

Document public

***Etat des connaissances sur l'atténuation
naturelle :
mécanismes et mise en œuvre
Rapport final***

BRGM/RP-51960-FR

mars 2003



Document public

***Etat des connaissances sur l'atténuation
naturelle :
mécanismes et mise en œuvre
Rapport final***

BRGM/RP-51960-FR

mars 2003

**Etude réalisée dans le cadre des opérations
de Service public du BRGM 2001-01POL-318
Convention MATE 50/2001, étude 4**

C. Nowak, J.R. Mossmann et A. Saada



Mots clés : Atténuation naturelle ; Processus ; Solvants Chlorés ; Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques ; Métaux ; Métalloïdes ; Cas d'études ; Position française ; Position européenne.

En bibliographie, ce rapport sera cité de la façon suivante :

Nowak C., Mossmann J.-R., Saada A., 2002. Etat des connaissances sur l'atténuation naturelle : mécanismes et mise en œuvre. Rapport BRGM/RP-51960-FR, 97 p., 9 fig., 10 tabl., 4 ann.

Synthèse

Le terme « atténuation naturelle » regroupe tous les processus faisant intervenir des phénomènes de dispersion, dilution, adsorption, dégradation chimique ou biologique ayant pour effet de réduire la masse, le volume, la concentration, la disponibilité ou la toxicité d'une pollution. Cette atténuation naturelle, le plus souvent prise en considération dans les évaluations des risques (sous le terme comportement des polluants), peut être envisagée comme une alternative possible des traitements interventionnistes, à la condition que l'on soit capable d'en évaluer le rapport coût / efficacité au même titre que n'importe quelle autre technique de dépollution.

En France, à l'heure actuelle, l'Atténuation Naturelle n'est pas encore considérée comme une technique à part entière de traitement de pollutions. Ainsi, il paraissait intéressant d'apporter une aide à l'élaboration de la position française en établissant un état des connaissances actuel concernant :

- 1) les mécanismes d'atténuation naturelle mis en jeu selon le type de polluant considéré ;
- 2) les solutions retenues concernant cette thématique dans cinq pays (Etats-Unis, Grande Bretagne, Allemagne, Pays-Bas et Danemark) dans le cadre de la mise en place de leur politique nationale ;
- 3) les cas concrets où l'atténuation naturelle a été utilisée, par ces pays comme technique de traitement.

Ce rapport, réalisé pour le compte du Ministère de l'Ecologie et du Développement Durable (MEDD, anciennement Ministère de l'Aménagement du Territoire et de l'Environnement (MATE)), sur conventions d'études, présente dans un premier temps les résultats de l'étude axée sur les mécanismes mis en jeu lors de l'atténuation de trois types de polluants, préalablement sélectionnés en accord avec le MEDD :

- 1) les solvants chlorés ;
- 2) les métaux et métalloïdes ;
- 3) les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP).

L'atténuation naturelle des solvants chlorés se traduit principalement par une élimination progressive des atomes de chlore de la structure des solvants. Ainsi, la mise en évidence de l'atténuation naturelle des solvants chlorés se fait par la détection de séquences où les solvants les plus halogénés sont prépondérants en début de panache (à proximité de la source), et disparaissent progressivement au profit de solvants moins halogénés au fur et à mesure que l'on avance dans le panache.

L'atténuation naturelle des métaux et métalloïdes ne se traduit pas par une disparition des polluants. Le métal reste présent dans le milieu, mais sous une forme chimique différente. Pour chaque type de métal, il faut s'assurer que les conditions du milieu sont favorables à la prépondérance de l'espèce la moins toxique, la moins mobile, et si les

concentrations en espèces toxiques mobiles diminuent au cours du temps, au profit des espèces présentant un risque moindre.

Il est difficile de mettre en évidence l'atténuation naturelle des HAP par l'apparition de métabolites, comme cela est le cas pour les solvants chlorés. Seule une diminution des quantités en polluants, accompagnée de la détection de bactéries dégradantes et d'une diminution de la toxicité associée au cours du temps peut indiquer la possibilité d'atténuation naturelle des HAP.

De façon générale, la démonstration de la faisabilité de l'atténuation naturelle repose sur un certain nombre de « preuves » permettant de mettre en évidence les mécanismes de l'atténuation et leur efficacité, et sur des modélisations permettant de prévoir l'évolution de la contamination des milieux au cours du temps, jusqu'à l'atteinte des objectifs de réhabilitation fixés. Pour cela, certaines conditions sont nécessaires, comme l'ont défini certains protocoles étrangers, en particulier, il faudra montrer qu'il y a simultanément :

- Une réduction de masse du contaminant sur le site,
- Des indicateurs géochimiques et biologiques prouvant que l'atténuation naturelle intervient dans la réduction de la concentration du contaminant,
- Un potentiel microbiologique permettant la biodégradation.

Cet état des connaissances permet de faire des propositions quant à la position de la France sur la prise en compte de l'atténuation naturelle dans son approche de gestion des sites contaminés. Il est important de souligner que l'utilisation de l'atténuation naturelle comme technique de traitement de sites ne consiste pas uniquement à démontrer l'existence de processus naturels. Il s'agit d'élaborer une démarche englobant des contraintes liées aux spécificités du site et de son environnement.

L'absence d'un cadre minimum définissant des règles ou des objectifs à appliquer à l'atténuation naturelle risque d'aboutir à des difficultés de perception entre une démarche d'inaction et une démarche de traitement passif. Ainsi, faut-il garder à l'esprit un certain nombre de questions à se poser, au moment d'évaluer la technique de réhabilitation à retenir. Les grandes lignes d'un encadrement pourraient être :

- **Définir les cas d'exclusion** : exclure les sites qui doivent faire l'objet d'une réhabilitation rapide ;
- **Déterminer les mécanismes d'atténuation naturelle à privilégier** : un processus destructif et un processus de séquestration, seuls ou combinés, doivent être dominants sur les autres processus ;
- **Ne pas faire reposer l'atténuation naturelle sur les seules données du diagnostic approfondi** : une étude spécifique doit être menée pour la démonstration de l'atténuation naturelle et de sa pérennité ;

- **Prendre en compte la multiplicité des substances** : l'étude doit préciser le sort de l'ensemble des substances identifiées ;
- **Prévoir un dispositif de gestion** : vérifier sur le terrain l'adéquation des données de suivi au cours du temps avec les précisions des modèles ;
- **Prendre en compte les difficultés socio-politiques par une communication d'accompagnement** : l'atténuation naturelle doit être sélectionnée parmi d'autres méthodes de façon à indiquer qu'elle ne résulte pas d'une volonté d'inaction, mais bien d'un processus réfléchi et cohérent.

Il est également important de souligner que les ordres de grandeur de temps et d'espace mis en jeu dans les processus d'atténuation naturelle sont difficiles à estimer ; ces paramètres étant fonction d'un grand nombre de facteurs tels que :

- La nature du polluant : des hydrocarbures aliphatiques légers se dégradent beaucoup plus vite que des hydrocarbures aromatiques polycycliques ; certains solvants chlorés sont relativement facilement biodégradables, d'autres sont beaucoup plus résistants ;
- La quantité de polluant : un panache faiblement concentré nécessitera moins de temps pour atteindre une valeur seuil donnée, qu'un panache fortement concentré, toutes choses égales par ailleurs ;
- Les conditions physico-chimiques et/ou microbiologiques du milieu naturel : pour obtenir la dégradation des contaminants, il faut réunir un certain nombre de conditions, qui ne sont peut-être pas toujours réunies pour un site donné. Cela peut se traduire par des cinétiques plus faibles que dans les conditions idéales, voire même un arrêt de la dégradation. Pour certaines substances, comme les métaux, il est même possible d'imaginer une remise en solution, à partir de phases qui se déstabilisent ;
- L'historique de la pollution : certaines pollutions peuvent n'être découvertes que bien longtemps après leur occurrence. Le panache peut être dans une phase de régression, si les conditions sont réunies, et se résorber beaucoup plus rapidement que s'il était en phase de progression ;
- La dynamique de la source : si la source primaire de pollution n'est pas maîtrisée ou maîtrisable, le panache peut-être alimenté à un rythme supérieur à la cinétique d'atténuation naturelle : dans ce cas le panache est en phase de progression malgré la mise en évidence de processus d'atténuation.

En plus de ces facteurs qui ont un effet à la fois sur le temps et l'espace, les paramètres relatifs à l'hydrodynamique du système influenceront sur l'espace concerné par l'atténuation naturelle : plus la nappe se déplace vite, plus le panache de pollution sera étendu, mais moins il sera concentré.

Il est de ce fait extrêmement difficile d'estimer a priori des durées ou des espaces. En ce qui concerne les ordres de grandeurs, on peut toutefois estimer que dans les cas les plus favorables, la durée de l'atténuation naturelle est de l'ordre de la décennie. En ce qui

concerne les cas les plus lourds, l'ordre de grandeur est plutôt le siècle. C'est pourquoi de nombreux pays parlent d'atténuation naturelle stimulée, afin d'accélérer les temps de dégradation, en optimisant les conditions naturelles nécessaires au développement des processus naturels prépondérants dans les conditions du site étudié.

Le facteur prépondérant reste le stade d'évolution du panache de pollution : s'il peut être montré que le panache est en phase de régression, l'effort doit être porté sur l'estimation du temps nécessaire à sa résorption, et être jugé par rapport à la possibilité de conserver des conditions favorables pendant la durée d'atténuation naturelle nécessaire. Si cette durée est de l'ordre de quelques dizaines d'années (en Grande Bretagne la limite a été fixée à 30 ans), la situation est gérable. Au-delà, la gestion du problème devient plus aléatoire, à la fois pour des raisons techniques (fiabilité des modèles "prédictifs") et administratives.

La gestion de l'espace, fortement liée à la gestion du temps, dépend de plus du contexte socio politique : type de ressource, usage à préserver. Là aussi, le fait de s'assurer que le panache est en voie de régression est primordial, puisque cela conditionne le fait qu'il n'y ait pas d'augmentation de la dégradation de la ressource.

Sommaire

1. Contexte général.....	13
2. Les mécanismes de l'atténuation naturelle	15
2.1. Généralités.....	15
2.1.1. Les processus de l'atténuation naturelle : définitions.....	15
2.1.2. Les processus intervenants dans l'atténuation naturelle.....	15
2.1.3. Les propriétés et facteurs influençant l'atténuation naturelle.....	17
2.2. L'atténuation naturelle des solvants chlorés.....	20
2.2.1. Propriétés et comportement.....	21
2.2.2. Processus mis en jeu.....	22
2.3. L'atténuation naturelle des métaux / métalloïdes.....	25
2.3.1. Propriétés.....	26
2.3.2. Processus mis en jeu.....	26
2.4. L'atténuation naturelle des HAP	28
2.4.1. Propriétés et comportement dans l'environnement.....	29
2.4.2. Processus mis en jeu.....	30
3. Solutions retenues par les autres pays.....	33
3.1. Etats-Unis	33
3.1.1. Situation actuelle	33
3.1.2. Synthèse de protocoles pour les solvants chlorés.....	34
3.1.3. Un exemple de protocole, celui de l'American Society for Testing and Material (ASTM).....	35
3.2. Grande Bretagne.....	36
3.2.1. Protocole de l'English and Welsh Environment Agency	36
3.2.2. Projet SIREN	37
3.3. Allemagne.....	39
3.4. Pays-Bas	41
3.5. Danemark	42
3.6. Autriche	44
3.7. Discussion sur les protocoles existants.....	45
4. Exemples de mise en évidence de l'atténuation naturelle : cas d'études	49
4.1. Atténuation naturelle de solvants chlorés en zone saturée	49
4.2. Atténuation naturelle de métaux en zone saturée	50
4.3. Atténuation naturelle de HAP en zone saturée.....	52
5. Place de l'atténuation naturelle dans le dispositif français.....	55

5.1. Contexte actuel	55
5.2. Critères d'acceptabilité de l'atténuation naturelle, comme moyen de réhabilitation de sites pollués ?	56
5.2.1. Les critères d'adéquation à la démarche nationale	56
5.2.2. Les critères techniques	57
5.2.3. Le respect de délais compatibles avec une gestion des risques	59
5.3. Propositions quant à la position de la France en matière d'atténuation naturelle ..	61
5.3.1. Définir les cas d'exclusion	62
5.3.2. Réserver l'atténuation naturelle aux milieux eaux ?	63
5.3.3. Déterminer les mécanismes d'atténuation naturelle à privilégier	64
5.3.4. Ne pas faire reposer l'atténuation naturelle sur les seules données du diagnostic approfondi	65
5.3.5. Prendre en compte la multiplicité des substances	66
5.3.6. Prévoir un dispositif de gestion	66
5.3.7. Prendre en compte les difficultés socio-politiques par la communication .	67
5.4. Enquête menée auprès de quelques organismes français publics ou privés	68
5.4.1. Résultats de l'enquête	68
5.4.2. Exemple : procédure de dépollution microbiologique par l'Atténuation Naturelle Dynamisée	68
6. Conclusion	71
7. Bibliographie	77

Liste des annexes

Ann. 1 – Exemple d'organigramme d'utilisation de l'atténuation naturelle en tant que stratégie de remédiation intrinsèque (Etats-Unis) ;

Ann. 2 – Organigramme du protocole de l'« American Society for Testing and Materials » (ASTM) pour le traitement des sites pollués par l'atténuation naturelle (Etats-Unis)

Ann. 3 – Organigrammes des trois étapes du protocole existant au Royaume-Uni pour la mise en évidence de l'atténuation naturelle.

Ann. 4 – Schéma simplifié du système hollandais « feux de croisement » : réflexions sur la prise en compte de l'atténuation naturelle dans la gestion des sites contaminés

Liste des illustrations

FIGURES

Figure 1 : Exemple de biodégradation de solvants chlorés dans le milieu eaux souterraines

Figure 2 : Mise en évidence de l'atténuation naturelle du PCE au laboratoire : évolution temporelle

Figure 3 : Les trois cycles de l'approche du projet INCORE (Ptak, T., 2002)

Figure 4 : Les trois étapes de la méthode danoise de l'évaluation des risques (Danish Environmental Protection Agency, 2002)

Figure 5 : Concentrations de composés aliphatiques chlorés (représentés par la DCO) dans les eaux souterraines du site St Joseph, Michigan, USA (National Research Council, 2000).

Figure 6 : Coupe en travers du bassin de la crique « Pinal » (Source : Brown and Harvey, 1996) (National Research Council, 2000)

Figure 7 : Evolution des concentrations maximales de naphthalène, analysées dans les eaux souterraines du panache de pollution, suite à la suppression de la source de goudron de houille (National Research Council, 2000)

Figure 8 : Cycle de vie d'un panache soumis à l'atténuation naturelle, montrant les quatre étapes de l'évolution : I. Expansion ; II. Stabilisation ; III. Régression ; IV. Disparition. Sinke et Le Hécho, 1999

Figure 9 : Représentation d'un panache de contaminant dans une nappe (d'après NAVFAC, 2000)

TABLEAUX

Tableau 1 : Influence des propriétés physico-chimiques des polluants sur les processus d'atténuation naturelle

Tableau 2 : Influence des propriétés du milieu sur les processus d'atténuation naturelle

Tableau 3: Solvants chlorés les plus fréquemment utilisés

Tableau 4 : Synthèse des grandeurs physico-chimiques des solvants chlorés (DNAPL), (ANTEA, 1994)

Tableau 5 : Dégradation des solvants chlorés en fonction des conditions du milieu

Tableau 6 : Influence des propriétés du milieu sur l'atténuation naturelle des métaux

Tableau 7 : les seize HAP retenus comme polluants prioritaires par la Communauté Européenne et l'Agence de Protection de l'Environnement Américaine (US-EPA)

Tableau 8 : Propriétés physico-chimiques des 16 HAP de la liste de l'EPA (d'après Mossmann & Lors, 2002)

Tableau 9 : Temps de demi-vie d'une sélection de solvants chlorés dans les nappes, soumis à des processus de dégradation physico-chimiques (d'après US-EPA, 1998)

Tableau 10 : Temps de demi-vie d'une sélection de solvants chlorés dans les nappes, soumis à des processus de biodégradation réductive anaérobie (déhalorespiration, déhalogénéation) (d'après Holmes et al, 1998)

1. Contexte général

L'atténuation naturelle est utilisée comme technique de gestion et de traitement des sites depuis plus de dix ans aux Etats-Unis et seulement depuis quelques années en Europe. Cette technique demande à être validée dans le contexte réglementaire européen, car ses bases scientifiques sont très récentes et elle ne fonctionne que dans des conditions précises.

En France, à l'heure actuelle, l'Atténuation Naturelle (AN) n'est pas encore considérée comme une technique à part entière de traitement de pollutions. Les processus constituant l'atténuation naturelle sont pris en considération dans les phases de diagnostic, notamment dans le diagnostic approfondi, pour apprécier les concentrations d'exposition et les possibles évolutions dans le temps et l'espace, phase essentielle dans la définition des éventuels besoins de réhabilitation d'un site pollué.

Par ailleurs, la possibilité de prendre en compte les phénomènes d'atténuation naturelle dans la gestion des sites pollués pourrait constituer un atout technique et économique majeur. En effet les coûts associés à une réhabilitation de site, notamment des aquifères contaminés, sont très élevés et s'étalent parfois sur une ou plusieurs décennies.

La mise en œuvre d'une démonstration de l'atténuation naturelle suppose de maîtriser la chaîne d'opérations allant de l'échantillonnage sur sites à la modélisation des phénomènes à partir des données recueillies. Pour l'heure, seuls des guides méthodologiques sont disponibles au niveau international. La difficulté réside dans la disponibilité d'outils permettant de fournir aux gestionnaires des éléments fiables de décision.

Les objectifs de ce rapport réalisé à la demande du Ministère de l'Ecologie et du Développement Durable (MEDD, convention d'études « MATE 50/2001, étude 4 ») sont :

- Synthèse sur les mécanismes d'atténuation naturelle mis en jeu selon le type de contaminant et de milieu considéré ;
- Bilan des solutions retenues par les autres pays ayant déjà adoptés une position concernant cette thématique (Etats-Unis, Grande Bretagne, Allemagne, Pays-Bas et Danemark) ;
- Recherche de cas concrets étrangers où l'atténuation naturelle a été utilisée dans le cadre du traitement du site ;

Cet état des connaissances a pour objectif l'élaboration de propositions quant à la position de la France sur l'utilisation de l'atténuation naturelle dans la gestion des sites contaminés.

2. Les mécanismes de l'atténuation naturelle

2.1. GENERALITES

2.1.1. Les processus de l'atténuation naturelle : définitions

La définition la plus utilisée à l'heure actuelle est celle des Etats-Unis (United States Environmental Protection Agency EPA, 1996) : *Processus se produisant naturellement dans les sols et les eaux souterraines, sans intervention humaine, visant à réduire la masse, la toxicité, la mobilité, le volume ou la concentration des contaminants dans ces milieux. Les processus pris en considération sont : la dispersion, la dilution, la volatilisation, l'adsorption, les mécanismes de stabilisation ou de destruction des polluants, qu'ils soient physiques, chimiques ou biologiques.*

L'atténuation naturelle d'un ou de plusieurs contaminant(s) est le résultat de la combinaison de plusieurs phénomènes physiques, chimiques et biologiques dans un milieu (notamment aquifère ou sol). Ces phénomènes modifient le comportement du ou des contaminant(s) et peuvent aboutir à sa disparition ou modifier sa forme chimique (spéciation), en rendant le polluant plus ou moins mobile et/ou plus ou moins toxique.

Dans le cadre de la gestion des sites pollués, certains partenaires/acteurs envisagent l'utilisation de l'atténuation naturelle comme une technique de traitement à part entière. Ce point de vue est plus ou moins partagé actuellement par la plupart des états européens. Certains de ces états ont assorti leur positionnement sur cette question de préconisations, le plus souvent relatives à l'existence, et la mise en évidence des processus d'atténuation naturelle.

2.1.2. Les processus intervenants dans l'atténuation naturelle

Afin d'en maîtriser l'utilisation, il est indispensable de comprendre chaque processus de l'atténuation naturelle. Voici une explication sommaire de chacun d'entre eux :

La dispersion

La dispersion est le changement de direction et de vitesse d'une particule, changement souvent lié aux mouvements de la nappe et à l'hétérogénéité de l'aquifère. Quand un contaminant entre en contact avec les milieux sols ou eaux, plusieurs phénomènes peuvent avoir lieu :

La **dispersion convective** est le transport de solutés par le mouvement d'un fluide en déplacement, en l'occurrence l'écoulement de la nappe phréatique. La dispersion convective est le phénomène principal intervenant dans le transfert des substances dissoutes. En réalité, le front de contaminants s'étale, du fait des processus de dispersion mécanique et de diffusion moléculaire.

La **dispersion mécanique** dépend des caractéristiques du milieu : taille des pores, hétérogénéité, granulométrie, etc... La dispersion provoque un étalement du front de pollution et une dilution du panache avec des eaux non contaminées.

La **diffusion moléculaire** d'un soluté se produit sous l'effet de gradient de concentrations : la substance migre d'une zone de forte concentration vers une zone de faible concentration. La diffusion moléculaire devient significative dans les milieux très peu perméables (10^{-8} - 10^{-9} m.s⁻¹) et concerne plus particulièrement la zone non saturée. Dans les nappes, c'est la dispersion convective qui prédomine.

La dilution

La dilution, c'est le résultat du délayage d'une substance dans un liquide (eau).

