ext : teneur dans le sol avant extraction du tétrachlorure de carbone

Ap. Ext : " " " après " "

SOL POLLUE

		11 jours		249 jours		472 jours		SOL TEMOIN
		Av. Ext.	Ap. Ext.	Av. Ext.	Ap. Ext.	Av. Ext.	Ap. Ext.	
0		25	≤ 5	13	-	8	9	5
10		10	≤ 5	6	-	5	4	7
20		8	≤ 5	6	-	7	3	6
30				5	-	5	3	12
40	↓ cm			4	-	4	4	12
				4	-	4	3	7
				5	-	5	3	10
				6	-	6	5	11
								80 ↓ cm

Tableau 10 : Répartition de Cu (ppm) dans le sol

Cas du carbone organique

Le tableau 7 donne, après extraction au tétrachlorure de carbone, l'évolution du carbone organique dans la parcelle témoin et la parcelle polluée.

On note :

- une quantité de matière organique dans le sol pollué plus importante que dans le sol témoin (30 à 40 % en plus) ;
- que lors du dernier prélèvement, il semblerait y avoir augmentation de carbone organique dans le sol pollué. Outre, le fait que des prélèvements complémentaires doivent être effectués pour confirmer cette augmentation, il faut tenir compte également de la dégradation de la matière organique (herbes et racines) initialement présente sur le terrain avant de conclure sur l'évolution des huiles.

2.5 - Eléments traces

L'analyse de l'huile de vidange en ce qui concerne les métaux a montré l'importance prépondérante de Pb et Zn par rapport aux autres.

Nous avons donc suivi au cours du temps l'évolution dans le sol de ces éléments ainsi que celle du cuivre afin de suivre leur migration ou leur fixation éventuelle.

Les tableaux 8, 9 et 10 donnent les résultats obtenus. Malgré les difficultés rencontrées pour obtenir des résultats homogènes dans de telles conditions expérimentales et sur une période de quinze mois, les chiffres sont significatifs surtout en ce qui concerne Pb et Zn. On remarque :

- une fixation de ces métaux dans le sol puisque, après extraction de la phase huileuse au tétrachlorure de carbone, on retrouve quasiment la totalité du métal dans le sol. Cette fixation est limitée à la couche superficielle (0-10 cm) : cela semble d'ailleurs normal en particulier pour le plomb, dont on trouve 80 % sous forme de particules solides dans l'huile au départ.
- que cette fixation ne paraît pas irréversible : il semble, même si cela est discret, que les métaux initialement et essentiellement sous forme de métal ou d'oxyde soient remobilisés ; notamment pour le cuivre dont les teneurs deviennent identiques en zone témoin et en zone polluée au bout de 15 mois.

2.6 - Résultats des analyses microbiologiques

2.6.1 - Microflore totale

Le tableau n°11 illustre le comportement de la microflore totale des parcelles témoins et polluées.

Le nombre de bactéries aérobies de la parcelle témoin varie suivant le taux d'humidité du sol, celui de la parcelle polluée reste relativement constant jusqu'au 54ème jour pour augmenter très fortement par la suite.

En ce qui concerne les bactéries anaérobies, on n'observe pas de modifications significatives pendant la durée de notre étude.

Les rapports aérobie/anaérobie de la parcelle polluée peuvent être estimés comparables à ceux de la parcelle témoin, les hydrocarbures donc n'ont pas d'influence appréciable sur l'aération du sol.

Les actinomycètes, seul groupe de la microflore totale, ont été inhibées par les hydrocarbures.

Le nombre de champignons de la parcelle polluée ne représente pas des variations importantes ; par contre, celui de la parcelle témoin diminue sensiblement. En ce qui concerne les algues de la parcelle polluée, leur développement est faible, mais tout à fait comparable à celui de la parcelle témoin.

2.6.2 - Germes ammonifiants

Les germes ammonifiants ont été choisis parmi les groupements fonctionnels les plus représentatifs du cycle de l'azote.

Les résultats sont exprimés par le nombre le plus probable d'organismes ammonifiants, tableau n°12 et par les courbes de leur activité en étudiant la variation, en fonction du temps d'incubation des milieux tests, des dilutions limites du sol provoquant la disparition de l'acide aminé.