La volatilisation

C'est le passage d'une substance à l'état gazeux. La volatilisation permet de diminuer la concentration du contaminant dans le milieu, mais n'est jamais destructive (transformation, mais non disparition).

L'adsorption

L'adsorption est la propriété qu'ont certains corps solides de retenir les molécules d'autres corps (à l'état gazeux ou liquide) à leur surface. On distingue deux mécanismes d'adsorption : l'adsorption physique qui est due à des forces électrostatiques (forces de van der Waals) et l'adsorption chimique ou chimisorption qui met en jeu des liaisons chimiques entre le solide adsorbant et le fluide adsorbé avec activation de ses molécules.

L'adsorption physique peut être réversible (phénomène de désorption) et présente le risque de libérer une partie des substances piégées. Il en résulte un retard de migration des polluants dissous dans l'eau de la nappe. L'adsorption chimique met en jeu des liaisons beaucoup plus énergétiques qui peuvent rendre le phénomène irréversible (résidus liés). Dans ce cas, il en résulte une baisse de la concentration de contaminant dissous dans l'eau de la nappe.

Dans le milieu naturel, les deux types d'adsorption coexistent en fonction de la composition du milieu. Les milieux riches en matière organique et/ou en minéraux fins (granulométrie < 2 µm) sont les plus favorables aux mécanismes de sorption.

Les destructions abiotiques

La photolyse, les réactions d'oxydo-réduction, et l'hydrolyse chimique sont les trois processus principaux à l'origine de la dégradation abiotique de contaminant.

La **photolyse** est la décomposition chimique (oxydation) de substances sous l'action de la lumière. Elle n'a évidemment lieu qu'en surface des milieux d'exposition

(sols, eaux et végétaux) et provoque des hydroxylations ou des pertes de chaînes aliphatiques. Etant donné qu'il est difficile de l'isoler des autres paramètres, elle est prise en compte avec l'ensemble des phénomènes relevant de l'atténuation naturelle.

Les **réactions d'oxydo-réductions abiotiques** mettent en jeu des couples redox¹ sans intervention biologique. Elles peuvent avoir lieu dans les sols et dans les eaux superficielles et souterraines. Selon la nature du polluant et les conditions rédox du milieu, il est possible de favoriser l'atténuation naturelle ou, au contraire, d'augmenter la mobilité ou la toxicité du polluant.

L'**hydrolyse** a lieu dans les phases aqueuses des milieux. Il s'agit de l'action de l'eau sur un polluant, consécutive à la dissociation ionique de l'eau.

La destruction biotique ou biodégradation

La biodégradation est l'ensemble des mécanismes de transformation d'un contaminant en différents sous-produits, par l'action des microorganismes (bactéries et microbes). Ce processus est destructif, ce qui est particulièrement intéressant pour l'atténuation naturelle à condition que les produits néoformés (métabolites) aient une toxicité moindre, ce qui n'est pas toujours le cas. Il en résulte généralement une diminution de la concentration de polluant initial. En revanche, selon les cas, les métabolites peuvent aboutir à un ralentissement ou à une accélération de la vitesse de propagation et un étalement ou à un resserrement du front de migration.

2.1.3. Les propriétés et facteurs influençant l'atténuation naturelle

Le devenir et le transport d'un contaminant est contrôlé par les propriétés physico-chimiques du composé lui-même (tableau 1), mais également par la nature et la composition du milieu dans lequel le composé est en migration.

Propriétés du contaminant

Propriétés caractéristiques du contaminant	Comportement du contaminant
Solubilité dans l'eau (mg/l), fonction de la température et de la pression. Il s'agit de la masse maximale de produit qui peut se solubiliser dans un litre d'eau.	Si le composé n'est pas soluble, ou présent dans le milieu dans des concentrations supérieures à la solubilité, il flottera à la surface de la nappe ou se déposera sur le fond, selon sa densité.
Densité du liquide par rapport à l'eau. La densité d'une substance définit l'écoulement vertical du fluide par gravité.	Pour un composé non soluble, sa position par rapport à l'eau dépendra de la densité relative du matériau. Les composés les plus légers que l'eau (densité < 1) flotteront et les composés plus lourds que l'eau (densité > 1) se concentreront dans la partie inférieure de la nappe.

¹ Une réaction d'oxydo-réduction résulte du transfert d'électron(s) d'un composé vers un autre : l'accepteur et le donneur d'électron(s) constituent un couple redox.

Propriétés caractéristiques du contaminant	Comportement du contaminant
<p>Viscosité dynamique, notée μ et exprimée en P (Poise = kg.s/cm²). Elle est due à la friction interne du fluide et indique la force exercée par le fluide en opposition à son déplacement.</p>	<p>Le déplacement du fluide est d'autant plus lent que son coefficient de viscosité est élevé.</p>
<p>Pression de vapeur, exprimée en Pascal (Pa). La pression de vapeur du produit indique sa capacité à se volatiliser.</p>	<p>Pour une valeur supérieure à 133 Pa à 25 °C, le produit est relativement volatil (cas des solvants chlorés).</p>
<p>Température d'ébullition (°C). C'est la température à partir de laquelle, sous la pression atmosphérique, un liquide se vaporise.</p>	<p>Quand la température d'ébullition d'une substance est atteinte, celle-ci se volatilise.</p>
<p>Constante de Henry, notée Kh (Pa.m³/mol) correspond au ratio des concentrations dans la phase gazeuse et la phase liquide (pure ou dissoute). Elle influe à la fois sur la capacité d'un produit à se volatiliser et sur les phénomènes d'adsorption.</p>	<p>Les composés ayant une constante de Henry élevée passent facilement de la phase liquide à la phase vapeur. On considère que le produit est volatil pour des valeurs de Kh supérieures à 100 (soit 0,001 atm.m³/mol). Quand Kh < 100, les phénomènes d'adsorption jouent un rôle prépondérant.</p>
<p>Densité des vapeurs (calculée par rapport à l'air). La migration verticale des vapeurs est fonction de cette propriété.</p>	<p>Plus la densité des vapeurs du composé est élevée (d > 1), plus l'air du sol chargé de la fraction volatile s'accumulera en surface de la nappe. Si d < 1, la fraction volatile aura tendance à se disperser vers l'atmosphère.</p>
<p>Coefficient de partage eau/octanol (Kow). Il permet d'apprécier l'hydrophobie de la substance et par conséquent son affinité pour la matrice solide. Cela conditionne les phénomènes d'adsorption, de migration, et de biodisponibilité de la substance.</p>	<p>En fonction des propriétés du milieu (contenu en carbone et minéraux argileux), celui-ci peut piéger le produit dans les niveaux riches en matières organiques.</p>
<p>Coefficient de partage eau/solide (Kd). Il quantifie la répartition relative du composé entre une phase solide et l'eau.</p>	<p>Plus le coefficient Kd est élevé, plus le produit est adsorbé sur la phase solide.</p>
<p>Coefficient de partage eau/carbone organique (Koc). Il correspond au Kd rapporté à la teneur en carbone organique du sol. Il quantifie la répartition relative du composé entre la matière organique et l'eau. Le Koc est également relié au Kow.</p>	<p>Plus le coefficient Koc est élevé, plus le produit a une affinité pour la fraction organique du sol.</p>

Tableau 1 : Influence des propriétés physico-chimiques des polluants sur les processus d'atténuation naturelle

Propriétés du milieu

Les paramètres propres à chacun des milieux de transfert et d'exposition ont une influence majeure sur les processus de l'atténuation naturelle. Ils sont décrits dans le tableau 2 ci-dessous. Toutefois, un autre facteur important ne doit pas être négligé : il s'agit des conditions climatiques du site qui peuvent considérablement modifier les conditions des milieux concernés.

Propriétés du milieu	Influences sur les processus de l'atténuation naturelle
MILIEU EAU	
Nature des couches géologiques constituant l'aquifère	Influe sur les phénomènes de sorption du contaminant : fonction du contenu en carbone organique et en minéraux argileux. Influe sur la dilution du contaminant.
Conductivité hydraulique de la nappe	Influe sur le transfert du contaminant dans le milieu : la convection, la dispersion et la diffusion.
Porosité / Perméabilité de l'aquifère	Influent sur le transfert du contaminant dans le milieu : la convection, la dispersion et la diffusion.
Géochimie des eaux	Influe sur la biodégradation du contaminant et sur les phénomènes de sorption et par conséquent sur le transfert du contaminant dans le milieu.
Conditions d'oxydo-réduction	Influent sur la dégradation abiotique.
pH	Influe sur la présence et le développement microbien, donc sur la biodégradation du contaminant. Influe sur l'hydrolyse (dégradation abiotique) et sur les phénomènes de sorption du contaminant.
Température	Influe sur les processus biologiques et sur la dissolution du contaminant.
Présence d'une population bactérienne	Influe sur la biodégradation du contaminant.
Disponibilité en éléments nutritifs	Influe sur le développement de la population microbienne présente dans le milieu, donc sur la biodégradation du contaminant.
MILIEU SOL	
Nature du sol (granulométrie, minéralogie, composition chimique globale)	Influe sur les phénomènes de sorption du contaminant : fonction du contenu en carbone organique, en minéraux argileux (fraction de taille inférieure à 2 μm), en oxydes et hydroxydes métalliques, en carbonates et en silicates. Influe sur le transfert du contaminant dans le milieu : la convection, la dispersion et la diffusion.
Porosité / Perméabilité du sol	Influe sur le transfert du contaminant dans le

Propriétés du milieu	Influences sur les processus de l'atténuation naturelle
	milieu : la convection, la dispersion et la diffusion.
Teneur en eau	Influe sur le transfert du contaminant dans le milieu : la convection, la dispersion et la diffusion. Influe sur la dissolution et l'hydrolyse du contaminant. Influe sur l'activité microbienne et donc sur la biodégradation du contaminant.
Conditions d'oxydo-réduction	Influe sur la mobilité des métaux. Influe sur la dégradation abiotique de certains polluants organiques
pH	Influe sur la solubilité des métaux. Influe sur les phénomènes de sorption. Influe sur la présence et le développement microbien, donc sur la biodégradation du contaminant
Capacité d'échange cationique	Influe sur les phénomènes de sorption des contaminant cationiques (métaux lourds).
Présence d'une population microbienne	Influe sur la biodégradation du contaminant.
Disponibilité en éléments nutritifs	Influe sur le développement de la population microbienne présente dans le sol, donc sur la biodégradation du contaminant.

Tableau 2 : Influence des propriétés du milieu sur les processus d'atténuation naturelle

2.2. L'ATTENUATION NATURELLE DES SOLVANTS CHLORES

Les solvants chlorés sont des liquides incolores qui appartiennent à la famille des composés organo-halogénés volatils (COV). Ils sont composés d'un ou deux atomes de carbone possédant un ou plusieurs atomes de chlore. Les solvants chlorés les plus fréquemment utilisés sont donnés dans le tableau 3 :

Famille	Nom
Chlorométhanes	Dichlorométhane Trichlorométhane (ou chloroforme) Tétrachlorométhane (ou tétrachlorure de carbone)
Chloroéthanes	1,1-dichloroéthane 1,2-dichloroéthane 1,1,1-trichloroéthane
Chloroéthènes	1,2-dichloroéthylène Trichloroéthylène Tétrachloroéthylène (ou perchloroéthylène)

Tableau 3: Solvants chlorés les plus fréquemment utilisés

2.2.1. Propriétés et comportement

Les principales caractéristiques physico-chimiques des solvants chlorés sont :

- une solubilité dans l'eau faible, mais cependant non négligeable ;
- une masse volumique élevée donnant des produits assez denses ;
- une volatilité importante ;
- une faible viscosité ;
- une adsorption en général faible, hormis sur la matière organique ;
- une biodégradabilité significative.

A titre indicatif, le tableau 4 donne les grandeurs physico-chimiques de cinq principaux solvants chlorés :

Grandeurs caractéristiques	Trichloro 1,1,1 éthane	Trichloro-éthylène	Tétra-chloro-éthylène	Chloro-forme	Tétra-chlorure de Carbone
Solubilité dans l'eau (mg/l)	950 (à 20 °C)	1000 (à 20 °C)	150 (à 25 °C)	8000 (à 20 °C)	800 (à 25 °C)
Densité du liquide par rapport à l'eau	1,325	1,465	1,623	1,489	1,594
Viscosité dynamique (cP) à 20°C	0.860	0.580	0.880	0.580	0.970
Pression de vapeur (Pa)	13300 (à 20 °C)	7710 (à 20 °C)	5466 (à 40 °C)	21300 (à 20 °C)	11940 (à 20 °C)
Température d'ébullition (°C) (1 atm)	74	87	121	61	77
Constante de Henry (Pa.m ³ /mol)	1216	719	1216	253	2128
Densité des vapeurs, par rapport à l'air	4,60	4,45	5,80	4,12	5,30
Coefficient de partage eau/octanol (logKow)	2,49	2,29	2,60	1,97	2,73
Coefficient de partage eau/carbone organique (log Koc)	2.18	2.10	2.56	1,67	-

Tableau 4 : Synthèse des grandeurs physico-chimiques des solvants chlorés (DNAPL), (ANTEA, 1994)

Ces solvants rentrent dans la famille des DNAPL (Dense Nonaqueous Phase Liquids) dont le comportement dans l'environnement peut être décrit comme suit :

La distribution des DNAPL est fortement contrôlée par les variations du milieu récepteur (composition du milieu, géologie, etc.). Ce sont des composés relativement

solubles dans l'eau qui présentent une volatilité importante. Celle-ci génère, dans la zone non saturée et en surface de nappe, l'accumulation de vapeurs (en raison d'une densité des vapeurs de 3 à 6 fois supérieure à celle de l'air). Leur affinité pour la matrice solide est relativement faible, et leur densité est supérieure à 1, ce qui contribue à favoriser leur écoulement vers le substratum de l'aquifère. Cette migration génère au fur et à mesure un corps d'imprégnation qui se solubilise progressivement dans la nappe. Ils continuent à se déplacer jusqu'à ce qu'ils aient atteint le substratum ou une formation imperméable. Ils peuvent alors rester piégés dans les irrégularités du substratum ou bien migrer dans le sens du pendage de celui-ci, éventuellement dans le sens contraire de la direction générale de l'écoulement de la nappe.

Dans la zone non saturée, les solvants chlorés sont généralement sous forme gazeuse à des concentrations relativement importantes selon la proximité de la source de pollution. Ils peuvent également être sous forme dissoute dans l'eau interstitielle ou s'infiltrer dans les sols.

2.2.2. Processus mis en jeu

Les principaux processus intervenant dans l'atténuation naturelle des solvants chlorés sont :

- La dispersion ;
- La volatilisation ;
- La biodégradation ;
- La sorption.

En conditions abiotiques, seul le Trichloro 1,1,1 éthane est capable de se dégrader (Mc Carty, 1997). En revanche, la majeure partie des solvants chlorés est susceptible de se biodégrader, surtout en conditions anaérobies (cf. tableau 5).

Conditions	Tétrachlorure de Carbone	Trichloro-éthylène	Tétrachloro-éthylène	1,1,1-Trichloroéthane
Biotiques Aérobie /				
Substrat principal	Non	Non	Non	Non
Co-metabolisme	Non	Non	Oui	Possible
Biotiques Anaérobie /				
Substrat principal	Possible	Oui	Oui	Possible
Co-metabolisme	Oui	Oui	Oui	Oui
Métabolites toxiques	Oui	Oui	Oui	Oui
Abiotiques	Possible	Non	Non	Oui

Tableau 5 : Dégradation des solvants chlorés en fonction des conditions du milieu

La biodégradation s'effectue principalement par **déhalogénéation réductrice** qui se résume par l'expulsion de chlore du solvant et qui est plus ou moins efficace selon les

conditions du milieu : présence de carbone organique représentant une source d'énergie pour la population microbienne, etc.... Les molécules les plus chlorées sont plus sujettes au processus de déhalogénéation réductive et se dégradent de façon séquentielle en d'autres composés halogénés volatils appelés métabolites. Dans les milieux pollués, les solvants les plus chlorés sont situés au centre du panache de pollution (au niveau de la source) et les moins chlorés sont vers l'extérieur (cf. figure 1).

Exemple du perchloroéthylène :

↓
 Perchloroéthylène
 Trichloroéthylène
 Dichloroéthylène
 Chlorure de vinyle
 ↓
 Ethylène

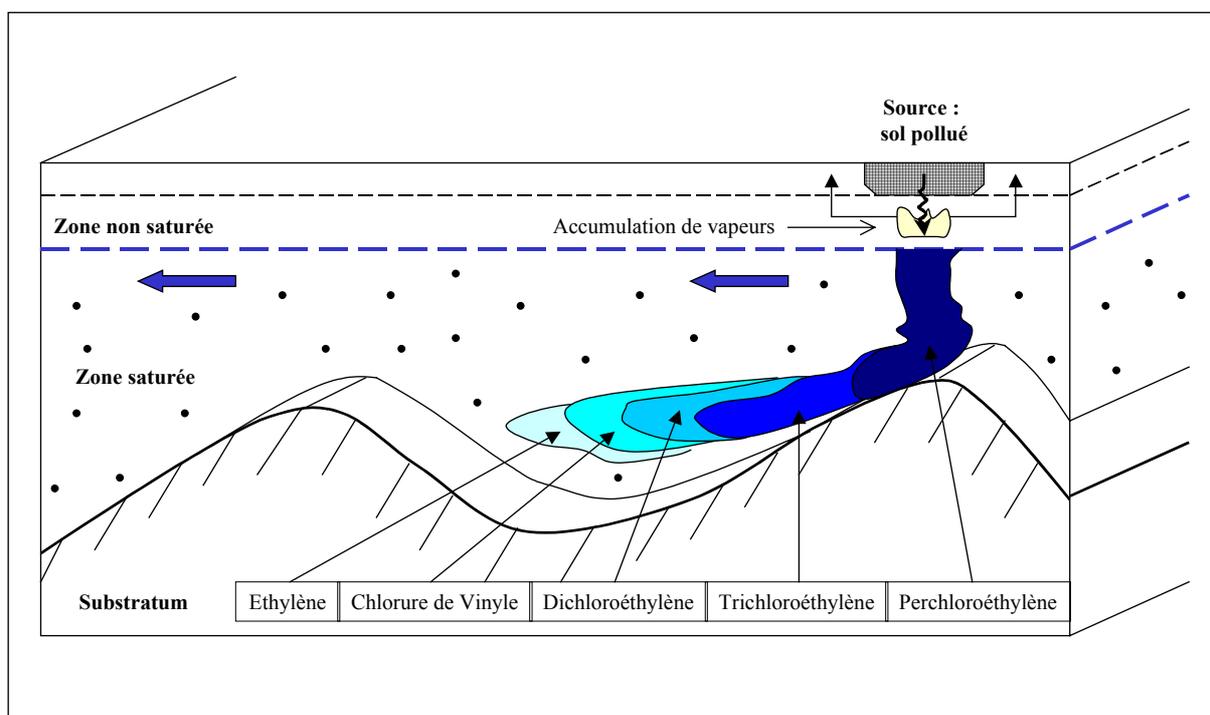


Figure 1 : Exemple de biodégradation de solvants chlorés dans le milieu eaux souterraines

Exemple du tétrachlorure de carbone :

↓
 Tétrachlorure de carbone
 Chloroforme
 Dichlorométhane
 Chlorométhane
 ↓
 Méthane

La figure 2 présente l'évolution temporelle d'une pollution par solvants chlorés. La mise en évidence dans l'aquifère de ces séquences est un bon indice pour mesurer l'existence réelle de l'atténuation naturelle.

Ces processus biotiques peuvent se dérouler en conditions aérobies et anaérobies. En conditions aérobies, seuls le tétrachloroéthylène et le Trichloro 1,1,1 éthane sont susceptibles de se biodégrader. Les conditions anaérobies sont plus favorables et permettent la biodégradation de la plupart des autres solvants chlorés.

Dans ce processus **anaérobie**, le solvant halogéné est utilisé comme accepteur d'électrons pour l'oxydation du carbone organique (Bouwer, 1994). La disponibilité de celui-ci (donneur d'électrons), sous forme de carbone organique dissous ou de carbone organique total, constitue dans le cas des solvants chlorés le facteur limitant de la biodégradation. Les conditions rédox optimales pour faciliter la déhalogénéation réductive des solvants chlorés sont dans le domaine de la réduction des sulfates ou de la méthanogénèse (Bouwer, 1994). Cependant, on peut également l'observer dans les conditions de réduction du fer ou du nitrate.