Les résultats exposés dans le tableau n°12 montrent la multiplication remarquable des germes ammonifiants en présence d'hydrocarbures. Les coefficients de stimulation s'échelonnent entre 5,7 et 26,3 pour la culture de 7 jours et de 2,5 à 10272 pour celle de 14 jours. L'examen comparatif des courbes d'activité confirme les résultats mentionnés dans le tableau n°12.

2.6.3 - Modification de la microflore en présence d'hydrocarbures

2.6.3.1 - Bactéries utilisant l'huile comme seule source de carbone (microflore "adaptée")

Les résultats de dénombrement sont présentés dans le tableau n°13.

Ils montrent l'accroissement remarquable de la microflore "adaptée" dans la parcelle polluée. Un coefficient de stimulation peut donc être calculé en fonction du temps. Les valeurs obtenues sont comprises entre 10 et 31,7.

2.6.3.2 - Bactéries aérobies et germes ammonifiants

Les résultats sont présentés dans le tableau n°14. On observe l'accroissement général des bactéries aérobies et des germes ammonifiants dans la parcelle polluée. Les coefficients obtenus se situent entre 5,8 et 5,6 pour les bactéries aérobies et entre 5,7 et 26,3 pour les germes ammonifiants.

Les coefficients de stimulation semblent être reliés aux hydrocarbures.

La population bactérienne totale en général, est plus élevée dans la parcelle polluée que dans la parcelle témoin.

Si l'on compare les résultats des deux parcelles (tableau n°15), on constate que les rapports des bactéries aérobies/germes ammonifiants sont du même ordre de grandeur dans les deux cas. On peut donc penser cependant, que cette microflore n'est pas perturbée fondamentalement par les hydrocarbures.

2.6.4 - Conclusion

Dans l'ensemble les résultats obtenus :

- Montrent la stimulation de certains micro-organismes par les hydrocarbures
- Révèlent l'aptitude de la microflore à utiliser les huiles comme seule source de carbone marqué par un accroissement remarquable de la microflore adaptée.
- On note de même une stimulation importante des germes ammonifiants sur la zone polluée.

Microflore totale

(Résultat exprimés en nombre de microorganismes/g d'échantillon sec-

Temps d'expérience en jours	Profondeur de prélèvements en centimètres	Bactéries				Rapports Aérobie/anaérobies		Actinomycètes		Champignons		Algues		Taux d'humidité %		Ph	
		Aérobies		Anaérobies		PT	PP	PT	PP	PT	PP	PT	PP	PT	PP	PT	PP
		PT	PP	PT	PP												
		PT	PP	PT	PP												
0	** 0 à 10	26 600 000	26 850 000	-	-	-	-	2 128 000	3 759 000	1 915 000	1 191 400	1 010 000	1 483 000	6,4	7,4	5,80	5,92
	10 à 80	2 655 000	2 625 000	-	-	-	-	2 655 000	4 200 000	58 410	63 000	26 550	44 725	6,2	5,0	5,40	5,60
11	0 à 20	4 680 000	27 000 000	156 000	486 000	30	55,5	6 240 000	1 080 000	884 000	1 188 000	260 000	48 600	4,0	8,0	5,80	5,54
25	0 à 20	4 590 000	47 970 000	255 000	1 012 700	18	47,3	3 060 000	106 600	306 000	10 660 000	45 900	26 650	2,0	6,6	6,04	5,32
54	0 à 20	4 635 000	47 610 000	97 850	840 000	47,3	56,7	1 030 000	158 700	72 100	3 703 000	25 750	26 450	3,0	5,8	5,48	5,62
117	0 à 20	4 815 000	271 000 000	481 500	3 252 000	10	83,3	1 498 000	325 200	695 500	813 000	267	271	7,0	8,4	5,24	5,20
181	0 à 20	16 200 000	267 500 000	1 026 000	802 500	15,8	333,3	1 080 000	107 000	162 000	1 070 000	270	267	8,0	7,0	5,92	6,30
249	0 à 20	26 750 000	270 000 000	267 500	2 700 000	100	100	1 391 000	108 000	535 000	1 080 000	267	270	7,0	8,0	5,20	5,80
472	0 à 20	26 000 000	260 000 000	98 800	2 000 000	263,1	130	1 352 000	416 000	26 000	9 360	240	240	4,0	4,0	5,50	6,20

** Couche superficielle enlevée

*** Parcelle témoin

**** Parcelle polluée

Tableau n°11

Germes ammonifiants

Temps d'expérience en jours	Profondeur de prélèvement en centimètres	Parcelle témoin (PT)		Parcelle polluée (PP)		Rapports PP/PT (7 jours d'incubation)	Rapports PP/PT (14 jours d'incubation)
		Nombre de bactéries/g		Nombre de bactéries/g			
		Après 7 jours d'incubation	Après 14 jours d'incubation	Après 7 jours d'incubation	Après 14 jours d'incubation		
0	0 à 10	10 108 000	10 108 000	8 055 000	10 203 000	0,8	1,0
11	0 à 20	4 680 000	98 800 000	26 800 000	252 000 000	5,7	2,5
25	0 à 20	4 590 000	9 690 000	47 970 000	47 970 000	10,4	4,9
54	9 à 20	4 635 000	4 635 000	100 510 000	47 610 000 000	21,7	10 272
117	0 à 20	4 815 000	26 750 000	102 980 000	1 049 800 000	21,4	39,2
181	0 à 20	10 260 000	27 000 000	267 500 000	267 500 000	26	9,9
249	0 à 20	2 675 000	26 750 000	26 800 000	270 000 000	10	10,1
472	0 à 20	9 880 000	26 000 000	260 000 000	260 000 000	26,3	10

Tableau 12

Microflore "adaptée"

Prélèvements en jours	Parcelle témoin			Parcelle polluée		
	Microflore totale (MT)	Microflore "adaptée" (MA)	MA/MT %	Microflore totale (MT)	Microflore "adaptée" (MA)	MA/MT %
	Nombre de bactéries/g			Nombre de bactéries/g		
0	26 600 000	47 880	0,18	26 850 000	26 850	0,1
11	4 680 000	18 000	0,4	27 000 000	200 000	0,74
25	4 590 000	2 550	0,05	47 970 000	8 634 000	18
54	4 635 000	9 785	0,2	47 610 000	14 812 000	31,7
117	4 815 000	12 305	0,25	271 000 000	27 100 000	10
181	16 200 000	102 600	0,63	267 500 000	26 750 000	10
249	26 750 000	267 500	1,0	270 000 000	27 000 000	10
472	26 000 000	208 000	0,8	260 000 000	26 000 000	10

Tableau 13

Bactéries aérobies et germes ammonifiants
(coefficient de stimulation)

Temps d'expérience en jours	Bactéries aérobies nombre/g		PP/PT	Germes ammonifiants nombre/g		PP/PT
	PT*	PP**		PT	PP	
0	26 600 000	26 850 000	1	10 108 000	8 055 000	0,8
11	4 680 000	27 000 000	5,8	4 680 000	26 800 000	5,7
25	4 590 000	47 970 000	10,4	4 590 000	47 970 000	10,4
54	4 635 000	47 610 000	10,3	4 635 000	100 510 000	21,7
117	4 815 000	271 000 000	56	4 815 000	102 980 000	21,4
181	16 200 000	267 500 000	16,5	10 260 000	267 500 000	26
249	26 750 000	270 000 000	10,1	2 675 000	26 800 000	10
472	26 000 000	260 000 000	10	9 880 000	260 000 000	26,3

* Parcelle témoin
** Parcelle polluée

Tableau 14

Temps d'expérience en jours	Parcelle témoin			Parcelle polluée		
	Bactéries aérobies nombre/g	Germes ammonifiants nombre/g	Rapports Bact.aérob./ germes ammonifiants	Bactéries aérobies nombre/g	Germes ammonifiants nombre/g	Rapports Bact.aérob./ germes ammonifiants
0	26 600 000	10 108 000	2,6	26 850 000	8 055 000	3,3
11	4 680 000	4 680 000	1,0	27 000 000	26 800 000	1,0
25	4 590 000	4 590 000	1,0	47 970 000	47 970 000	1,0
54	4 635 000	4 635 000	1,0	47 610 000	100 510 000	0,5
117	4 815 000	4 815 000	1,0	271 000 000	102 980 000	2,6
181	16 200 000	10 260 000	1,6	267 500 000	267 500 000	1,0
249	26 750 000	2 675 000	10	270 000 000	26 800 000	10
472	26 000 000	9 880 000	2,6	260 000 000	260 000 000	1,0