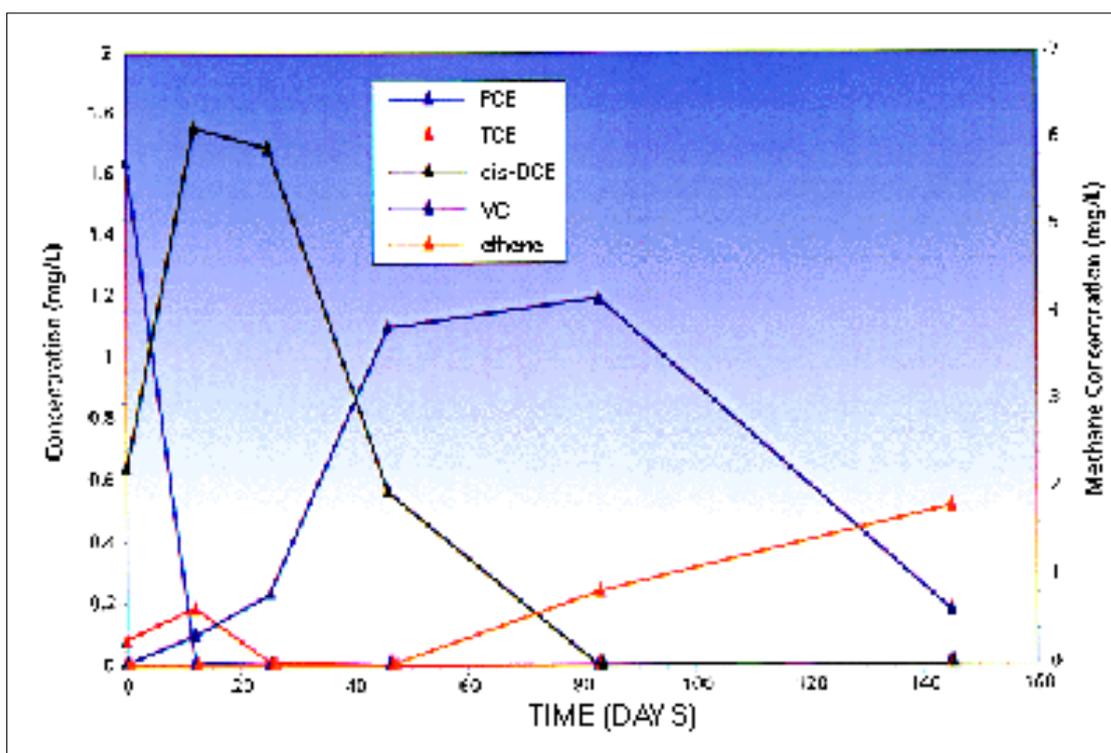


Figure 2 : Mise en évidence de l'atténuation naturelle du PCE au laboratoire : évolution temporelle

La déhalogénéation réductive n'est pas le seul mécanisme mis en évidence pour la dégradation des solvants chlorés. En **conditions oxydantes**, les hydrocarbures haliphatiques les moins oxydés, tel que le chlorure de vinyle ou le 1,2 dichloroéthane, peuvent être utilisés par les microorganismes comme substrats de croissance (Mc Carty, 1994). Ces auteurs indiquent que le 1,2 dichloroéthane a la faculté d'être utilisé comme

substrat primaire en conditions oxydantes comme conditions réductrices. Le chlorure de vinyle également peut encore se minéraliser dans des conditions modérément réductrices (réduction en fer), si le Fer III est suffisamment biodisponible (Bradley et Chapelle, 1996). On a également reporté des cas de minéralisation du dichloroéthylène en gaz carbonique dans des conditions aérobies, de ferriréduction ou de méthanogénèse (Klier et al, 1998, Bradley et Chapelle, 1997).

Enfin, les solvants chlorés peuvent être dégradés par **co-métabolisme**. Ce mécanisme de dégradation est lié à la production d'une enzyme ou d'un cofacteur, nécessaires au développement des microorganismes, qui se trouvent être capables de dégrader des solvants chlorés. Cette biodégradation a un caractère fortuit, la dégradation n'apportant aucun bénéfice, ni énergétique, ni nutritionnel, aux organismes. Au contraire, il peut arriver que les produits de dégradation du solvant chloré par réaction co-métabolique soient toxiques pour les populations microbiennes et inhibent leur croissance (Mc Carty, 1994). La dégradation par co-métabolisme est mieux connue en condition aérobie, mais a aussi été observée en condition anaérobie. Tous les éthènes chlorés, à part le trichloroéthylène, sont réputés comme être dégradables par co-métabolisme.

2.3. L'ATTENUATION NATURELLE DES METAUX / METALLOÏDES

Les métaux sont des corps simples caractérisés par leur éclat, leur pouvoir réflecteur, leur conductibilité thermique et électrique. Ils ont tendance à perdre des électrons et diffèrent en cela des non-métaux. La plupart des métaux cristallisent dans des systèmes simples à structure très compacte. Un métalloïde est un élément intermédiaire entre un métal et un non-métal.

Les éléments majeurs métalliques les plus fréquemment rencontrés dans les sols sont le fer (Fe), le magnésium (Mg) et l'aluminium (Al). Les éléments traces métalliques retenus par l'Observatoire de la Qualité des Sols en raison de leur toxicité potentielle sont le cadmium (Cd), le cobalt (Co), le chrome (Cr), le cuivre (Cu), le nickel (Ni), le plomb (Pb) et le zinc (Zn). Les métaux sont essentiellement présents sous forme de cations dans l'eau du sol. L'arsenic est le principal métalloïde qui pose des problèmes environnementaux.

L'origine des éléments traces métalliques et des métalloïdes dans l'environnement peut être naturelle par l'altération des roches qui entraîne leur libération, et/ou anthropique. Les activités industrielles sont la principale origine de la pollution des sols par des composants métalliques. En voici quelques exemples :

- Métallurgie et fonderie : Fe, Mn, Pb, Zn, Cd, Cr et Ni ;
- Incinérateurs de déchets : Cd, Cu, Cr et Pb ;
- Combustion de matériaux fossiles et de carburants : As, Hg et Pb ;
- Extractions minières : As, Pb, Zn et Ni ;
- Traitement et épandage de déchets, utilisation de fertilisants et phytosanitaires en agriculture : As, Cd, Mn, Cu, Pb et Zn.

Contrairement aux substances organiques, l'atténuation naturelle des métaux et métalloïdes ne se traduit pas par une disparition du polluant. Le métal est toujours présent mais sous une autre forme chimique (spéciation), parfois moins mobile et/ou moins toxique.

2.3.1. Propriétés

Les propriétés physiques d'un métal, en partie sa conductivité, s'expliquent par la nature de la liaison entre ses atomes. Dans la liaison métallique, les électrons cédés par les atomes constituent un nuage électronique qui se déplace librement dans le cristal entre les interstices laissés par les ions.

Les propriétés mécaniques des métaux (dureté, résistance et malléabilité) sont étroitement liées à leur texture cristalline. Les métaux ont la propriété de former des alliages entre eux ou avec certains non-métaux. Certains possèdent par ailleurs d'importantes propriétés magnétiques. Les atomes métalliques peuvent former, par association avec d'autres atomes, des complexes plus ou moins stables. Les métaux entrent sous forme d'oligo-éléments dans la composition des organismes vivants.

Dans les sols, les métaux et les métalloïdes peuvent être en solution, en suspension dans la phase aqueuse, liés aux fractions solides (minérales ou organiques), ou dans la phase atmosphériques pour certains.

2.3.2. Processus mis en jeu

Il n'est pas évident de généraliser l'atténuation naturelle des métaux et métalloïdes compte tenu des propriétés physico-chimiques propres à chaque élément qui peut être présent sous différentes formes ayant elles-mêmes des caractéristiques différentes. Leur mobilité, leur disponibilité et leur toxicité vont dépendre donc de la forme chimique sous laquelle ils se trouvent.

La mobilité des polluants et leur stabilité dépendent de leur état, des conditions de processus physiques, chimiques, mais aussi biologiques qui conduisent au transfert des éléments entre les phases solides et les phases fluides (phase aqueuse principalement). Il s'agit donc de phénomènes de solubilisation et de précipitation/coprécipitation. Le transport des polluants par voie particulaire apparaît comme important dans la zone non saturée (ruissellement, lessivage, érosion, colloïdes, etc...), et peut ainsi induire un risque important de transfert vers d'autres milieux.

Deux catégories de phénomènes peuvent être notées dans l'atténuation naturelle des métaux : réactions abiotiques (physico-chimiques) et/ou réactions biotiques (interventions de microorganismes).

Réactions physico-chimiques

Les principaux mécanismes abiotiques de mobilisation des métaux sont cités ci-après :

- Adsorption / désorption ;
- Précipitation/dissolution ;
- Complexation² ;
- Dispersion ;
- Dilution.

L'adsorption/désorption des métaux sur les phases solides est un processus significatif qui s'effectue par simple compétition avec les autres ions en solution. Elle est fortement influencée par les conditions physico-chimiques du milieu (cf. tableau 6) :

Propriétés physico-chimiques	Processus
Augmentation de la salinité (force ionique)	Augmente la capacité d'échange cationique/anionique qui peut provoquer une désorption de certains cations et une adsorption d'autres cations présents dans la solution ; Peut limiter la solubilisation de certaines phases minérales.
Variations du pH (conditions acido-basiques)	La diminution du pH conduit à : <ul style="list-style-type: none"> - une libération ou lixiviation des métaux présents sous forme cationiques ; - une augmentation de l'adsorption de certains anions (As). L'augmentation du pH favorise la sorption des cations et la précipitation d'hydroxydes métalliques.
Potentiel de réduction d'oxydo-	Modifie le degré d'oxydation du métal (Cr(VI)/Cr(III), Fe(III)/Fe(II), Mn(IV)/Mn(II), As(V)/As(III)), et donc influe sur la mobilité du métal et la toxicité. Exemple : les oxydes de Fe et de Mn sont solubilisés en milieu réducteur libérant ainsi leur métal associé, alors que les sulfates sont réduits en sulfures qui précipitent, rendant insolubles ainsi les métaux.
Présence de ligands organiques ou minéraux	En solution, les ions libres forment des complexes solubles avec les ligands (Cl ⁻ , OH ⁻ , etc...) et peuvent influencer sur la mobilité des métaux.

Tableau 6 : Influence des propriétés du milieu sur l'atténuation naturelle des métaux

Interventions de microorganismes

Les microorganismes contribuent de façon directe ou indirecte à la solubilisation des éléments métalliques, mais jouent également un rôle dans leur immobilisation par des phénomènes de sorption ou de précipitation.

² Les substances humiques en phase solide et liquide, ainsi que certains constituants organiques du sol ont la capacité de former des complexes avec les métaux et empêcher leur adsorption ou leur précipitation.

Solubilisation des éléments métalliques

Les paramètres physico-chimiques décrits précédemment conditionnent fortement l'activité des micro-organismes présents dans les sols. Ces micro-organismes qui interviennent dans la transformation des phases porteuses de polluants, influencent directement les cycles biogéochimiques des métaux. Voici quelques exemples de mécanismes de solubilisation de métaux et d'éléments métalliques générés par des micro-organismes :

- la réduction de Fe et de Mn engendre une dissolution des oxydes et une solubilisation des éléments métalliques associés, notamment ceux sorbés sur ces phases ;
- l'oxydation de Fe et de S provoque la dissolution des sulfures et la solubilisation des éléments métalliques associés ;
- l'acidification du milieu et la production de composés complexants amènent une dissolution des silicates, phosphates, carbonates, oxydes et sulfures, dont ceux associés à des métaux (plomb par exemple).

Phénomènes de sorption

La **biosorption** ou accumulation passive de métaux à la surface de cellules vivantes ou mortes est la fixation des cations sur les parois cellulaires grâce aux protéines, lipides et polysaccharides qui les composent. La biosorption peut être importante pour la capture des métaux.

2.4. L'ATTENUATION NATURELLE DES HAP

Les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) sont des molécules organiques comportant plusieurs noyaux benzéniques. Leur présence dans l'environnement peut être d'origine naturelle, issue de l'activité volcanique ou de la formation de combustibles fossiles, et/ou d'origine anthropique, liée à l'activité industrielle houillère et pétrochimique (cokeries et usines à gaz) et à l'activité domestique (chauffage individuel, ...).

Les seize HAP retenus comme polluants prioritaires par la Communauté Européenne et l'Agence de Protection de l'Environnement Américaine (US-EPA) sont présentés dans le tableau ci-dessous :

Famille	Nom
HAP à 2 cycles	Naphtalène (NAP)
HAP à 3 cycles	Acénaphthylène (ACY) Acénaphène (ACE) Fluorène (FLU) Phénanthrène (PHE) Anthracène (ANT)
HAP à 4 cycles	Fluoranthène (FLT) Pyrène (PYR) Benzo(a)anthracène (BaANT) Chrysène (CHY)
HAP à 5 cycles	Benzo(b)fluoranthène (BdFLT) Benzo(k)fluoranthène (BkFLT) Benzo(a)pyrène (BaPYR) Dibenzo(a, h)anthracène (dBahANT)
HAP à 6 cycles	Benzo(g, h, i)pérylène(BghiPL) Indeno(1, 2, 3-cd)pérylène (IcdPYR)

Tableau 7 : les seize HAP retenus comme polluants prioritaires par la Communauté Européenne et l'Agence de Protection de l'Environnement Américaine (US-EPA)

Ce rapport ne parlera que de ces 16 HAP.

2.4.1. Propriétés et comportement dans l'environnement

Les propriétés physico-chimiques des HAP sont conditionnées par le nombre de leurs noyaux benzéniques. Leurs principales caractéristiques sont :

- Une faible solubilité à l'eau ;
- Une forte hydrophobicité ;
- Une volatilité faible, sauf pour le naphtalène ;
- Une persistance dans les sols caractérisée par le temps de demi-vie ;
- Une forte toxicité pour la santé et l'environnement.

Comme pour les métaux et les métalloïdes, les hydrocarbures aromatiques polycycliques peuvent être présents dans toutes les phases du sol. Toutefois, du fait de leur faible solubilité et de leur grande hydrophobicité qui leur permet d'être fortement lié à la phase solide, seule une petite fraction de ces molécules se trouve dans la phase aqueuse. Les HAP ont tendance à former des liaisons fortes avec d'autres constituants hydrophobes présents dans les sols (matières organiques). Certains peuvent ainsi se stabiliser dans les sols et sédiments pour persister pendant de nombreuses années. Le tableau 8 présente les propriétés physico-chimiques des 16 HAP de la liste de l'EPA:

Nombre de Cycles	HAP (US EPA)	Poids moléc. (g/mol)	Temp. de fusion (°C)	Temp. éréature d'ébullition (°C)	Solubilité dans l'eau (25°C,mg/l)	Constante de Henry (Pa m ³ /mol)
2	Naphtalène	128,19	80	218	31,0	43,08
3	Acénaphtylène	152,2	92	270	16,1	8,39
	Acénaphène	154,21	96	277,5	3,8	12,16
	Fluorène	166,2	116	295	1,9	7,9
	Anthracène	178,2	216	340	0,045	3,96
	Phénanthrène	178,2	101	339	1,1	3,24
4	Fluoranthène	202,3	111	375	0,26	1,03
	Pyrène	202,3	149	360	0,132	0,92
	Benzo(a)anthracène	228,3	158	435	0,011	0,58
	Chrysène	228,3	255	448	0,0015	0,45
5	Benzo(a)pyrène	252,3	179	496	0,0038	0,0046
	Benzo(b)fluoranthène	252,32	167	481	0,0015	1,2159
	Dibenzo(ah)anthracène	278,4	262	524	0,0005	0,0076
	Benzo(k)fluoranthène	252,32	217	481	0,0008	0,0016
6	Benzo(ghi)perylène	268,36	163	525	0,0003	0,075
	Indeno(1,2,3-cd)pyrène	276,3	222	536	0,062	0,05 10 ⁻⁶

Tableau 8 : Propriétés physico-chimiques des 16 HAP de la liste de l'EPA (d'après Mossman & Lors, 2002)

Le devenir des HAP dépend de leur concentration dans les différentes phases, de leur nature, de leur rétention dans la phase solide et donc de leur persistance. La rétention des HAP conditionne leur disponibilité et est caractérisée par le coefficient d'adsorption, lui-même fortement corrélé à la teneur en matière organique.

2.4.2. Processus mis en jeu

Il existe quatre voies principales de dissipation des HAP dans le sol, qui sont :

- La volatilisation ;
- La photolyse ;
- L'adsorption par la phase solide ;
- La biodégradation.

Il s'agit de processus abiotiques et biotiques. L'adsorption par la phase solide et la biodégradation restent les phénomènes majeurs d'atténuation des HAP dans les sols.

Processus abiotiques

Volatilisation

Le seul HAP ayant une constante de Henry élevée (cf. tableau 8), et donc une volatilité importante, est le naphtalène.

Photolyse

La photolyse, décomposition chimique de substances sous l'action de la lumière, peut être importante pour la destruction des HAP localisés dans les premiers centimètres du sol.

Adsorption

Les HAP sont peu solubles et présentent une forte hydrophobicité, ce qui leur permet d'être fortement lié à la phase solide et principalement avec ses constituants organiques. Il est fréquent que certains hydrocarbures aromatiques polycycliques s'accumulent dans les sols et sédiments et se stabilisent en formant des résidus liés. La formation de ces résidus liés est due à l'incorporation du polluant, par liaison chimique, dans la structure de la matière organique du sol pollué (Saada, 2000). Les résidus liés peuvent être libérés par minéralisation des composés auxquels ils sont associés et représenter un risque de pollution à long terme.

Processus biotiques

Biodégradation

La biodégradabilité des HAP est fonction du coefficient de partition octanol/eau qui caractérise l'hydrophobicité : plus le coefficient est important, plus le composé est hydrophobe et moins il sera biodégradable. De même, les HAP ayant un fort poids moléculaire résistent plus à la dégradation.

Les HAP, jusqu'à 5 cycles, sont intrinsèquement dégradables, et peuvent directement être utilisés comme substrat organique par certaines espèces de micro-organismes (bactéries ou champignons) en milieu aérobie (essentiellement) ou anaérobie. La destruction des HAP par des micro-organismes résulte d'une simplification moléculaire noyau par noyau, et conduit à la formation de produits de dégradation (métabolites) dont la structure chimique est différente de la molécule mère. Les métabolites néoformés sont généralement plus solubles, et par conséquent plus mobiles, et présentent une toxicité différente de celle des HAP initiaux. Ces métabolites peuvent eux - même se dégrader et se minéraliser. Ils peuvent également s'accumuler dans les sols si leur cinétique de dégradation est plus lente que leur cinétique d'apparition.

L'adsorption sur la phase solide et la biodégradation sont les phénomènes majeurs d'atténuation naturelle des HAP. L'adsorption augmente, tandis que la solubilité et la biodégradation diminuent avec le nombre de cycles des HAP. Ces deux modes d'atténuation naturelle entrent en compétition l'un avec l'autre, l'adsorption limitant la biodisponibilité des HAP (Dictor *et al.* 2002). L'âge de la pollution est également une limite à la biodisponibilité des HAP, essentiellement en permettant aux polluants d'accéder à des sites d'adsorption peu accessibles aux microorganismes.

Le principal écueil à la mise en évidence de l'atténuation naturelle des HAP réside dans le fait que, sur les sites pollués, les HAP sont issus de dépôts historiques de culots de distillation. Dans ces culots, les HAP sont accompagnés d'une multitude d'autres molécules organiques lourdes réfractaires à la distillation, et par conséquent non valorisables. De plus, pour chacune de ces nombreuses molécules, différentes voies de dégradation co-existent, en fonction des bactéries présentes. De ce fait, il semble difficile de mettre en évidence l'atténuation naturelle des HAP par l'apparition de métabolites, comme cela est le cas pour les solvants chlorés. Ainsi, seule une diminution des quantités en polluants, accompagnée de la détection de bactéries dégradantes et d'une diminution de la toxicité associée au cours du temps peut indiquer la possibilité d'atténuation naturelle des HAP.

3. Solutions retenues par les autres pays

Dans la mesure où l'atténuation naturelle peut être considérée comme un moyen potentiel de réhabiliter un site, son application peut être envisagée, au même titre que d'autres techniques de traitement. Pour cela, certaines conditions apparaissent nécessaires, comme l'ont défini certains protocoles étrangers.

3.1. ETATS-UNIS

3.1.1. Situation actuelle

Depuis le nouvel intérêt d'utiliser l'atténuation naturelle en tant que stratégie de décontamination des sites, de nombreux guides d'évaluation du potentiel d'atténuation naturelle ont été développés aux Etats-Unis. Que les auteurs soient des organismes fédéraux ou nationaux, des entreprises privées ou des associations de la profession industrielle, il existe de nombreux protocoles et leur nombre augmente d'année en année. Il faut noter que ces organismes ne disposent pas d'outil méthodologique commun de gestion des sites, ce qui peut expliquer la multiplicité de ces protocoles. Un protocole peut être défini comme un plan de stratégie, une méthodologie à suivre pour le bon emploi de l'atténuation naturelle comme technique de réhabilitation. Voici en exemple, quelques-uns de ces auteurs :

- Environmental Protection Agency (EPA) ;
- Department of Energy ;
- US Air Force ;
- US Navy ;
- Minnesota Pollution Control Agency ;
- Chevron ;
- American Society for Testing and Materials (ASTM) ;
- American Petroleum Institute.

De façon générale et commune aux différents organismes, trois étapes sont toujours identifiées dans la mise en évidence du potentiel d'atténuation naturelle sur un site contaminé :

- Développement de modèles conceptuels de l'hydrogéologie du site et des réactions bio-géochimiques à son aplomb ;
- Analyse des mesures effectuées sur le site afin de quantifier les processus d'atténuation naturelle (évolution spatiale et temporelle des contaminants et de leurs empreintes) ;
- Etablissement d'un programme de surveillance à long terme de façon à vérifier les résultats attendus.

Aucun des protocoles existants, autres que ceux réalisés par l'EPA (EPA, 1999 ; Todd H., 1998 ; EPA, 1997) n'est officiellement reconnu. L'EPA est actuellement sollicité

pour l'élaboration de guides nationaux pour les protocoles de l'atténuation naturelle en collaboration avec l'ensemble des acteurs.