Tableau 15

Conclusions

Notre objectif était :

- de suivre une pollution par des hydrocarbures (huile de vidange) sur un site naturel et d'essayer d'en dégager les conséquences en contrôlant :
 - . percolation et diffusion dans le sol ;
 - . biodégradation des hydrocarbures ;
 - . perturbation des sols : humidité, microbiologie, métaux, carbone organique.

- le constat à la fin de cette étude peut se résumer aux remarques suivantes :

- les hydrocarbures utilisés au cours de cette étude imprègnent très rapidement le sol sur une tranche restreinte, de l'ordre de 20 cm, mais leur infiltration ne se poursuit pas, même au-delà de la période de sécheresse enregistrée au cours des 8 premiers mois de l'année 1976.

- les phénomènes de biodégradation quantifiés sont extrêmement faibles, malgré l'apparition précoce d'une microflore adaptée et le maintien de l'activité des bactéries ammonifiantes au cours de cette étude.

- il apparaît une différence des teneurs en eau entre la zone témoin et la zone polluée semblant indiquer que l'huile gêne les mouvements d'eau : infiltration comme évapotranspiration.

- les métaux présents dans l'huile, pour une grande part à l'état de particules métalliques ou de sels, demeurent en place. Seul, le cuivre particulièrement remobilisable disparaît des niveaux initialement imprégnés.

- les examens microbiologiques font apparaître une modification du milieu : tout d'abord une adaptation extrêmement rapide des microorganismes, une prédominance bactérienne, le maintien de l'activité des germes ammonifiants pendant toute la durée de l'étude, et une inhibition des actinomicètes sur un sol déjà initialement pauvre en microorganismes et en éléments contribuant à la valeur agronomique : matière organique, phosphore et rapport C/N peu élevé.

Il ne faudrait pas négliger cependant, en ce qui concerne cette activité microbiologique, l'apport dû aux racines et aux plantes (graminées) initialement présentes ; cet apport n'est pas négligeable et doit sûrement servir de substrat aux microorganismes.

Quel enseignement peut-on tirer de ce constat ?

Tout d'abord, il semble se dégager qu'en fonction de la viscosité des produits utilisés, les dangers d'infiltration et de pollution de la zone saturée sont assez restreints.