Les protocoles actuellement disponibles aux Etats-Unis sur l'atténuation naturelle ne concernent que la classe des contaminants organiques et uniquement les hydrocarbures et les solvants chlorés. **A ce jour, aucun protocole pour les hydrocarbures aromatiques polycycliques et les métaux n'a été élaboré.**

3.1.2. Synthèse de protocoles pour les solvants chlorés

Un document (ITRC et RTDF, 1999) sur les principes et pratiques de l'atténuation naturelle des solvants chlorés dans les nappes a été réalisé en 1999 par l'Interstate Technology and Regulatory Work group (ITRC), organisation créée en 1995 qui associe 27 états, et par l'Industrial Members of the Remediation Technologies Development Forum (RTDF), et faisant collaborer des personnes des secteurs privé et public. Une méthode d'approche de l'évaluation de l'atténuation naturelle des solvants chlorés y est proposée et est décrite ci-après. Il s'agit d'une compilation des recherches réalisées par le RTDF sur le sujet, de connaissances et d'expériences recueillies auprès des membres du RTDF.

Trois faisceaux de présomption (*lines of evidences*) sont généralement reconnus pour l'évaluation du potentiel d'atténuation naturelle sur un site contaminé, il s'agit de :

- Confirmation de la réduction de masse du contaminant sur le site ;
- Présence et distribution d'indicateurs géochimiques et biologiques de l'atténuation naturelle ;
- Potentiel microbiologique évident.

Une méthode en 9 étapes est proposée. Celle-ci a pour objectifs de guider la collecte des données qui permettra de vérifier les trois points précédents, et de mettre au point un programme de dépollution de site et de suivi à long terme de l'atténuation naturelle. Les différentes étapes sont présentées ci-dessous :

- **Etape 1 : Collecter les données disponibles sur le site** : si le site a déjà été caractérisé, alors passage à l'étape 2 ; sinon caractérisation du site ;
- **Etape 2 : Collecter et/ou développer des modèles conceptuels sur le site** : si des modèles conceptuels sur le site sont déjà existants, alors passage à l'étape 3 ; sinon développement de modèles conceptuels ;
- **Etape 3 : Analyser les données existantes qui prouvent l'atténuation naturelle et soumettre des hypothèses sur les processus existants** : s'il existe des données mettant en évidence la perte de masse du contaminant et la présence d'indicateurs géochimiques et biologiques de l'atténuation naturelle, alors proposition d'hypothèses concernant les processus mis en œuvre puis passage à l'étape 4 ; sinon passage à l'étape 8 ;

- **Etape 4 : Identifier les données complémentaires à recueillir** : sélectionner les données complémentaires nécessaires pour confirmer les informations existantes et tester les hypothèses émises sur les processus de l'atténuation naturelle ;
- **Etape 5 : Collecte des données complémentaires** ;
- **Etapes 6 : Ajuster le modèle conceptuel du site** : le modèle conceptuel doit être revu en intégrant les nouvelles données ;
- **Etape 7 : Interpréter les données et tester les hypothèses** : si le modèle conceptuel élaboré avec les nouvelles données concorde avec les hypothèses émises à l'étape 3, alors passage à l'étape 8 ; sinon revoir les hypothèses et refaire les tests (étape 4) ;
- **Etape 8 : Conforter le modèle vis à vis des cibles potentielles** : le modèle conceptuel doit être examiné en considérant les risques sur la santé et sur l'environnement. Si l'atténuation naturelle est reconnue comme suffisante pour réduire le risque et si aucun autre moyen n'existe, alors passage à l'étape 9, sinon évaluation d'autres options (avec une éventuelle intégration de l'atténuation naturelle selon les coûts engagés) ;
- **Etape 9 : Intégrer l'atténuation naturelle dans le plan de suivi à long terme du site.**

Un exemple de protocole de remédiation intrinsèque est fourni en annexe 1.

3.1.3. Un exemple de protocole, celui de l'American Society for Testing and Material (ASTM)

Il s'agit plutôt une stratégie d'appréciation s'articulant sur plusieurs étapes (annexe 2). Son principal critère de décision de prise en compte de l'atténuation naturelle contrôlée est basée sur l'observation du comportement du panache de pollution et plus particulièrement sur sa stabilité.

Le premier faisceau de présomption de l'approche de l'ASTM est de savoir si le panache de pollution s'étend ou se rétrécit. Un panache de pollution qui se rétrécit est une preuve que les processus de l'atténuation naturelle ont lieu. Un panache stable indique que la vitesse de l'atténuation naturelle est égal à la vitesse de migration des contaminants. Ce premier faisceau de présomption est considéré suffisant pour démontrer l'action de l'atténuation naturelle contrôlée sur les sites en utilisant des données historiques adéquates.

Le second faisceau de présomption est nécessaire si le premier faisceau de présomption n'est pas adéquate ou non concluant. Il inclut la mesure de la vitesse de l'atténuation naturelle et/ou des données géochimiques qui démontrent l'action d'une biodégradation.

Le troisième faisceau de présomption est optionnel et n'est demandé que si le premier et le deuxième faisceau de présomption ne sont suffisants pour tirer des conclusions. Il considère la modélisation du transport des solutés et des études microbiologiques plus approfondies.

3.2. GRANDE BRETAGNE

3.2.1. Protocole de l'English and Welsh Environment Agency

La prise en compte de l'atténuation naturelle pour le traitement de pollution de nappes, qu'elle soit seule ou en association avec d'autres traitements, a considérablement augmenté depuis quelques années au Royaume Uni. L'atténuation naturelle est prise en compte en Angleterre et au Pays de Galles sur la base des principes de l'évaluation et sur le contrôle du risque. Un guide (Carey M. A., *et al*, 2000) sur l'évaluation et la surveillance de l'atténuation naturelle de contaminants dans les eaux souterraines a été publié en juin 2000 par l'*English and Welsh Environment Agency*. **Une distinction importante y est faite entre les termes « atténuation naturelle » et « atténuation naturelle contrôlée ». Le premier désigne l'ensemble des processus naturels, alors que le second fait référence à son utilisation en tant que technique de dépollution.**

Les principaux critères retenus par l'*English and Welsh Environment Agency* pour la reconnaissance du potentiel de l'atténuation naturelle contrôlée sont :

- L'atténuation naturelle devra être démontrée de façon évidente sur le site (cela requiert un temps minimum de 2 à 3 ans de recueil de données). Pendant toute la période de la mise en évidence du phénomène, il sera également important de prouver que les cibles ne courent aucun risque. Cette phase se distingue de celle du suivi à long terme du site qui a pour objectif de démontrer l'efficacité continue de l'atténuation naturelle ;
- L'atténuation naturelle se montrera efficace pour la protection des cibles (eaux souterraines et eaux de surface) pendant toute la durée du contrôle (et au-delà) et aucune expansion significative du panache de pollution ne doit apparaître au sein de la nappe ;
- Les processus d'atténuation naturelle devront être contrôlés (le réseau de contrôle permettra de vérifier que l'atténuation naturelle s'effectue selon les attentes définies au préalable) ;
- Les objectifs de décontamination s'achèveront dans un laps de temps raisonnable, ne dépassant pas une génération ou 30 ans, ne devant pas être excessivement long en comparaison des autres techniques de dépollution ordinairement utilisées.

Chacun de ces critères varie selon les cas d'études. Comme pour les Etats-Unis, des faisceaux de présomption (*lines of evidence*) sont utilisées de façon à estimer le potentiel d'atténuation naturelle sur un site contaminé ; il s'agit de :

- Confirmation de la réduction de masse du contaminant sur le site ;
- Présence d'indicateurs géochimiques et biologiques prouvant que l'atténuation naturelle intervient dans la réduction de la concentration du contaminant ;
- Potentiel microbiologique permettant la biodégradation.

L'évaluation de ces preuves demande généralement une connaissance des caractéristiques biologiques, géochimiques et hydrogéologiques du site.

Le guide considère les trois types de contaminants étudiés qui sont les solvants chlorés, les métaux et les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP).

Quatre étapes à suivre sont décrites pour la mise en évidence du potentiel d'atténuation naturelle dans les eaux souterraines. Chacune des étapes est explicitée dans l'annexe 3.

- 1- Appréciation de la fiabilité de l'atténuation naturelle (*Screening stage*) ;
- 2- Démonstration des caractéristiques propres de l'atténuation naturelle (*Demonstration stage*) ;
- 3- Evaluation du potentiel d'atténuation naturelle à long terme (*Assessment stage*) ;
- 4- Vérification que les résultats sont en accord avec les objectifs de décontamination fixés (*Implementation-Performance Monitoring Stage*).

Il y aurait, selon l'*English and Welsh Environment Agency*, 4 à 5 cas d'étude utilisant l'atténuation naturelle comme technique de dépollution en Angleterre et au Pays de Galle. Toutefois, ces cas d'étude ne concernent pas les trois types de contaminants retenus (solvants chlorés, métaux et HAP) mais portent sur les BTEX³, les phénols et les MTBE⁴.

3.2.2. Projet SIREN

Le projet SIREN (Site for Innovative Research into Monitored Natural Attenuation) est un projet national pour la recherche sur l'atténuation naturelle contrôlée selon le contexte anglais. Il s'agit d'une collaboration entre l'*Environment Agency*, *Shell Global Solutions* et *AEA Technology Environment*. Ce projet a pour objectif de promouvoir le développement et la compréhension de l'atténuation naturelle contrôlée au Royaume-Uni à travers des projets de recherche et de développement de cas d'études sur des sites. Les participants au projet ont conduit des négociations avec l'initiative CLAIRE⁵ (Contaminated Land Applications in the Real Environment) qui est une association

³ Composés organiques monoaromatiques

⁴ Le méthyltertiobutyléther (MTBE) est un additif des carburants

⁵ <http://www.claire.co.uk/>

publique et privée assurant un lien entre les principaux acteurs du traitement des sites contaminés au Royaume-Uni pour catalyser le développement de méthodes de calcul de coûts des études et traitement des sites contaminés. Le projet SIREN se compose de trois phases :

- ✓ La première phase du projet était de localiser un site qui pourrait potentiellement permettre la démonstration de l'atténuation naturelle contrôlée selon le contexte anglais, et servir de site de démonstration pour une étude à long terme des nouvelles méthodes d'évaluation des processus de l'atténuation naturelle (Towler, P.A., *et al.*, 2001) ;
- ✓ La seconde phase est divisée en deux étapes. L'étape 2a évalue la vitesse de la dégradation naturelle des contaminants et prédit la migration future de la contamination. L'étape 2b a pour objet de vérifier ces prédictions ;
- ✓ La troisième phase du projet a pour objectif de soutenir et de coordonner les projets de recherche innovants qui utilisent le site et ses données et de diffuser les résultats de la recherche.

Les participants au projet ont développé des critères de sélection, également approuvés par l'*Environment Agency*. Plus de 200 sites ont été considérés dans la phase initiale et seulement 5 sites étaient des candidats potentiels. Un des critères était que le site soit situé à l'aplomb d'un aquifère sédimentaire mineur contaminé.

Une usine pétrochimique encore en activité dans le Nord-Est de l'Angleterre a été finalement identifiée comme site potentiel. Ce site correspondait à peu près à tous les critères de sélection. Ce site renferme un certain nombre de contaminants biodégradables, principalement des BTEX et des solvants chlorés dans les sols et eaux souterraines. Les propriétaires du site ont donné leur autorisation pour mettre en œuvre la deuxième phase du projet et pour que le site soit utilisé comme sujet d'étude pendant 3 à 5 ans, selon des conditions de confidentialité et de sécurité.

Au cours de l'étape 2a, différents panaches de pollution issus de l'industrie chimique ont été particulièrement étudiés de manière à rassembler des informations suffisantes pour évaluer l'atténuation naturelle contrôlée de ces panaches. Une modélisation des eaux souterraines a mis en évidence la dégradation naturelle des solvants chlorés (confirmée par la présence des produits de dégradation : Chlorure de vinyle, Ethylène et Ethane), ainsi que des composants BTEX (Jones, D., *et al.*, 2001).

Une étude de comparaison de trois approches d'évaluation de l'atténuation naturelle contrôlée a été menée en utilisant des données existantes sur un site où l'atténuation naturelle s'est révélée efficace comme technique de traitement (Cutter, T., *et al.*, 2001). Les trois approches testées sont :

- celle de l'*Environment Agency* sur l'atténuation naturelle contrôlée, décrite précédemment (Carey M. A., *et al.*, 2000) et composée de 4 étapes (*Screening stage*,

Demonstration stage, Assessment stage, Implementation-Performance Monitoring Stage);

- le protocole de l'*American Society for Testing and Material* (ASTM) qui est plutôt une stratégie d'appréciation s'articulant sur plusieurs étapes (cf. § 3.1.3 et annexe 2). Son principal critère de décision de prise en compte de l'atténuation naturelle contrôlée est basée sur l'observation du comportement du panache de pollution et plus particulièrement sur sa stabilité ;
- les réflexions du réseau européen NICOLE⁶ (Network for Industrially Contaminated Land in Europe) sur la prise en compte de l'atténuation naturelle contrôlée dans la gestion des sites contaminés. Celles-ci s'inspirent de l'approche hollandaise qui considère, à chaque étape du traitement, la prise en compte de l'atténuation naturelle comme option possible de remédiation. Le système, développé uniquement pour les solvants chlorés et les BTEX, est construit sur la base d'un système de « feux de croisement » évaluant, à chaque « feu de croisement », la possibilité d'employer l'atténuation naturelle comme technique de traitement ou d'envisager une technique de traitement alternative (cf. annexe 4). Chaque « feu de croisement » représente une étape du plan de gestion : 1- Coup d'œil rapide des données historiques ; 2- Modélisation du comportement du panache de pollution ; 3- Discussion entre les autorités et le propriétaire du site ; 4- Plan de surveillance.

Chacune des ces approches ont été comparées et classées selon les critères suivants :

- Facilité d'utilisation ;
- Transparence dans la prise de décision ;
- Robustesse des conclusions.

Les trois approches utilisent des faisceaux de présomption (*lines of evidence*) qui indiquent l'action de l'atténuation naturelle. L'approche de l'ASTM est la plus simple d'utilisation et la plus transparente dans la prise de décision. Le système de l'*Environment Agency* est le plus robuste parce qu'il était le plus défendable des trois systèmes. L'*Environment Agency* prévoit la publication prochaine d'un guide qui compilerait les différentes approches.

3.3. ALLEMAGNE

Il n'existe actuellement pas de document officiel sur l'atténuation naturelle en Allemagne. Toutefois, des groupes de travail se sont récemment créés pour faire des

⁶ Programme qui focalise sur les aspects de la problématique des sites contaminés jugés plus prioritaires pour les industriels européens. Ce projet offre l'opportunité, pour les recherches sur les sites contaminés, d'obtenir plus d'informations sur les techniques et technologies actuelles, mais apporte également l'expérience et les expertises de nouvelles personnes. En effet ce programme est ouvert aux organisations du secteur privé et public (<http://www.nicole.org>).

recherches sur le sujet, il s'agit du projet INCORE (INtegrated Concept for groundwater REmediation) initié par l'EPA de Baden-Württemberg et associé à l'Université de Tübingen et au BRGM. Ce projet traite du développement et de la mise en œuvre d'une nouvelle approche d'évaluation des sols pollués et de réhabilitation des zones industrielles urbaines. Il est principalement orienté vers la qualité des eaux souterraines et les modèles de contamination complexe (plusieurs types de contaminants) qui sont typiques de la plupart des villes européennes. Cette nouvelle approche est composée de 3 cycles (cf. figure 3) qui sont :

- Evaluation de la contamination des eaux souterraines pour estimer les concentrations de contaminants et la masse de l'écoulement à travers les plans de contrôle, à l'échelle du site industriel ;
- Délimitation des zones potentielles de source de pollution par des méthodes de bathymétrie, par analyses en laboratoire ou sur site ou par des techniques d'empreintes de contaminant ;
- Développement de stratégies de traitement

L'atténuation naturelle est considérée comme une partie de l'approche générale de traitement (cycle III qui représente les solutions combinées pour le traitement de la source et du panache de pollution), et dépend du niveau de contamination rémanent / tolérable et de son ampleur. L'idée principale est de trouver la technologie de traitement la plus efficace pour les zones les plus polluées ou des combinaisons de technologies pour un contexte hydrogéologique et une contamination donnée, et de traiter les panaches de pollution avec des méthodes de traitement passives.

Parallèlement, trois cas d'études sont en cours d'évaluation de façon à estimer la validité de la prise en compte de l'atténuation naturelle dans la réhabilitation des sites.

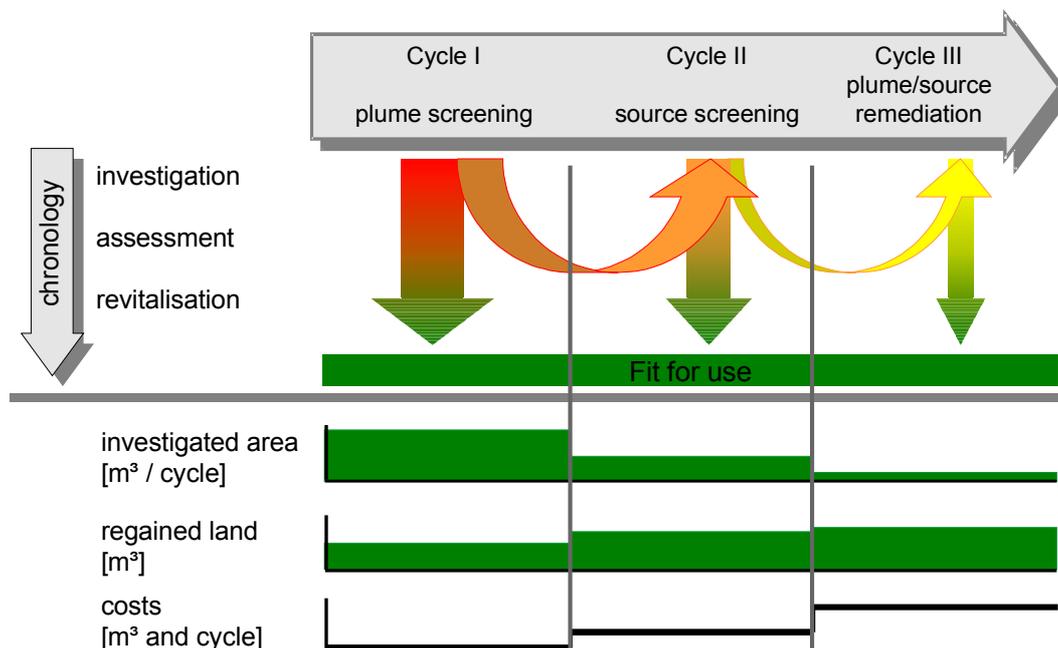


Figure 3 : Les trois cycles de l'approche du projet INCORE (Ptak, T., 2002)

3.4. PAYS-BAS

L'évaluation des risques aux Pays-Bas est basée sur ces valeurs de référence : le dépassement de ces valeurs indique un risque potentiel, mais il faut toutefois tenir compte des conditions locales et de l'usage actuel ou projeté du sol pour évaluer les risques.

Une distinction est faite entre les pollutions immobiles (sols) et les pollutions mobiles (pollution des nappes et pollution issue du lessivage des sols) en ce qui concerne la gestion des sites contaminés. L'approche générale pour les pollutions immobiles est d'accomplir « la convenance pour l'usage ». C'est différent pour la pollution mobile : la loi a énoncé un ordre de préférence des actions à réaliser qui peuvent être résumées comme suit :

1. Enlèvement de la pollution. Si celle-ci ne peut pas être réalisée à un coût rentable, alors passage à l'étape 2 ;
2. Une situation dite « stable » doit être atteinte dans les trente ans (au maximum). Si ceci ne peut pas être réalisé à un coût rentable, alors un contrôle du confinement et une approche de suivi de la contamination devront être mis en place. Souvent le confinement est très cher comparé au risque engendré. Dans ces cas, la propagation de la pollution peut être acceptée pour les aquifères à faible risque et si d'autres solutions se révèlent beaucoup plus coûteuses. Toutefois, dans ces cas exceptionnels, le suivi se doit d'être plus intensif. Une « situation stable » requiert plusieurs conditions :

- pas de propagation plus importante de contaminants ;
- aucun risque (lié à la pollution restant dans le panache stabilisé) pour la population humaine et les écosystèmes ;
- pas de menace pour les points vulnérables (bâtiments, archéologie,...) ;
- pas d'impact sur l'aménagement futur du territoire.

La période des trente ans permet d'envisager les approches « extensives » comme l'atténuation naturelle contrôlée. Les valeurs T réglementaires à atteindre ne sont pas dérivées à partir des seuls risques d'exposition humaine, mais en intégrant le risque écotoxique (Swartjes, 1999). Les sites faisant l'objet d'une intervention sont abordés selon une approche de risque santé humaine dans un premier temps, permettant de fixer des objectifs minimum, autorisant l'usage envisagé du site. Puis, l'atteinte de la valeur T, qui permet « réglementairement » de rendre à un site la totalité de ses fonctions, peut alors s'envisager sur un délai plus long, en s'appuyant, le cas échéant et si les conditions le permettent, sur l'atténuation naturelle qui trouve ici une raison d'être.

A l'heure actuelle, il n'existe pas aux Pays-Bas de protocole légal pour l'utilisation de l'atténuation naturelle dans la gestion des sites contaminés. La réflexion hollandaise sur le sujet, reprise par le réseau européen NICOLE (cf. § 3.2.2 et annexe 4), considère à chaque étape du traitement la prise en compte de l'atténuation naturelle comme option possible de remédiation.

Actuellement, une telle approche est sérieusement étudiée par les autorités des Pays-Bas qui pensent demander aux projets de toujours prévoir une option échappatoire dans les cas où l'atténuation naturelle échoue (comparable à l'approche de « Environmental Protection Agency » américaine). Selon eux, une plus grande expérience pratique dans le traitement des pollutions mobiles et l'utilisation de l'atténuation naturelle contrôlée est avant tout nécessaire.

3.5. DANEMARK

Le Danemark base son évaluation des risques sur la détermination des concentrations en polluants et leur comparaison avec des critères de qualités des sols, des eaux souterraines ou de l'air. S'il y a un dépassement du critère approprié, le site présente alors un risque pour la santé humaine ou pour l'environnement pour son usage actuel. Dans ce cas, le site est considéré comme contaminé et des investigations complémentaires sont à entreprendre pour permettre d'améliorer l'estimation du risque initial ou pour réaliser une action de réhabilitation.

L'atténuation naturelle est prise en compte dans l'évaluation des risques, mais elle est également considérée comme technique de dépollution (pour le milieu « eau » uniquement).

La méthode de l'évaluation des risques se décline en trois étapes (cf. figure 4). Elle a pour objectif d'accomplir un équilibre entre la quantité de données à acquérir sur le site contaminé, et la complexité du modèle à utiliser (une petite quantité de données

implique un modèle simple alors que beaucoup de données permet de réaliser un modèle plus performant).

La première étape de l'analyse du risque est la réalisation d'un modèle de mélange à proximité de la source (simulation de l'entrée de polluant à partir la zone non saturée jusqu'à 0,25 mètres du niveau piézométrique), alors que les étapes 2 et 3 évaluent la concentration du contaminant à différentes distances de la source.

L'étape 2 est un modèle de mélange qui prend en compte l'épaisseur de la zone mélangée selon la dispersion, la vitesse de l'eau dans les pores et le temps de mélange.

La troisième étape est un modèle identique à celui de l'étape 2 mais les calculs du modèle considèrent à ce niveau la réduction de la concentration du contaminant comme une conséquence de la sorption, de la dispersion et de la dégradation dans la zone saturée (atténuation naturelle de la zone saturée). Si la constante de dégradation et les coefficients de sorption pour les substances mélangées ne sont pas connus, alors les calculs doivent considérés, par principe de précaution, les propriétés d'une substance la plus nocive pour l'environnement (exemple : une substance avec une vitesse de dégradation la plus lente, les critères des eaux souterraines les plus faibles et une constante de sorption la petite en concordance avec la concentration connue).

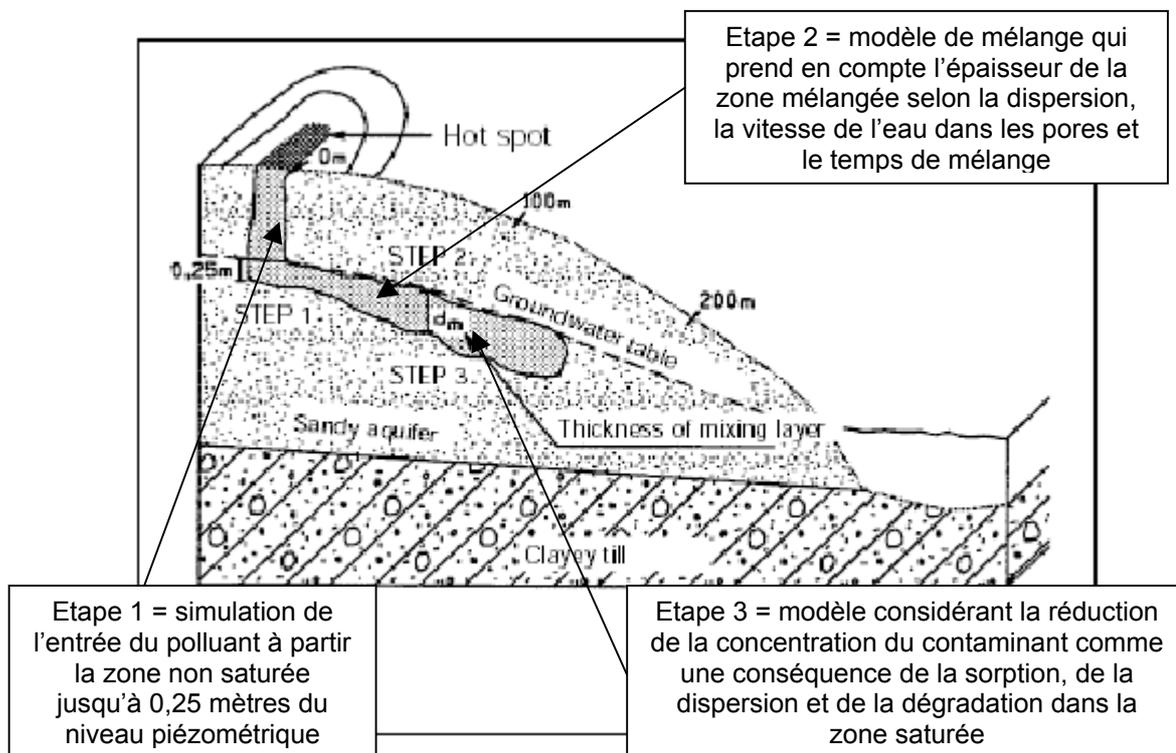


Figure 4 : Les trois étapes de la méthode danoise de l'évaluation des risques (Danish Environmental Protection Agency, 2002)

Si l'évaluation du risque montre que les critères de qualité des eaux souterraines ne peuvent pas être obtenus même en considérant l'atténuation naturelle, alors la contamination représente un risque réel. Une nouvelle évaluation des risques doit alors être menée avec de nouvelles données de caractérisation du site obtenues grâce à des investigations complémentaires.

Si l'évaluation du risque indique que les critères de qualité des eaux souterraines sont obtenus, un suivi doit être réalisé de façon à s'assurer que la dégradation et les conditions redox attendues sont présentes. En complément du suivi, il est important que l'extension de la contamination, ainsi que le sens d'écoulement de la nappe soient cartographiés puisque le suivi s'effectuera dans les puits localisés en aval hydrologique de la contamination.

Si la dégradation s'effectue plus lentement que ce qu'il était attendu, une nouvelle évaluation des risques avec la nouvelle constante de dégradation doit être faite.

3.6. AUTRICHE

Jusqu'à aujourd'hui, aucune discussion technique sur l'atténuation naturelle ou sur l'utilisation de l'atténuation naturelle pour la gestion des sites contaminés n'a été officiellement entreprise en Autriche. L'opinion de l'« Austrian Federal Environment

Agency » sur l'atténuation naturelle contrôlée, valables à leurs yeux uniquement pour le milieu « eau », repose sur les deux points suivants :

- Conformément à la loi autrichienne sur l'eau, aucune altération de la qualité des eaux n'est acceptable. Les ressources en eau souterraine sont destinées à l'usage de l'alimentation en eau potable ;
- Les processus de l'atténuation naturelle contrôlée doivent être pris en compte dans l'évaluation des risques. L'atténuation naturelle n'est pas considérée comme une approche viable de réhabilitation des sites.

Aucun protocole, ni aucun cas d'études n'existe à l'heure actuelle en Autriche.

Par ailleurs, l'« Austrian Federal Environment Agency » a participé au programme européen CLARINET⁷ (Contaminated Land Rehabilitation Network for Environmental Technologies in Europe) et soutient également les conditions fixées pour la prise en compte de l'atténuation naturelle dans la gestion des sites contaminés (en zone saturée uniquement), à savoir :

- Définir les frontières géographiques ;
- Définir une limite dans le temps qui permettrait d'atteindre les objectifs de qualité fixés ;
- Mise en place d'un plan de suivi ;
- Besoin d'un dépôt bancaire (si un pollueur potentiel existe) afin d'avoir une sécurité financière. La somme devra être suffisante pour assurer la mise en place du plan de suivi.

3.7. DISCUSSION SUR LES PROTOCOLES EXISTANTS

De façon générale, la démonstration de la faisabilité de l'atténuation naturelle repose sur un certain nombre de « preuves » permettant de mettre en évidence les mécanismes de l'atténuation et leur efficacité, et sur des modélisations permettant de prévoir l'évolution de la contamination des milieux au cours du temps, jusqu'à l'atteinte des objectifs fixés.

Les protocoles des Etats-Unis ont été développés pour différents types de pollutions (solvants chlorés, hydrocarbures, BTEX,...), alors que ceux élaborés par la Grande Bretagne s'applique à une gamme assez large de substances, organiques ou non (solvants chlorés, hydrocarbures pétroliers, méthyl-tert-butyl-éther (MTBE), phénol, hydrocarbures aromatiques polycycliques, pesticides, herbicides, métaux, ammoniacque et cyanures). Le premier permet d'adapter les investigations au type de problème posé, en fournissant une étude détaillée de tous les mécanismes susceptibles d'être pris en

⁷ CLARINET est un programme de recherche et de développement relatif à la réhabilitation des sites contaminés. Ce projet, commencé le 1 juillet 1998 et terminé le 30 juin 2001, avait pour objectif de développer des recommandations techniques pour la réhabilitation des sites contaminés en Europe (cf. <http://www.clarinet.at>).

compte, ainsi que des outils d'investigation jugés les mieux appropriés pour réaliser les études de démonstration. Le second présente plutôt une démarche à suivre, qu'un recueil technique des connaissances sur chacun des produits en question.

L'intérêt d'une approche par substance, comme celle des Etats-Unis, est de pouvoir disposer de documents complets, permettant dans une première partie de décrire l'approche « atténuation naturelle » spécifique à cette substance, de fournir en annexe les détails techniques en appui des procédures décrites, et de présenter une synthèse détaillée des connaissances sur les propriétés de la substances (et généralement des principaux sous-produits associés) et sur les taux de dégradation.

Dans une approche plus générale, comme en Grande Bretagne, la partie spécifique aux substances n'existe pas, ce qui permet d'élargir la portée du document à différents types de substances. Par contre, la partie décrivant les procédures d'atténuation naturelle et les annexes qui exposent les détails techniques sont présents, même si cette dernière partie n'entre pas aussi loin dans les détails que les annexes correspondantes des protocoles par substances. Cette approche permet de produire un document d'application beaucoup plus général, tant en ce qui concerne les substances potentiellement concernées, que les cas d'application, et sous une forme beaucoup plus condensée que l'approche par substance.

Dans la pratique, on se rend compte que l'application sur le terrain de l'approche anglaise plus générale nécessite souvent d'en adapter le contenu aux réalités du terrain : elle permet certainement une démarche plus pragmatique, sans forcément y perdre en cohérence. Par contre, elle ne permet peut être pas facilement d'aborder des cas complexes, qui feraient appel à des connaissances plus spécifiques, que l'on trouve dans l'approche américaine. Mais il n'est pas sûr que les cas les plus complexes soient aussi les mieux adaptés à l'utilisation de l'atténuation naturelle comme seule technique de réhabilitation.

A l'issue de l'analyse des protocoles étrangers, les deux points intéressants cités ci-après peuvent être retenus :

- la distinction soulignée par les anglais entre les termes « atténuation naturelle » et « atténuation naturelle contrôlée » en gardant à l'esprit que le premier désigne l'ensemble des processus naturels, alors que le second fait référence à son utilisation en tant que technique de dépollution ;
- le fait que les objectifs de décontamination doivent de préférence s'achever dans un laps de temps raisonnable, ne dépassant pas une génération ou 30 ans, et ne devant pas être excessivement long en comparaison des autres techniques de dépollution ordinairement utilisées.

De plus, si les protocoles existants mettent en avant une méthodologie de caractérisation du site, de la pollution et des environs, et proposent différents critères de mise en évidence des différents mécanismes d'atténuation naturelle susceptibles de prendre place, ils décrivent également la mise en place de modélisations, et, en particulier, d'une

modélisation prédictive de l'évolution de la pollution. La modélisation est le seul outil disponible pour « prédire » le comportement de la pollution à plus ou moins long terme : ses résultats conditionnent fortement les choix retenus par les personnes en charge de gérer les risques.

Autrement dit, il est impératif de disposer, pour prendre les décisions adéquates, d'une analyse de sensibilité solide, qui n'enlève pas le risque de constater des divergences entre la prévision du modèle et les analyses effectuées sur le terrain, mais qui permet d'appréhender la fiabilité des prévisions sur lesquelles vont s'appuyer les décisions de gestion des risques. Comment se gèrerait la remise en cause des prévisions d'un modèle, vingt, trente ou cinquante années après, que cela soit dû à une défaillance du modèle, de l'approche de calcul retenue, ou parce que les conditions d'occupation du site ou d'aménagement ne correspondent plus avec celles qui ont été anticipées dans le schéma conceptuel ?

Il y a ainsi une sorte de pari sur l'avenir, qui fait, certes, partie intégrante de la gestion des risques, mais dont on doit avoir conscience au moment de la prise de décision, et qui n'est pas abordée dans les protocoles techniques d'atténuation naturelle autrement qu'au travers d'analyses d'incertitudes sur les paramètres du modèles, et non pas sur les scénarios.

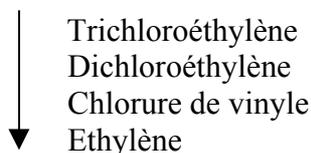
4. Exemples de mise en évidence de l'atténuation naturelle : cas d'études

4.1. ATTENUATION NATURELLE DE SOLVANTS CHLORES EN ZONE SATUREE

St. Joseph, Michigan (USA) : Extensive Natural Attenuation of Chlorinated Solvent (National Research Council, 2000)

Le site St Joseph dans le Michigan est un des cas d'atténuation naturelle de solvants chlorés les plus étudiés aux Etats-Unis (National Research Council, 2000 ; USEPA, 1994). Les eaux souterraines à l'aplomb du site sont contaminées par des hydrocarbures halogénés aliphatiques. Ces substances auraient migrer vers l'étroit aquifère sableux à partir du stockage enterré de déchets (utilisés de 1968 à 1976) ou du dépôt de Trichloroéthylène.

100 mg/litre de Trichloroéthylène a été retrouvée dans les eaux de l'aquifère. D'autres solvants chlorés, comme le cis-Dichloroéthylène, le Chlorure de Vinyle et l'éthylène sont également présents à forte concentration sur le site, suggérant la biodégradation du Trichloroéthylène :



Il a été démontré que la déhalogénéation réductive du Trichloroéthylène était liée à l'importante quantité de matière organique issue des lixiviats du dépôt de déchets. La demande chimique en oxygène (DCO), directement liée à la teneur en matière organique, est forte au niveau du dépôt de déchet (400 mg/l) et diminue au sein du panache de pollution, comme l'indique la figure 5. La DCO se transforme de façon presque complète en méthane, ce qui est une nouvelle preuve de la biodégradation du Trichloroéthylène. En effet, des analyses près de la source ont montré que 8 à 25 % de Trichloroéthylène était convertis en éthylène et plus de 15 % de réduction de DCO étaient associées à la déhalogénéation réductive. Par ailleurs, d'autres études indiquent que la transformation du Trichloroéthylène en éthylène était presque complète où la production de méthane et la perte de nitrate et sulfate était la plus forte.

Ce cas d'étude apporte de nouvelles informations sur l'atténuation naturelle du Trichloroéthylène, à savoir :

- Formation de cis-Dichloroéthylène, de Chlorure de Vinyle et d'éthylène ;
- Perte de DCO beaucoup plus importante que ce qu'il est nécessaire pour la déhalogénéation ;

- Mise en évidence de processus anaérobies dans les zones où la déhalogénéation réductive a lieu, comme la production de méthane qui coïncide avec la perte de DCO, ainsi que la diminution de la concentration des nitrates et sulfates.

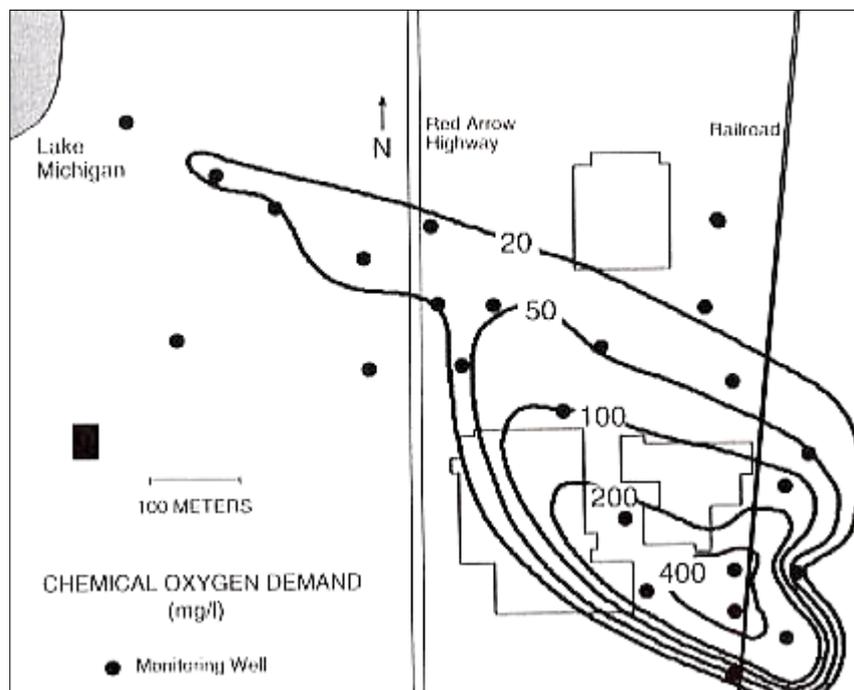


Figure 5 : Concentrations de composés aliphatiques chlorés (représentés par la DCO) dans les eaux souterraines du site St Joseph, Michigan, USA (National Research Council, 2000).

4.2. ATTENUATION NATURELLE DE METAUX EN ZONE SATUREE

Pinal Creek Basin (USA) : Multiple Natural Attenuation Processes Affect Metals (National Research Council, 2000)

Le drainage acide de site minier est une source fréquente de contamination métallique des eaux souterraines. Une importante mine de cuivre est en activité dans le bassin de la crique « Pinal » en Arizona depuis la fin des années 1880, et à de nombreux endroits les eaux souterraines ont été contaminées. Un panache de pollution de 25 kilomètres de long se répand selon la pente partant d'un ancien emplacement de quelques mares (situées au début du bassin) non recouvertes de résidus miniers. Bien que les mares soient maintenant drainées, la source du panache de pollution atteint probablement un pH de 2 à 3 et les concentrations en fer et sulfates sont respectivement de 2 et 19 mg/l. Les chercheurs de l'U.S. Geological Survey (USGS) ont étudié le panache depuis 1984 (Brown *et al.*, 1997). La partie acide du panache qui s'étend sur 12 km à partir de la source (cf. figure 6), contient de fortes teneurs en sulfates, calcium, fer, manganèse,

cuivre, aluminium et zinc. Les concentrations de certains métaux dépassent les normes de potabilité.

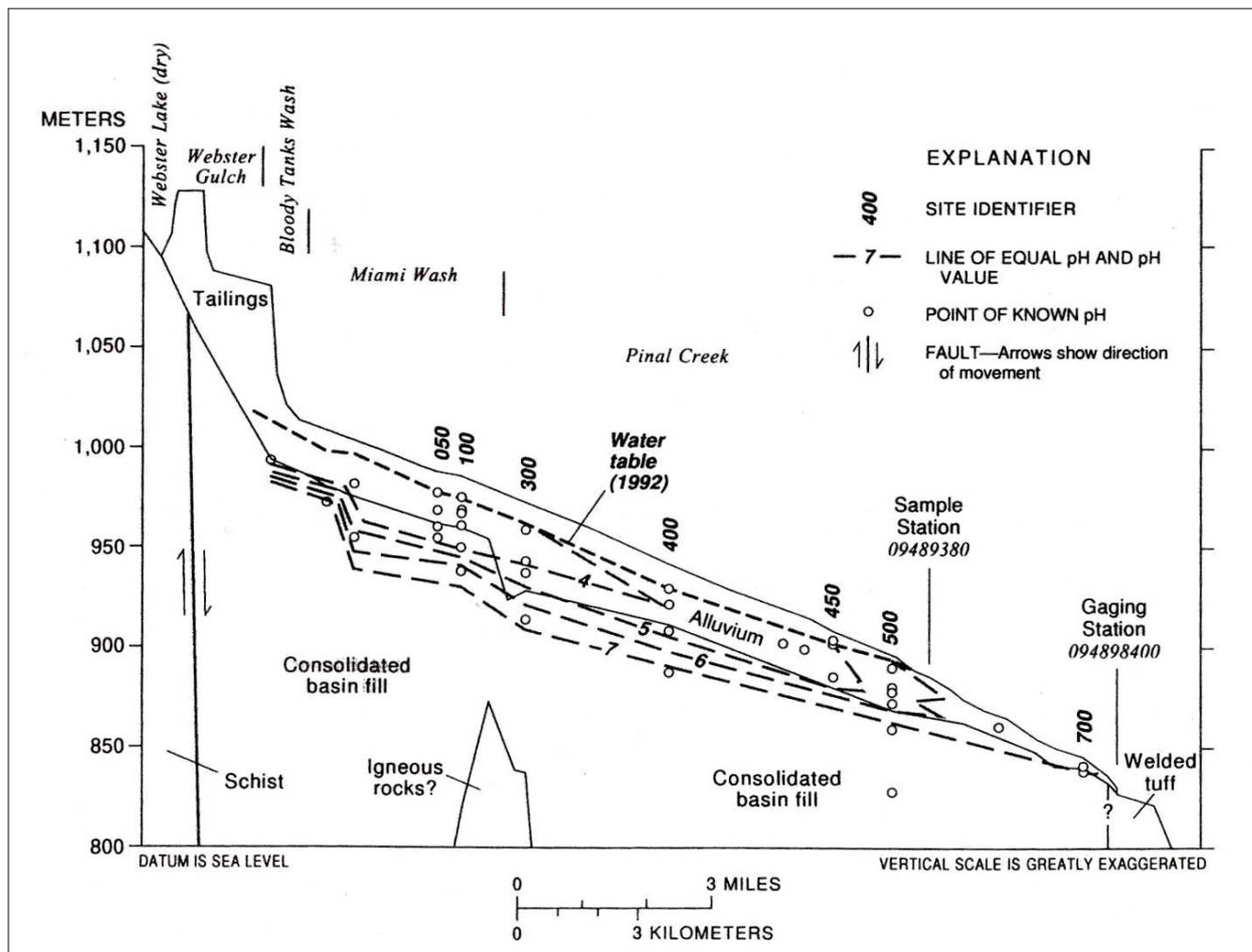


Figure 6 : Coupe en travers du bassin de la crique « Pinal » (Source : Brown and Harvey, 1996) (National Research Council, 2000)

La figure 6 montre le pH du panache de pollution des eaux souterraines sous les anciennes mares de résidus miniers. Les eaux souterraines s'écoulant au-dessous des anciennes mares ont un pH inférieur à 4 (comme l'indique la ligne en pointillé numéro 4), mais plus loin en aval, le pH augmente à 5-6 puisque les minéraux carbonatés neutralisent l'acidité. La zone de faible pH correspond à la partie avec des fortes teneurs en métaux dissous. L'atténuation des métaux par précipitation s'effectue lorsque le pH augmente.