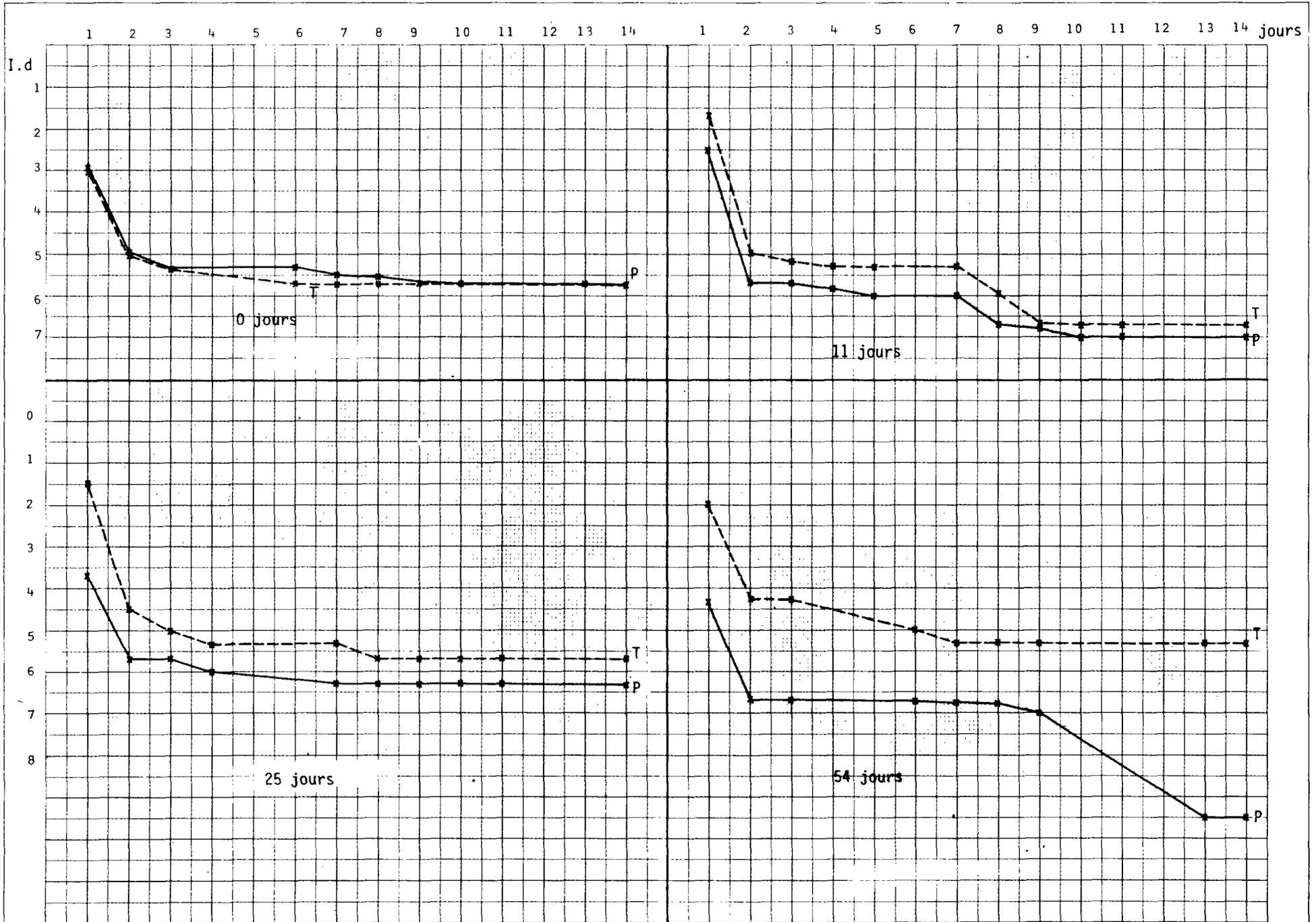
Sur un sol naturellement pauvre, la biodégradation est minime mais il serait nécessaire d'étudier l'évolution des hydrocarbures dans des conditions différentes. On peut en effet espérer que dans des conditions plus favorables : apport d'azote, de phosphore, rétablissement d'un rapport C/N correct, aération de la terre, les résultats obtenus seraient améliorés et le seraient certainement avec d'autres types d'hydrocarbures. *A priori*, on ne peut donc condamner ce mode de traitement et d'élimination des hydrocarbures par rapport à d'autres méthodes tels que le stockage en carrière ou l'incinération.

Cependant, ces résultats montrent que l'élimination des hydrocarbures par voie microbiologique ne peut sans doute être généralisée à toutes les catégories de produits.

Ils montrent de plus que tous les problèmes d'infiltration et de perméabilité du milieu n'ont pas été tranchés. Il faudrait étudier ceux-ci dans le cadre d'une pluviométrie normale et en tenant compte de la nature des produits ; considérer l'action des additions phosphore, azote... permettant d'équilibrer le sol ; examiner le rôle des dispersants dont l'action peut être favorable ou préjudiciable dans la mesure où ils favorisent l'infiltration.

Enfin, il serait indispensable d'examiner les facteurs qui peuvent bloquer tout redémarrage de la végétation après 18 mois d'expérience et que nous n'avons pu entamer dans le cadre de ce travail : hydrocarbures résiduels, plus ou moins polycondensés, métaux qui se trouvent écrémés et demeurent dans la couche superficielle des sols et dont il serait indispensable de suivre le devenir : pérennité de leur fixation, leur remobilisation et leur complexation par la matière organique, les argiles, leur concentration dans les plantes ou leur dispersion dans la zone saturée.