Quelques processus physiques, chimique et microbiologiques affectent les contaminants métalliques sur le site (Stollenwerk, 1994). Des études par traçage, réalisées entre 1984 et 1993, ont montré que la dilution permettait d'atteindre une diminution de 60% des teneurs en contaminants dissous au-delà des deux premiers kilomètres du panache. De

plus, ces recherches indiquaient que les matériaux carbonés naturels du sol augmentait le pH à 5-6, ce qui est le résultat de la précipitation ou de la sorption de fer, cuivre, zinc, et autres métaux contenus dans la couche géologique formant l'aquifère. Par exemple, les concentrations de cuivre dissous, cobalt, nickel et zinc dépendent fortement du pH. Ainsi, puisque le pH augmente avec la distance, la sorption de ces métaux augmente aussi, ce qui implique la diminution avec la distance des concentrations dans les eaux souterraines. Toutefois, les réactions de neutralisation « épuisent » le carbonate de l'aquifère, de telle sorte que quelques uns des métaux continuent à se répandre à une vitesse d'environ 1 à 7 fois supérieure à celle de l'écoulement de l'aquifère. De plus, ces réactions sont réversibles, amenant la remobilisation de métaux dans l'eau puisque le carbonate s'épuise et le pH diminue.

Le panache se déverse dans la crique « Pinal » amenant une augmentation rapide du pH et de la teneur dissoute en oxygène provoquée par les échanges de gaz avec l'atmosphère. Cette augmentation du pH et de la concentration en oxygène aboutit à la précipitation d'oxydes de manganèse dans les sédiments de l'aquifère, accentuée par la présence de bactéries oxydant le manganèse, et donne une immobilisation de 20% du manganèse dissous. Les teneurs de nickel et de cobalt dissous diminuent également par sorption sur les oxydes de manganèse (Harvey and Fuller, 1998).

Ce site illustre le fait que plusieurs processus naturels peuvent agir pour diminuer les concentrations de métaux dans les eaux souterraines. La neutralisation par dissolution des éléments carbonatés provoque l'augmentation du pH, ce qui accentue la précipitation et la sorption des métaux lourds. Les réactions d'oxydo-réduction dans les sédiments de l'aquifère forment des oxydes de manganèse qui sorbent les autres métaux contenus dans les eaux souterraines avant que ceux-ci ne soient emportés par le courant. Les mécanismes retardent à la fois l'arrivée du panache de métaux lourds et son étalement tout autour du courant. Toutefois, la taille et la longévité de la source de pollution pourraient rendre inefficace le potentiel d'atténuation naturelle de l'aquifère puisque les minéraux carbonés, qui provoquent la diminution du pH, sont en train de s'épuiser.

4.3. ATTENUATION NATURELLE DE HAP EN ZONE SATURÉE

South Glens Falls, New York (USA) : Natural Attenuation of PAHs Following Source Removal

L'institut de recherche d'électricité et la compagnie Mohawk d'énergie du Michigan ont collaboré afin d'évaluer comment l'enlèvement d'une source de pollution sur un site de stockage de goudron de houille pourrait influencer l'atténuation naturelle de contaminants de goudron de houille dissous dans les eaux souterraines (Taylor *et al.*, 1996). L'aire d'étude est située en zone urbaine près des chutes South Glens à New York. Le site a été utilisé comme dépôt de goudron vers les années 1960 par une usine qui produisait du gaz. Le site était idéal pour l'étude car la source de pollution et le contexte hydrogéologique étaient relativement simples. Compte tenu du fait que la contamination était issue d'un dépôt unique, il n'y avait qu'une source de goudron de houille, avec des

résidus inconnus, donnant ainsi une source caractéristique relativement certaine en comparaison des autres sites plus complexes. Le contexte hydrogéologique est un aquifère composé de grains grossiers à sable fins silteux, avec une couche confinée de 6 à 9 mètres sous la surface empêchant la migration de la contamination vers le bas. La vitesse de l'eau dans l'aquifère est d'environ 12 mètres par an.

L'enlèvement de la source a commencé en mai 1991 avec l'installation d'un système de « palplanches » à une profondeur de plus de 12 mètres, bien en dessous de la couche de confinement à 7,6 mètres. Malgré le contexte hydrologique relativement simple, la localisation et l'évacuation complète des matériaux de la source de goudron de houille étaient techniquement très difficiles. La surface de la zone concernée était d'environ 1000 m², ce qui correspond approximativement à 7200 m³ de sols pollués par du goudron qui ont été évacués. En octobre 1991, le système de « palplanches » a été enlevé et la zone excavée a été comblée avec du sol sain ayant une granulométrie identique à celle de la terre évacuée.

La figure 7 montre une vue de surface des concentrations en naphthalène (un des éléments majeurs dissous du goudron de houille), en juin 1990, juste avant l'excavation de la source de pollution, et quelques années après, en novembre 1994. Les lignes de concentrations ont été réalisées à partir des nombreux puits de contrôle et d'analyses faites dans les eaux souterraines à différentes profondeurs. On peut noter une atténuation du panache de naphthalène dans l'aquifère après l'excavation de la source. En novembre 1994, le phénanthrène (un autre constituant dissous du goudron de houille) n'est plus détecté dans aucun des puits de contrôle.

Quatre faisceaux de présomption (*lines of evidence*) indiquent la participation de microorganismes dans l'atténuation naturelle du naphthalène et du phénanthrène :

- Epuisement de l'oxygène au centre du panache de pollution, là où les concentrations de naphthalène étaient les plus fortes, et existence d'une proportionnalité entre les teneurs en oxygène et les teneurs en phénanthrène au sein du panache ;
- Métabolisme rapide de naphthalène et de phénanthrène en microcosmes avec les sols de la zone polluée, contrairement à ceux de la zone non polluée (Madsen *et al.*, 1991) ;
- Nutrition possible des bactéries à l'intérieur, mais pas à l'extérieur du panache de pollution (Madsen *et al.*, 1991) ;
- Détection d'un seul métabolite intermédiaire transitoire, et de gènes de la biodégradation accélérée du naphthalène (Wilson *et al.*, 1999) dans les eaux souterraines contaminées.

Les données de ces études suggèrent que l'atténuation naturelle issue de la biodégradation était effective en ce qui concerne le contrôle de la contamination, une fois que la source avait été enlevée.

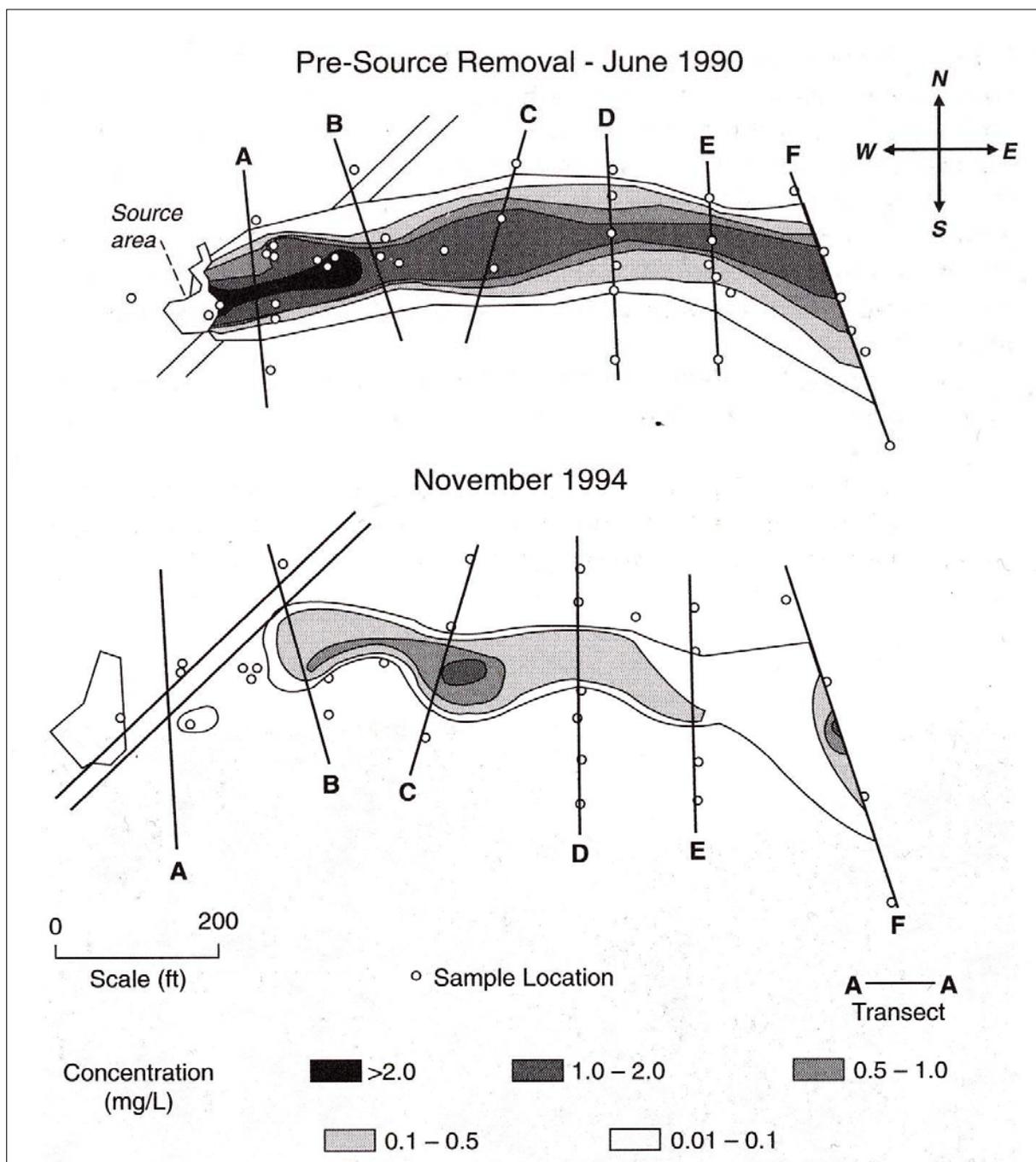


Figure 7 : Evolution des concentrations maximales de naphtalène, analysées dans les eaux souterraines du panache de pollution, suite à la suppression de la source de goudron de houille (National Research Council, 2000)

5. Place de l'atténuation naturelle dans le dispositif français

5.1. CONTEXTE ACTUEL

L'objet de la discussion est d'évaluer les implications que pourrait avoir la prise en compte de l'atténuation naturelle, **en remplacement ou en complément** de traitements interventionnistes dans la gestion des sites contaminés. Fondamentalement, il y a deux idées opposées :

1. Celle qui consiste à privilégier, chaque fois que cela est possible, l'atténuation naturelle ;
2. Celle qui consiste à privilégier les traitements spécifiques.

La difficulté réside dans le fait que des arguments valables existent pour défendre l'une ou l'autre de ces approches :

1. Pourquoi faudrait-il inciter à traiter une pollution qui pourrait se résorber naturellement ?
2. Au contraire, ne vaut-il pas mieux régler le problème de la pollution de manière définitive, permettant de rendre ses usages à un site ou à une ressource, en les traitant de manière adaptée, et avant que l'extension de la pollution avec le temps rende la situation progressivement de plus en plus difficile, voire impossible, à maîtriser ?

En France, une approche spécifique a volontairement été privilégiée : chaque cas représente un cas particulier, qui appelle une solution particulière. Dans ce contexte, on voit bien que ces deux idées extrêmes peuvent être envisagées à chaque fois, et que, *a priori*, se posera systématiquement la question du choix du mode de gestion de la pollution le plus approprié. Les trois objectifs de l'approche française sont (cf. Circulaire Ministérielle du 10/12/1999, relative aux règles de fixation des objectifs de réhabilitation sur les sites pollués) :

1. Identifier la nécessité d'une réhabilitation et, de ce fait, caractériser la nature et l'ampleur de la pollution et de ses effets ;
2. Réaliser une étude de risques visant à fixer les objectifs de réhabilitation du site, en tenant compte des usages du site dans son environnement humain, géographique, écologique et économique ;
3. Définir les techniques de traitement les plus adaptées pour atteindre les objectifs de réhabilitation du site définis par l'étude des risques.

Dans ce sens, l'approche française n'exclue *a priori* pas l'AN: si l'AN s'avère être un moyen adapté pour remédier à un cas de pollution, il n'y a pas de raison objective pour la rejeter. Cela est d'ailleurs mentionné dans le classeur méthodologique sur la gestion

des sites pollués (Ministère chargé de l'Environnement, 2000) : Partie III « Diagnostic approfondi », Partie VI « L'Evaluation détaillée des risques pour les ressources en eau », et Annexe II. D'ailleurs, le seul fait de créer des modélisations de transferts de polluants, en considérant autre chose que des traceurs parfaits, est une manière de prendre en compte des processus d'atténuation naturelle.

Le pragmatisme lié à une démarche spécifique de gestion des sites, qui pourrait apparaître comme un handicap du fait d'un manque de règles de gestion établies une fois pour toutes, pourrait bien être la réponse la mieux adaptée que l'on puisse apporter, dès lors que les personnes en charge de la gestion du risque (et non de son évaluation) disposent des éléments d'appréciation adéquats.

Il ne s'agit pas ici de se substituer à la décision des personnes en charge de gérer le problème des sites contaminés, mais d'apporter les éléments de réflexion nécessaires à la prise de décision, en particulier en ce qui concerne les implications techniques, politiques et socio-économiques possibles de l'un ou l'autre choix.

5.2. CRITERES D'ACCEPTABILITE DE L'ATTENUATION NATURELLE, COMME MOYEN DE REHABILITATION DE SITES POLLUES ?

Comme toute méthode de réhabilitation, l'atténuation naturelle doit alors répondre à un minimum de critères pour pouvoir être invoquée valablement. Ces critères peuvent être regroupés dans deux familles différentes :

1. Les critères d'adéquation à la démarche nationale ;
2. Les critères techniques.

5.2.1. Les critères d'adéquation à la démarche nationale

En termes de gestion et de réhabilitation de sites pollués, la démarche française est basée sur un petit nombre de principes et est conçue pour faciliter une approche rationnelle et claire permettant de gérer l'ensemble des situations.

Ces principes sont les suivants :

- 1) Le principe de précaution (défini dans la Loi 95-101 du 2 Février 1995), selon lequel « le manque de certitude, dans l'état actuel de connaissance technique et scientifique, ne devrait pas retarder les actions à prendre en vue d'empêcher un risque de dommages irréversibles et sévères à l'environnement à un coût économiquement acceptable » ;
- 2) Le principe de proportionnalité, qui devrait assurer l'adéquation entre le degré de perfection de l'étude, l'étendue de la pollution et son incidence prévisible, se traduisant habituellement par l'introduction d'une procédure itérative ;

- 3) Le principe de spécificité, selon lequel les travaux de réhabilitation doivent viser à empêcher l'émergence ou la persistance de risques ou nuisances à l'Homme ou à d'autres cibles identifiées (écosystèmes, ressources en eau, etc.). L'objectif de réhabilitation est donc déterminé au cas par cas par une approche spécifique au site basée sur une évaluation des risques, conformément à un usage et à un environnement donnés ;
- 4) le principe de transparence, qui vise à établir une règle assurant que les options (hypothèses retenues, outils employés, degré de perfection des études, historique des faits et incertitude résiduelle, etc.), inhérentes à la procédure d'évaluation des risques, soient présentés, expliqués et discutés entre les différentes parties concernées.

5.2.2. Les critères techniques

A côté de ces principes généraux, l'atténuation naturelle, pour être considérée valablement comme l'équivalent d'une technique de réhabilitation, doit également remplir un certain nombre de critères d'ordre technique. Ces critères peuvent être exposés de la façon suivante :

1. L'atteinte effective des objectifs de réhabilitation ;
2. La limitation de l'emprise spatiale ;
3. Le respect de délais compatibles avec une gestion des risques,

Le tout devant considérer les conditions socio-économiques. Le critère « coût » devra prendre en compte tant les coûts de remise en œuvre que ceux de maintenance, de sécurité, d'élimination des déchets, ainsi que les compensations financières ou taxes diverses (exemple : taxes foncières sur les friches).

L'atteinte effective des objectifs de réhabilitation

L'atténuation naturelle doit pouvoir permettre d'atteindre les objectifs fixés par l'étude des risques, afin de rendre aux différents milieux d'exposition concernés les usages prévus dans la réhabilitation du site.

En plus, il faut que l'utilisation de l'atténuation naturelle pour la réhabilitation d'un milieu (exemple : sol) ne s'accompagne pas, même temporairement, d'une dégradation d'un autre milieu (exemple : eaux souterraines). Or, ceci peut arriver si l'atténuation naturelle est mise en œuvre avant que la résorption du panache ne se soit produite.

En effet, dans les nappes, le schéma classique d'évolution d'une pollution soumise à l'atténuation naturelle se fait en quatre étapes (cf. figure 8) :

1. Une phase de développement du panache ;
2. Une phase de stabilisation ;
3. Une phase de résorption ;
4. Une phase de disparition.

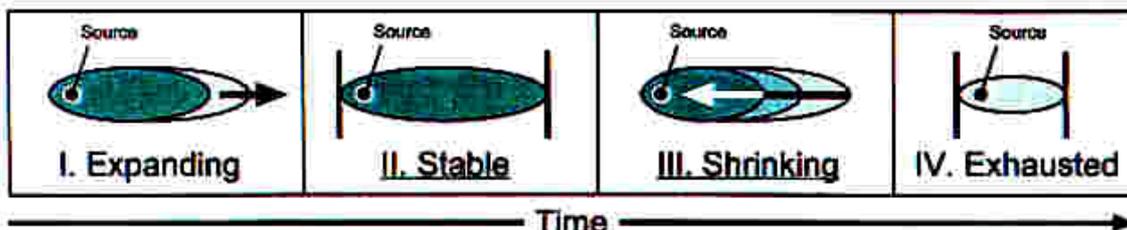


Figure 8 : Cycle de vie d'un panache soumis à l'atténuation naturelle, montrant les quatre étapes de l'évolution : I. Expansion ; II. Stabilisation ; III. Régression ; IV. Disparition. Sinke et Le Hécho, 1999

Jusqu'à la phase de stabilité du panache, il y a risque d'aggravation de la dégradation de la qualité de l'état de la ressource : ce n'est qu'à partir de la phase de régression du panache qu'une amélioration de la qualité de la ressource peut-être constatée.

Dans le respect des objectifs de réhabilitation fixés par l'étude des risques et du souci de ne pas endommager la qualité d'un autre milieu, il est nécessaire de mettre en place un réseau de surveillance lorsque l'atténuation naturelle est considérée dans la réhabilitation d'un site contaminé.

La limitation de l'emprise spatiale

Dès lors que l'atténuation naturelle concerne les nappes, qui se caractérisent par un déplacement de l'eau souterraine, une notion d'espace intervient (cf. figure 9) : pour traiter une nappe d'eau souterraine par l'atténuation naturelle, il faut pouvoir se permettre de « geler » les usages de la nappe non seulement pendant une certaine durée, mais également dans toute une certaine zone. L'atténuation naturelle occupe de l'espace, espace qui n'est pas forcément toujours disponible. Cet espace « à disposition » de l'atténuation naturelle n'est envisagé que si l'extension du panache de pollution est acceptable, ce qui n'est pas le cas dans tous les pays qui abordent cette problématique.

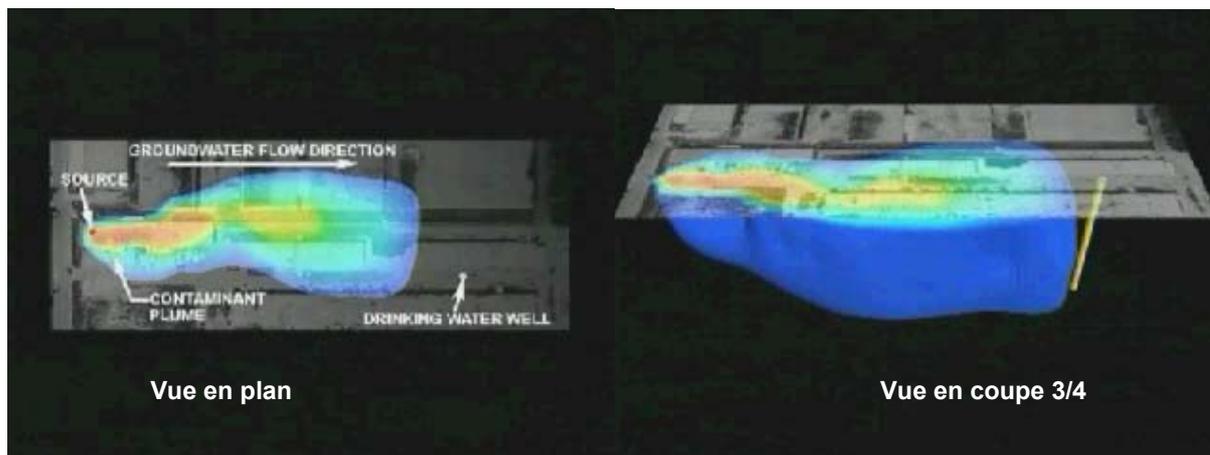


Figure 9 : Représentation d'un panache de contaminant dans une nappe (d'après NAVFAC, 2000)

5.2.3. Le respect de délais compatibles avec une gestion des risques

L'atténuation naturelle a besoin de temps pour être efficace, et ce temps doit être compatible avec le niveau de risque à gérer, les éventuels projets concernant le site (usage du sol) ou ses environs (usages de l'eau, voire de l'air), et la perception socio-politique de la démarche.

L'échelle du temps est variable d'un cas à l'autre, dépendant de la nature du polluant, de l'état de la source, traitée ou non, et de l'importance de la pollution.

Pour donner un exemple, une expérience de suivi de l'atténuation naturelle d'une contamination par des solvants chlorés est en cours au CNRSP⁸. Il s'agit d'une contamination faible car l'impact sur la nappe est limité au droit du site à 1000 µg/l de trichloroéthylène au niveau de la source, et atteint rapidement les limites de potabilité à l'extérieur du site. Bien que le trichloroéthylène subisse une dégradation naturelle, mise en évidence par la production de produits de dégradation caractéristiques, une diminution de l'extension de la pollution n'est pas observée, qui semble être dans une phase de stabilité, au bout de quelques années d'évolution. Plus exactement, pour pouvoir être sûr d'identifier la phase d'évolution dans laquelle nous nous trouvons, il faudrait disposer d'un suivi de plus longue durée, que les trois ans actuellement disponibles. C'est à dire qu'au bout de trois années, il n'est pas possible de savoir précisément si les variations de concentrations mesurées au cours des campagnes successives de suivi, correspondent à une tendance réelle, ou traduit des fluctuations liées aux conditions hydrodynamiques ou climatologiques locales. Il est préférable, dès lors, qu'aucun risque par rapport à la santé humaine ne soit en jeu, ce qui est le cas pour ce site pour lequel la contamination est faible et très localisée, et pour lequel l'impact sur l'eau souterraine ne concerne pas une nappe exploitée.

⁸ Centre National de Recherche sur les Sites et Sols Pollués

L'échelle de temps à envisager se compte en années ou en décennies, voire plus pour des panaches importants (cf. tableaux 9 et 10 ci-dessous), ce qui peut laisser aux panaches le temps de se développer, et d'occuper un volume de nappe pour lequel des restrictions d'usage devront alors être instituées.

Composé	Demie-vie (an)	Produits
Chlorure de méthylène (Dichlorométhane)	704 _a	
Trichlorométhane (Chloroforme)	3500 _a , 1800 _b	
Tétrachlorure de carbone	41 _b	
Chloroéthane	0.12 _c	éthanol
1,1-Dichloroéthane	61 _b	
1,2-Dichloroéthane	72 _b	
1,1,1-Trichloroéthane	1.7 _a , 1.1 _b , 2.5 _d	acide acétique 1,1-DCE
1,1,2-Trichloroéthane (1,1,2-TCA)	140 _b , 170 _a	1,1-DCE
1,1,1,2-Tetrachloroéthane	47 _b , 380 _a	TCE
1,1,2,2-Tetrachloroéthane	0.3 _c	1,1,2-TCA
	0.4 _b , 0.8 _a	TCE
Tetrachloroéthylène (PCE)	0.7 _f *, 1.3 x 10 ⁶ _b	
Trichloroéthylène (TCE)	0.7 _f *, 1.3 x 10 ⁶ _b	
1,1-Dichloroéthylène	1.2 x 10 ⁸ _b	
1,2-Dichloroéthylène _b	2.1 x 10 ¹⁰	

a D'après Mabey et Mill, 1978

b D'après Jeffers *et al.*, 1989

c D'après Vogel *et al.*, 1987

d D'après Vogel et McCarty, 1987

e D'après Cooper *et al.*, 1987

f D'après Dilling *et al.*, 1975

* Butler et Barker (1996) indiquent que ces valeurs peuvent découler de difficultés expérimentales, et que les valeurs plus élevées calculées par Jeffers et al (1989) sont plus appropriées

Tableau 9 : Temps de demi-vie d'une sélection de solvants chlorés dans les nappes, soumis à des processus de dégradation physico-chimiques (d'après US-EPA, 1998)

Composants	Demi-vie (jours)
Perchloréthylène	58 – 365 ou plus
Tétrachloroéthylène	4 – 365 ou plus
1,1-Dichloroéthylène	No data
1,2-Dichloroéthylène	3 – 365 ou plus
Chlorure de vinyle	38 – 365 ou plus
1,1,1-Trichloroéthane	30 – 300 ou plus
1,2-Dichloroéthane	300 ou plus
Tétrachlorure de carbone	1 – 365 ou plus
Chloroforme	30 – 365 ou plus
Dichlorométhane	Biodégradation directe
Chlorométhane	Biodégradation directe

Tableau 10 : Temps de demi-vie d'une sélection de solvants chlorés dans les nappes, soumis à des processus de biodégradation réductive anaérobie (déhalorespiration, déhalogénéation) (d'après Holmes et al, 1998)

Il est important de noter que les restrictions d'usage ne portent pas forcément que sur les nappes, mais peuvent également concerner la surface. En effet, des aménagement de surface importants tels que des constructions autoroutières ou aménagement de zones, peuvent avoir une influence sur l'hydrodynamisme de nappes peu profondes, et modifier ainsi les conditions de l'atténuation naturelle.

Il est parfois invoqué, en matière de délais jugés acceptables, la comparaison avec les délais nécessaires à une approche interventionniste de traitement : il ne faudrait pas, dans l'idéal, que les délais requis par l'atténuation naturelle, soient significativement plus longs que ceux requis par une action interventionniste. Cette « règle » peut être assouplie en ne considérant comme acceptable en matière de délai, non pas un délai comparable à celui requis par d'autres méthodes, mais un délai « gérable » en matière de risques par rapport aux populations (cible considérée comme prioritaire dans la plupart des cas) ou aux autres intérêts.

Dans certains cas, comme en Grande Bretagne (cf. § 3.2.) ou aux Pays-Bas (cf. 3.4.) par exemple, une durée au-delà de trente années n'est plus jugée comme facilement gérable, mais on peut imaginer, surtout dans le cadre du principe de spécificité, que cette valeur puisse être modulée en fonction des contraintes techniques et socio-économiques qui s'appliquent au site à réhabiliter.

5.3. PROPOSITIONS QUANT A LA POSITION DE LA FRANCE EN MATIERE D'ATTENUATION NATURELLE

La prise en compte de l'atténuation naturelle dans la démarche de gestion et de réhabilitation des sites et sols pollués est techniquement possible, au moins pour les substances qui y sont soumises.

5.3.1. Définir les cas d'exclusion

La principale difficulté réside dans la définition d'un cadre favorable à la fois techniquement, économiquement, politiquement et socialement.

Considérant que l'atténuation naturelle nécessite du temps pour se mettre en place, il semble indispensable d'exclure de son champ d'application les sites qui doivent faire l'objet d'une réhabilitation rapide : exclusion définitive dès lors que la nécessité découle de risques sur la santé publique, tant que ces risques ne sont pas ramenés à un niveau jugé acceptable, et exclusion sous conditions si les nécessités ne sont que d'ordre économique.

Ainsi, un traitement par atténuation naturelle d'une pollution des sols par exemple, pourrait-il être envisagé sur un site faisant l'objet d'un réaménagement immobilier, si ce réaménagement ne conduit pas à mettre en contact la population avec la pollution ?

Mais il s'agit bien d'un **traitement** par atténuation naturelle, c'est à dire qu'il faut effectivement faire la démonstration que la pollution est naturellement en voie de résorption, dans des conditions de dégradation pérennes, et qu'il ne s'agit pas simplement de la laisser en place. Dans cette démonstration, il devra également être vérifié que la dégradation de la pollution ne peut pas s'accompagner de changements de spéciation tels que la pollution se verrait mobilisée vers les nappes ou vers l'atmosphère.

Ainsi, la condition indispensable pour envisager l'atténuation naturelle comme seul mode de traitement est double :

1. Disposer de temps ;
2. Ne pas s'adresser à des pollutions représentant un risque à terme pour la santé publique.

C'est, dans l'esprit, l'approche qui semble être envisagée pour les sols aux Pays-Bas, où l'atténuation naturelle peut être invoquée pour atteindre les valeurs cibles réglementaires (*target values*), une fois que le site ne présente plus de danger pour la santé humaine (cf. § 3.4.).

En France, nous ne disposons pas de valeurs réglementaires génériques, et le traitement du site s'arrête dès lors que le niveau de pollution résiduelle atteint est conforme aux objectifs fixés à l'issue d'une évaluation des risques. En théorie donc, il n'est nul besoin de faire appel à des traitements complémentaires, dès lors que les objectifs fixés sont atteints. Mais, comme pour les Pays-Bas, on peut s'attendre à ce que la prise en compte des éco-systèmes dans la démarche de fixation des objectifs de réhabilitation conduise à des objectifs plus difficiles à atteindre que si on ne considérait que le seul aspect de la santé humaine : dans ces cas là, comme cela est possible aux Pays-Bas, des mécanismes naturels pourraient, si les conditions le permettent, prendre le relais de techniques de traitement plus interventionnistes.

5.3.2. Réserver l'atténuation naturelle aux milieux eaux ?

Même si, théoriquement, tous les milieux sont susceptibles d'être le siège de l'atténuation naturelle, au vu des expériences menées et du retour réalisé dans différents pays, le **milieu « eaux souterraines »** est celui qui est le mieux adapté à celle-ci en tant que technique de réhabilitation.

En effet, deux arguments s'opposent à considérer l'atténuation naturelle comme efficace au niveau des sols.

1. Une pollution des sols peut alimenter une pollution des autres compartiments : atmosphère, eau souterraine, eau de surface. Laisser l'atténuation naturelle agir sur le long terme dans les sols, risque d'exposer inutilement les autres milieux à la pollution. Cependant, si le niveau résiduel de la pollution dans le sol est tel qu'elle ne présente plus de risque pour les autres récepteurs, l'atténuation naturelle peut être un moyen de parfaire un traitement, permettant ainsi de passer d'un risque résiduel de 1/10000 à un risque résiduel de 1/100000, ou de 1/100000 à 1/1000000 ;
2. Un sol représentant un milieu hétérogène, les conditions physico-chimiques ou biologiques qui y règnent sont éminemment variables d'un point à un autre. Ainsi, certaines zones peuvent-elles s'avérer plus ou moins favorables à l'installation de conditions favorables à l'atténuation naturelle. Une caractérisation suffisamment précise de l'intégralité du milieu sol et des conditions qui y règnent semble illusoire.

De plus, le milieu sol est un milieu exposé aux activités anthropiques ou aux aléas naturels : il est difficile de prévoir précisément quelles seront les évolutions des conditions sur le long terme.

Par contre, le sol est un milieu facilement accessible, permettant d'accéder aux zones à traiter (excavation, traitement sur place) : il sera peut-être plus efficace et plus rapide de le traiter directement.

Pour le milieu atmosphérique, le mécanisme principal de traitement naturel est la dispersion par convection, et la redéposition des particules émises. Le remède le plus efficace reste le contrôle de la source à l'origine de la pollution.

Pour le **milieu « eau de surface »**, la position peut être plus nuancée que pour le milieu sol. En effet, trois mécanismes naturels principaux entrent en action :

1. La dilution ;
2. La biodégradation ;
3. La dégradation photo-chimique.

Selon les cas, ils peuvent être suffisants pour réduire significativement l'impact d'une pollution. Cependant, ils ne peuvent être éventuellement invoqués que si la source de pollution est contrôlée, et n'alimente plus le milieu. En particulier, la pollution des eaux

de surfaces par des sédiments contaminés ne devrait pas être abordée sous l'angle de l'atténuation naturelle, tant que ces sédiments sont en place et alimentent la pollution.

Sans exclure les sols du champ potentiel de l'atténuation naturelle, il semble que l'approche soit la mieux adaptée aux problèmes des eaux souterraines et des eaux de surface.

Pour les sols, deux conditions pourraient apparaître rédhibitoires :

1. Si la présence de pollution dans les sols risque d'exposer des populations à un niveau de risque jugé inacceptable ;
2. Si la présence de pollution dans les sols représente une source d'aggravation de la qualité des nappes d'eau souterraines ;

Si l'une ou l'autre de ces conditions se présentaient, l'atténuation naturelle ne pourrait pas représenter le moyen de traitement le mieux adapté.

5.3.3. Déterminer les mécanismes d'atténuation naturelle à privilégier

Dans l'atténuation naturelle, plusieurs mécanismes entrent simultanément en jeu, en général (cf. 2). Parmi ceux-ci, seuls les mécanismes destructifs sont potentiellement intéressants, s'il s'agit d'abaisser un niveau de pollution.

Parmi les autres mécanismes, il y a les mécanismes séquestrants (exemple : adsorption), qui, en immobilisant la pollution, empêchent son transfert vers des récepteurs. Ces mécanismes, s'ils présentent un intérêt, doivent être pérennes, au risque de se retrouver confronté, dans le futur, à un problème de pollution plus difficile à gérer.

Il y a également les mécanismes de dilution ou de transfert d'une partie ou de toute la pollution d'un milieu à un autre.

La dilution est inéluctable dès lors que des substances atteignent la nappe. S'il s'agit effectivement d'un mécanisme naturel, on ne peut pas en faire un principe de gestion.

Le transfert de polluant d'un compartiment vers un autre (du sol vers l'atmosphère ou la nappe, de la nappe vers l'atmosphère ou la rivière, de la rivière vers l'atmosphère ou la nappe etc) sont souvent incontournables, et, comme la dilution, ne peuvent pas être valablement défendus comme principes de gestion.

Enfin, il y a les mécanismes de transformation du polluant, en un ou des sous-produits ayant des propriétés autres que celles du produit de départ. Ces mécanismes sont toujours associés aux mécanismes destructifs, mais peuvent se produire sans qu'il y ait forcément disparition de la molécule polluante, en particulier s'il s'agit de substances inorganiques. Les sous-produits ou les substances transformées peuvent être inoffensives ou plus toxiques que les substances de départ.

Ainsi, il paraît indispensable de considérer que l'atténuation naturelle DOIT inclure au minimum :

- Un processus destructif ;
- Un processus de séquestration.

Ces processus, seuls ou combinés, doivent être dominants sur les autres processus.

De plus, pour les processus destructifs, il faut qu'ils ne génèrent pas de sous-produits gênants, revenant à transférer la pollution ou à en changer ses caractéristiques sans en améliorer les effets néfastes.

De même, les processus séquestrants doivent pouvoir être maintenus dans une gamme suffisamment large de conditions physico-chimiques, de façon à pouvoir s'assurer de leur pérennité – voire à persister sur une durée minimale ?

5.3.4. Ne pas faire reposer l'atténuation naturelle sur les seules données du diagnostic approfondi

La démonstration de l'atténuation naturelle doit reposer sur une étude spécifique, dont une partie consiste à faire la synthèse des données existantes concernant le site, et une autre de compléter les investigations par des travaux supplémentaires si nécessaire.

En effet, l'objectif du diagnostic approfondi n'est pas au départ de démontrer la réalité de l'atténuation naturelle, mais de réunir les éléments d'information nécessaires pour évaluer les risques liés à l'état des milieux et à leurs usages. Si une bonne partie des informations recueillies au cours des différents diagnostics est certainement utilisable pour démontrer l'atténuation naturelle, il n'est pas certain que ces diagnostics, pas suffisamment orientés vers ce but, soient suffisants pour véhiculer toute l'information nécessaire. L'étude de démonstration de l'atténuation naturelle ne doit pas s'apparenter à un diagnostic, mais à une étude de faisabilité d'un traitement : on n'est plus dans une étape d'évaluation des risques, mais bien dans une logique de traitement de site.

Le contenu et la réalisation des études de démonstration de l'atténuation naturelle sont décrits sous forme de protocoles (cf. § 3.). Le contenu technique de ces documents reste assez similaire :

- Bilan des données existantes ;
- Schéma conceptuel préliminaire ;
- Complément de d'étude si nécessaire ;
- Affinement du schéma conceptuel ;
- Recherche des critères prouvant l'existence de l'atténuation naturelle ;
- Evaluation des différents processus identifiés ;
- Modélisation du système, et fiabilité des modèles ;
- Conception d'un programme de suivi, permettant de vérifier les prévisions des modèles.

Enfin, cette étude doit être présentée à l'autorité compétente pour le site étudié, qui détient le pouvoir final de décision.

Ce contenu technique se retrouve dans la plupart des protocoles publiés : les différences ne portent pas tant sur la façon dont on peut mettre en évidence des processus naturels, que sur le contexte dans lequel on les met en évidence.

Il ne semble pas indispensable d'imposer l'un ou l'autre des protocoles existants, de même qu'il n'apparaît pas souhaitable d'imposer des protocoles trop directifs sur la façon de procéder (nombre de piézomètres à installer, type de modèles à utiliser...). Il est indispensable par contre de fixer le niveau de résultat attendu, en particulier au niveau des critères prouvant l'existence des processus naturels, et de l'évaluation de la pérennité et de l'efficacité des différents processus identifiés.

5.3.5. Prendre en compte la multiplicité des substances

Toutes les substances ne réagissent pas de la même façon aux processus naturels de l'atténuation. Par conséquent, les études menées pour démontrer l'atténuation naturelle pour une substance donnée, ne sont pas forcément valable pour démontrer l'atténuation naturelle d'une autre substance.

Dans le cas où la pollution concerne plusieurs substances simultanément, la démonstration de l'atténuation naturelle comme procédé de traitement ne doit pas seulement aborder le seul cas de la substance ou des substances favorables, mais doit préciser le sort de l'ensemble des substances identifiées :

- Vérifier que toutes les substances présentes sont susceptibles de répondre favorablement ; le délai de traitement à prendre en compte est le délai le plus long ;
- Compléter la démarche d'atténuation naturelle des substances favorables, par des proposition de traitement, ou de gestion, des autres substances, éventuellement en combinant traitements actifs et atténuation naturelle.

5.3.6. Prévoir un dispositif de gestion

Enfin, l'atténuation naturelle ayant été retenue pour traiter un site, il reste à s'assurer que tout se passe comme les études l'ont prévu.

Pour cela, il convient de pouvoir vérifier sur le terrain l'adéquation des données de suivi au cours du temps avec les prévisions des modèles.

Il faut également prévoir la conduite à tenir au cas où des divergences graves entre le suivi sur le terrain et les calculs devaient apparaître.

Bien que l'atténuation naturelle réclame du temps, ces contraintes font qu'il est préférable de limiter le délai de traitement à une durée raisonnable. Trente années, comme suggéré en Grande Bretagne, peuvent représenter un délai suffisamment long, et, en principe, encore gérable puisque appliqué au suivi des centres d'enfouissement techniques.

Aux Etats Unis, les délais ne sont pas fixés : il doivent être « raisonnables », mais également « comparables » à ceux d'autres techniques. La combinaison des deux approches (durée comparable à celles obtenues par d'autres méthodes, mais ne dépassant pas une certaine limite, compatible avec les possibilités de suivi administratif et technique) permet de définir un cadre précis, tout en laissant une certaine liberté d'appréciation.

Le risque est, dans ce cas, que la limite haute retenue devienne de fait un délai acceptable dans tous les cas. Les principes de fixation des délais ne doivent, par conséquent, pas reposer uniquement sur les possibilité techniques, mais prioritairement sur des nécessités de gestion des risques :

1. L'évaluation détaillée des risques fixe les objectifs de réhabilitation ;
2. La gestion du risque impose les délais acceptables pour atteindre les objectifs ;
3. L'étude de faisabilité de traitement évalue la possibilité d'atteindre les objectifs dans les délais prévus. L'atténuation naturelle peut faire partie des traitement proposés ;
4. Si aucune technique ne permet d'atteindre les objectifs dans les délais souhaités, des mesures de restriction d'usages devront être prises. Dans le cadre de ces mesures, l'atténuation naturelle contrôlée pourra, le cas échéant, trouver sa place.