Germes ammonifiants : courbe d'activité



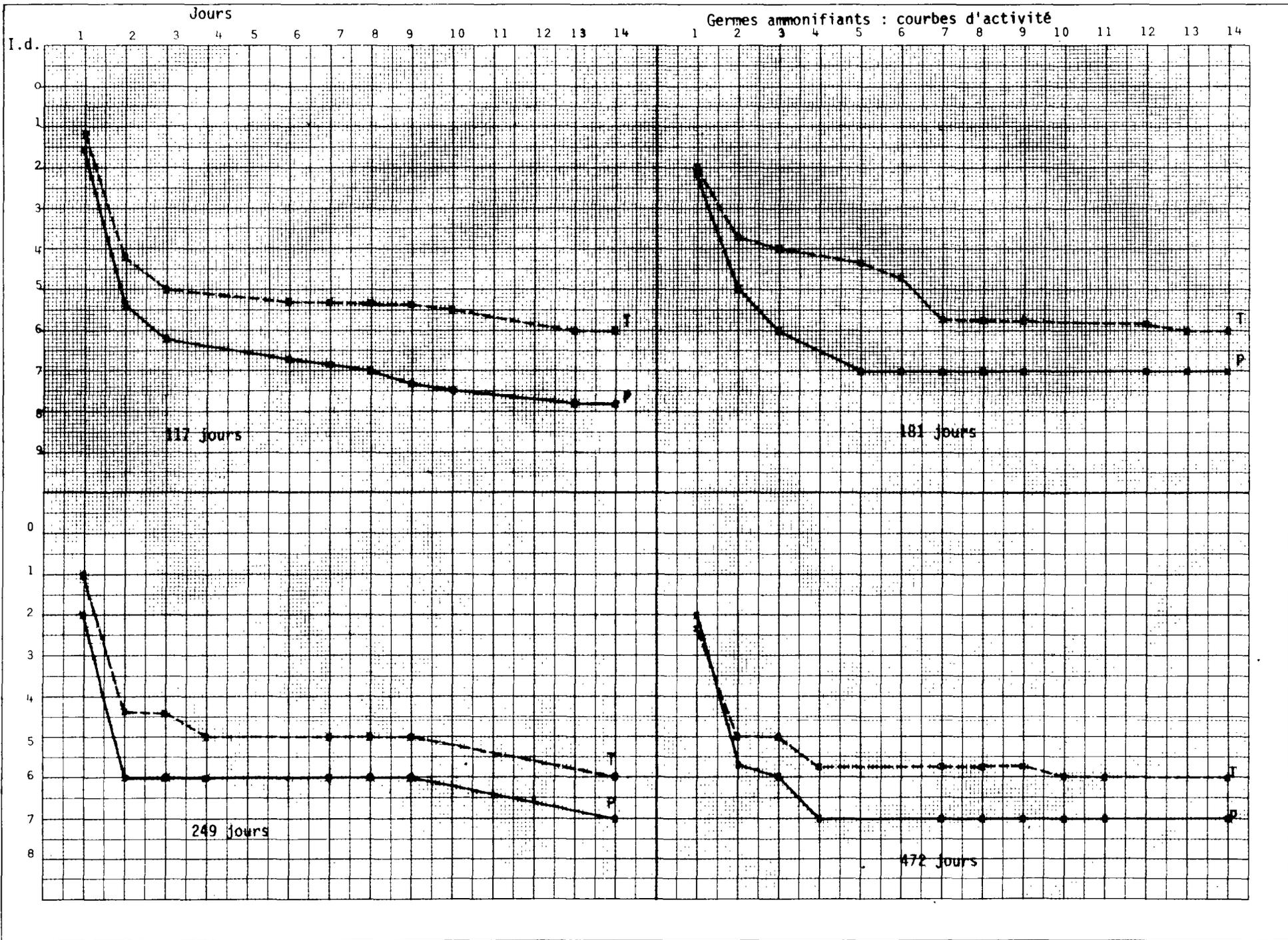


FIG. 17