Enfin, il faut s'assurer que le dispositif de suivi de l'atténuation naturelle jusqu'à la fin du traitement, est bien intégré dans les coûts, et peut être effectivement mis en place, en particulier si des terrains privés doivent être sollicités.

5.3.7. Prendre en compte les difficultés socio-politiques par la communication

Un des principaux handicaps à l'utilisation de l'atténuation naturelle est la difficulté de percevoir par le public la différence entre l'inaction, et une action dont on ne peut réellement juger des résultats qu'au bout de X (30 ?) années.

De plus, les évolutions sur le terrain peuvent être tellement lentes, qu'il faut plusieurs années pour commencer à discerner les tendances réelles.

Pendant un délai assez long, on peut ainsi se retrouver sans argument objectif à avancer indiquant « qu'il se passe quand même quelque chose ».

Si l'atténuation naturelle doit trouver sa place dans les processus de gestion des sites et sols pollués, il est ainsi préférable qu'elle soit affichée comme une méthode de

traitement à part entière, au même titre qu'une autre, et qui a fait l'objet d'une sélection parmi d'autres méthodes possibles, sur des critères objectifs.

Par conséquent, l'atténuation naturelle doit avoir été sélectionnée parmi d'autres voies de traitement possibles, et non pas être proposée comme seule solution possible, sauf évidemment s'il n'y a effectivement pas d'autre alternative. Un document préalable justifiant les choix de telle ou telle technique de traitement retenue devrait être produit, afin de pouvoir faire ressortir les arguments permettant sa justification dans les documents d'information destinés aux collectivités locales ou au public.

Cette démarche de sélection d'une méthode parmi plusieurs potentiellement possibles peut représenter un argument pour indiquer que l'atténuation naturelle ne résulte pas d'une volonté d'inaction, mais bien d'un processus réfléchi et cohérent.

5.4. ENQUETE MENEES AUPRES DE QUELQUES ORGANISMES FRANÇAIS PUBLICS OU PRIVES

5.4.1. Résultats de l'enquête

A la demande du MEDD, une étude a été menée auprès de quelques organismes français publics et privés qui possèderaient des cas d'études de prise en compte de l'atténuation naturelle comme technique de dépollution des sites. Sur les six organismes contactés (ADEME, TotalFinaElf, EXXON, SHELL, HPC Envirotec S.A. et GESTER), deux ont répondu mais un seul a communiqué des informations sur le sujet (cf. paragraphe ci-dessous).

5.4.2. Exemple : procédure de dépollution microbiologique par l'Atténuation Naturelle Dynamisée

Le laboratoire Biochimique de l'Université de Caen et les Sociétés HPC Envirotec S.A. et PLANREAL ont mis en place une procédure de traitement microbiologique in situ des polluants organiques. L'objectif est la quantification du patrimoine génétique d'un environnement pollué par des méthodes biotechnologiques génétiques, comme la Polymerase Chain Reaction (PCR), par des méthodes écotoxicologiques, microbiologiques, bio-géochimiques, etc...(Source : Karg, F., HPC Envirotec, communication personnelle de septembre 2002 : « Utilisation de la biotechnologie génétique pour la dépollution microbiologique par l'Atténuation Naturelle Dynamisée »).

La procédure utilisée fait appel à un ensemble de tests ordonnés dans un protocole appelé « Biorestauration protocol ». Ce dernier est une étude de faisabilité technico-économique qui détermine les conditions de mise en œuvre sur les sites des techniques de traitements les plus « soft » et les moins onéreuses parmi les suivantes :

- ✓ Atténuation naturelle contrôlée ;

- ✓ Atténuation naturelle dynamisée (AND) ;
- ✓ Traitement microbiologique « In-situ » ;
- ✓ Traitement microbiologique « On-site » ;
- ✓ Traitement « Off-site » ;
- ✓ Traitement par des techniques combinées.

Le « Biorestauration protocol » se compose de deux étapes :

- 1) Réalisation au laboratoire de tests spécifiques aux milieux physico-chimiques et micro-biologiques du site pollué par des produits organiques (hydrocarbures aliphatiques, aromatiques, solvants chlorés, etc.). Il s'agit, par le biais de ces tests, d'être en mesure de répondre aux questions suivantes :
 - ✓ Existe-t-il en sous-sol du site des microorganismes capables de détruire les polluants ?
 - ✓ Quel est le pouvoir actuel de dégradation ?
 - ✓ Un traitement actif microbiologique est-il nécessaire ?
 - ✓ Quels sont les facteurs inhibiteurs pour la dégradation microbiologique sur site ?
 - ✓ Quel est le degré optimal de dégradation microbiologique réalisable sur le site ?
 - ✓ La dégradation microbiologique in-situ est-elle une option valable sur le site ?
 - ✓ Comment et avec quels moyens, la dégradation microbiologique in-situ peut-elle être effectuée sur le site ?
- 2) La deuxième étape consiste en l'exploitation de données spécifiques au site (obtenues par les tests de la première étape) afin d'effectuer des simulations par un modèle, le « Biorestauration Protocol Computer Model » (BPCM). Le résultat est la définition de la faisabilité technique des techniques diverses de Biorestauration.

Le « Biorestauration protocol » privilégie la Bio-Atténuation Naturelle Dynamisée pour dégrader les polluants, par voie micro-biologique naturelle, à une vitesse maximale de manière à diminuer les coûts. Il s'agit en réalité d'une quantification du patrimoine génétique microbiologique d'un environnement pollué de manière à identifier les parties de l'ADN (Acide désoxyribonucléide) des micro organismes responsables de la formation des enzymes capables de détruire une molécule polluante. Une fois que le potentiel génétique de dégradation des micro organismes d'un site est connu, une dynamisation in situ de ceux-ci par traitement biologique dynamisme l'atténuation naturelle des polluants.

Le « Biorestauration protocol » traite les trois catégories de polluants retenus dans l'étude (solvants chlorés, HAP et métaux / métalloïdes).

6. Conclusion

L'atténuation naturelle d'une pollution n'est pas aisée à mettre en évidence. Pour les trois familles de polluants sélectionnés (solvants chlorés, métaux, HAP), l'atténuation naturelle est possible. Cependant, **les mécanismes mis en jeu** sont différents :

Solvants chlorés

La relative solubilité de cette famille de polluants, ainsi que leur volatilité importante, font que les processus prépondérants sont la dispersion, la dilution, la volatilisation et la biodégradation. L'atténuation naturelle des solvants chlorés se traduit par une élimination progressive des atomes de chlore de la structure des solvants. Cette élimination du chlore se fait essentiellement par un processus de déhalogénéation réductive, mettant en jeu des bactéries (conditions biotiques / anaérobie). Ainsi, la mise en évidence de l'atténuation naturelle des solvants chlorés se fait par la détection de séquences où les solvants les plus halogénés sont prépondérants en début de panache (à proximité de la source), et disparaissent progressivement au profit de solvants moins halogénés au fur et à mesure que l'on avance dans le panache. Pour ce type de polluants, des conditions réductrices, ainsi que la présence de bactéries adaptées, sont nécessaires à l'atténuation naturelle.

Métaux / métalloïdes

Contrairement aux solvants chlorés, l'atténuation naturelle des métaux et métalloïdes ne se traduit pas par une disparition des polluants. Le métal reste présent dans le milieu, mais sous une forme chimique (spéciation) le plus souvent moins mobile et moins toxique. Les propriétés physico-chimiques étant très différentes d'un métal à l'autre, il n'est pas possible de généraliser l'atténuation naturelle de ces polluants. Pour chaque type de métal, il faudra voir si les conditions du milieu sont favorables à la prépondérance de l'espèce la moins toxique / mobile, et si les concentrations en espèces toxiques diminuent au cours du temps, au profit des espèces présentant un risque moindre. De plus, ces réactions peuvent être réversibles en cas de changement de conditions du milieu.

HAP

L'adsorption sur la phase solide et la biodégradation sont les phénomènes majeurs d'atténuation naturelle des HAP. L'adsorption augmente, tandis que la solubilité et la biodégradation diminuent avec le nombre de cycles des HAP. Les HAP peuvent s'adsorber de manière irréversible sur la matière organique des sols, en formant des résidus liés. De plus, les HAP, jusqu'à 5 cycles, sont intrinsèquement dégradables, et conduisent à l'apparition de molécules intermédiaires (métabolites) lors de leur dégradation.

Cependant, sur les sites pollués, les 16 HAP de la liste de l'EPA sont accompagnés d'une multitude d'autres molécules organiques. De plus, de nombreuses voies de

dégradation co-existent, en fonction des bactéries présentes. De ce fait, il semble difficile de mettre en évidence l'atténuation naturelle des HAP par l'apparition de métabolites, comme cela est le cas pour les solvants chlorés. De ce fait, seule une diminution des quantités en polluants, accompagnée de la détection de bactéries dégradantes et d'une diminution de la toxicité associée au cours du temps peut indiquer la possibilité d'atténuation naturelle des HAP.

Les **solutions retenues par les pays étrangers** en terme d'atténuation naturelle sont relativement différentes.

Etats-Unis

Il existe de nombreux protocoles pour mettre en évidence l'atténuation naturelle des solvants chlorés (aucun protocole n'est retenu à l'heure actuelle pour les deux autres types de polluants). Les organismes les ayant mis au point ne disposant pas d'outils méthodologiques communs de gestion des sites. L'EPA est actuellement chargé d'harmoniser ces protocoles. De façon générale, ces protocoles s'articulent autour de trois axes :

- Développement de modèles conceptuels ;
- Analyse des données du site (évolution spatiale et temporelle de la pollution) ;
- Etablissement d'un programme de surveillance à long terme du site afin de vérifier les prédictions issues des modèles.

Pour que le potentiel d'atténuation naturelle des solvants chlorés soit pris en considération, il est généralement nécessaire d'avoir simultanément :

- Confirmation de la réduction de masse de contaminant sur le site ;
- Présence d'indicateurs géochimiques et biologiques de l'atténuation naturelle ;
- Potentiel microbiologique évident.

Grande-Bretagne

L'atténuation naturelle est prise en compte en Angleterre et au Pays de Galles sur la base des principes de l'évaluation et sur le contrôle du risque. Le guide anglais considère les trois types de contaminants étudiés qui sont les solvants chlorés, les métaux et les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP).

Les principaux critères retenus par l'*Environment Agency* pour la reconnaissance du potentiel de l'atténuation naturelle contrôlée sont :

- L'atténuation naturelle devra être démontrée de façon évidente (cela requiert un temps minimum de 2 à 3 ans de recueil de données). Il sera également important de prouver que les cibles ne courent aucun risque ;
- L'atténuation naturelle se montrera efficace pour la protection des cibles et aucune expansion significative du panache de pollution ne doit apparaître au sein de la nappe ;

- Les processus d'atténuation naturelle devront être contrôlés afin de vérifier que l'atténuation naturelle s'effectue selon les attentes définies au préalable ;
- Les objectifs de décontamination s'achèveront dans un laps de temps raisonnable, ne dépassant pas une génération ou 30 ans.

Quatre étapes à suivre sont décrites pour la mise en évidence du potentiel d'atténuation naturelle dans les eaux souterraines :

- 1- Appréciation de la fiabilité de l'atténuation naturelle (*Screening stage*) ;
- 2- Démonstration des caractéristiques propres de l'atténuation naturelle (*Demonstration stage*) ;
- 3- Evaluation du potentiel d'atténuation naturelle à long terme (*Assessment stage*) ;
- 4- Vérification que les résultats sont en accord avec les objectifs de décontamination fixés (*Implementation-Performance Monitoring Stage*).

Allemagne

Il n'existe actuellement pas de document officiel sur l'atténuation naturelle en Allemagne, mais des réflexions sur le sujet ont actuellement lieu par le biais du projet INCORE (INtegrated Concept for groundwater REmediation) initié par l'EPA de Baden-Württemberg et associé à l'Université de Tübingen. L'atténuation naturelle y est considérée comme une partie de l'approche générale de traitement. L'idée principale est de combiner les technologies de traitement de façon à traiter les panaches de pollution avec des méthodes passives.

Pays-Bas

A l'heure actuelle, il n'existe pas aux Pays-Bas de protocole légal pour l'utilisation de l'atténuation naturelle dans la gestion des sites contaminés. La réflexion hollandaise sur le sujet, reprise par le réseau européen NICOLE, considère à chaque étape du traitement la prise en compte de l'atténuation naturelle comme option possible de réhabilitation.

Danemark

L'atténuation naturelle (pour le milieu « eau » uniquement) est considérée dans la troisième étape de la méthode de l'évaluation des risques danoise, au cours de laquelle la réduction de la concentration du contaminant est prise en compte.

Si l'évaluation du risque montre que les critères de qualité des eaux souterraines ne peuvent pas être obtenus même en considérant l'atténuation naturelle, alors la contamination représente un risque réel. Une nouvelle évaluation des risques doit alors être menée avec de nouvelles données de caractérisation du site obtenues grâce à des investigations complémentaires.

Si l'évaluation du risque indique que les critères de qualité des eaux souterraines sont obtenus, un suivi doit être réalisé de façon à s'assurer que la dégradation et les conditions attendues sont présentes.

Si la dégradation s'effectue plus lentement que ce qu'il était attendu, une nouvelle évaluation des risques avec la nouvelle constante de dégradation doit être faite.

Autriche

Jusqu'à aujourd'hui, aucune discussion technique sur l'atténuation naturelle ou sur l'utilisation de l'atténuation naturelle pour la gestion des sites contaminés n'a été officiellement entreprise en Autriche. L'opinion de l'« Austrian Federal Environment Agency » rejoint les idées développées par le programme européen CLARINET et soutient également les conditions fixées pour la prise en compte de l'atténuation naturelle dans la gestion des sites contaminés (en zone saturée uniquement), à savoir :

- Définir les frontières géographiques ;
- Définir une limite dans le temps qui permettrait d'atteindre les objectifs de qualité fixés ;
- Mise en place d'un plan de suivi ;
- Besoin d'un dépôt bancaire (si un pollueur potentiel existe) afin d'avoir une sécurité financière. La somme devra être suffisante pour assurer la mise en place du plan de suivi.

De façon générale, on constate que même s'il n'existe pas de protocoles officiels sur l'atténuation naturelle, la plupart des pays européens ont déjà émis des réflexions sur la prise en compte de l'atténuation naturelle dans la gestion des sites contaminés (zone saturée). La démonstration de la faisabilité de l'atténuation naturelle repose sur un certain nombre de « preuves » (*lines of evidence*) permettant de mettre en évidence les mécanismes de l'atténuation et leur efficacité, et sur des modélisations permettant de prévoir l'évolution de la contamination des milieux au cours du temps, jusqu'à l'atteinte des objectifs fixés :

- Confirmation de la réduction de masse du contaminant sur le site ;
- Présence d'indicateurs géochimiques et biologiques prouvant que l'atténuation naturelle intervient dans la réduction de la concentration du contaminant ;
- Potentiel microbiologique permettant la biodégradation ;

Trois cas d'études sur les trois types de polluants retenus ont illustrés le traitement de sites contaminés par atténuation naturelle (en zone saturée). Il est toutefois important de signaler que dans le cas des HAP, l'atténuation naturelle n'était effective qu'une fois la source enlevée (en ce qui concerne le contrôle de la contamination).

La principale limitation de l'utilisation de l'atténuation naturelle réside dans la nécessité de disposer de délais suffisamment longs, ce qui pose deux difficultés :

1. La garantie de la pérennité des mécanismes pendant toute la durée nécessaire ;
2. La nécessité de disposer d'espace « souterrain » et en surface, qui implique des options de gestion foncière.

Toutefois toutes les substances ne présentent pas le même comportement face à ces processus naturels. On constate que celles qui réagissent le mieux sont également celles pour lesquelles un traitement actif est le plus facile à réaliser. Les cas de pollution ne concernant qu'une seule substance étant rares, il faut s'assurer du devenir de l'ensemble des substances identifiées, et non pas seulement des seuls produits susceptibles d'être favorables à l'atténuation naturelle.

Enfin, du fait de la lenteur des processus naturels, l'atténuation naturelle peut facilement être perçue comme une inaction, si elle n'est pas examinée au même titre que d'autres procédés de traitement. Dans ce cas, l'atténuation naturelle ne doit pas se limiter à la seule mise en évidence des processus susceptibles d'intervenir, mais inclure, en tant que méthode de traitement, l'étape de suivi indispensable, permettant de démontrer la justesse des modèles prédictifs, pour lesquels aucun recul suffisant n'est actuellement disponible pour en apprécier la fiabilité.

L'utilisation de l'atténuation naturelle comme technique de traitement de sites, communément désignée par « atténuation naturelle contrôlée », ne consiste pas seulement à démontrer l'existence de processus naturels s'appliquent aux substances rencontrées, mais également à prendre en compte l'ensemble d'une démarche, englobant des contraintes liées aux spécificités du site et de son environnement.

Les contraintes générées par ce cadre, nécessaire pour éviter tout risque de dérive, risquent, dans bien des cas, d'être supérieurs aux bénéfices espérés de la méthode, tant du point de vue économique que technique. L'US-EPA, de ce fait, voit plutôt l'atténuation naturelle contrôlée comme un traitement de suite, ou associé à des mesures actives, sans que cela ne représente cependant une exigence réglementaire.

L'absence d'un cadre minimum définissant des règles ou des objectifs à appliquer à l'atténuation naturelle, risque d'aboutir à des difficultés de perception entre une démarche d'inaction et une démarche de traitement passif. Ainsi, faut-il garder à l'esprit un certain nombre de questions à se poser, au moment d'évaluer la technique de réhabilitation à retenir. Les grandes lignes d'un encadrement pourraient être :

- **Définir les cas d'exclusion** : exclure les sites qui doivent faire l'objet d'une réhabilitation rapide ;
- **Déterminer les mécanismes d'atténuation naturelle à privilégier** : un processus destructif et un processus de séquestration, seuls ou combinés, doivent être dominants sur les autres processus ;
- **Ne pas faire reposer l'atténuation naturelle sur les seules données du diagnostic approfondi** : une étude spécifique doit être menée pour la démonstration de l'atténuation naturelle ;
- **Prendre en compte la multiplicité des substances** : l'étude doit préciser le sort de l'ensemble des substances identifiées ;

- **Prévoir un dispositif de gestion** : vérifier sur le terrain l'adéquation des données de suivi au cours du temps avec les précisions des modèles ;
- **Prendre en compte les difficultés socio-politiques par la communication** : l'atténuation naturelle doit être sélectionnée parmi d'autres méthodes de façon à indiquer qu'elle ne résulte pas d'une volonté d'inaction, mais bien d'un processus réfléchi et cohérent.

7. Bibliographie

- ANTEA (1994). Polluants organiques courants : caractéristiques physico-chimiques et comportement dans le milieu naturel – Rapport ANTEA n° A00495. 37 p.
- Bouwer, E.J. (1994). Bioremediation of chlorinated solvents using alternate electron acceptors, In *Handbook of Bioremediation*: (Norris, R.D., Hinchee, R.E., Brown, R., McCarty, P.L, Semprini, L., Wilson, J.T., Kampbell, D.H., Reinhard, M., Bouwer, E.J., Borden, R.C., Vogel, T.M., Thomas, J.M., et Ward, C.H., Eds.), Lewis Publishers, Boca Raton, FL, p.149-175.
- Bradley, P.M., et Chapelle, F.H. (1996). Anaerobic mineralization of vinyl chloride in Fe(III)-reducing aquifer sediments : Environ. Sci. Technol., 40:2084-2086.
- Bradley, P.M., et Chapelle, F.H. (1997). Kinetics of DCE et VC mineralization under methanogenic et Fe(III)-reducing conditions. Environ. Sci. Technol., 31:2692-2696.
- BRGM, (1997). Recherche des principales causes de pollution accidentelle des eaux souterraines par les solvants chlorés. Rapport BRGM R 39786 UPE SGN 97. 56 p.
- Carey, M. A., Finnamore, J. R., Morrey, M. J. et Marsland, P. A. (2000). Guidance on the Assessment et Monitoring of Natural Attenuation of Contaminants in Groundwater. English et Welsh Environment Agency. 131 p.
- Clottes, P. (1993). Synthèse sur la biodégradation accélérée in-situ. Rapport BRGM R 36817 ENV-4S-93. 38 p.
- Cutter, T., Jones, D., McCarthy, P., Macnaughton, S., Lethbridge, G., Swannell, R.P.J. (2001). Cutter, T., Jones, D., McCarthy, P., Macnaughton, S., Lethbridge, G., Swannell, R.P.J. (2001). Project SIREN : Phase 2a. Benchmarking of Natural Attenuation Procedures. English et Welsh Environment Agency. R and D Technical Report P2-208/TR/1, 37 p.
- Danish Environmental Protection Agency, Danish Ministry of the Environment (2002). Guidelines on Remediation of Contaminated Sites. Environmental Guidelines N° 7 2002.
- Dictor, M.C., Berne, N., Saada, A. (2002). Influence of ageing of polluted soils on biodisponibility of phenanthrene. (poster). Les rencontres scientifiques de l'IFP : Microbiologie des hydrocarbures : état de l'art et perspectives. Paris, France, 6-7 juin 2002.
- Ferguson, C., Darmendrail, D., Ministère de l'Aménagement du Territoire et de l'Environnement (1999). Evaluation simplifiée des risques issus des sites pollués :

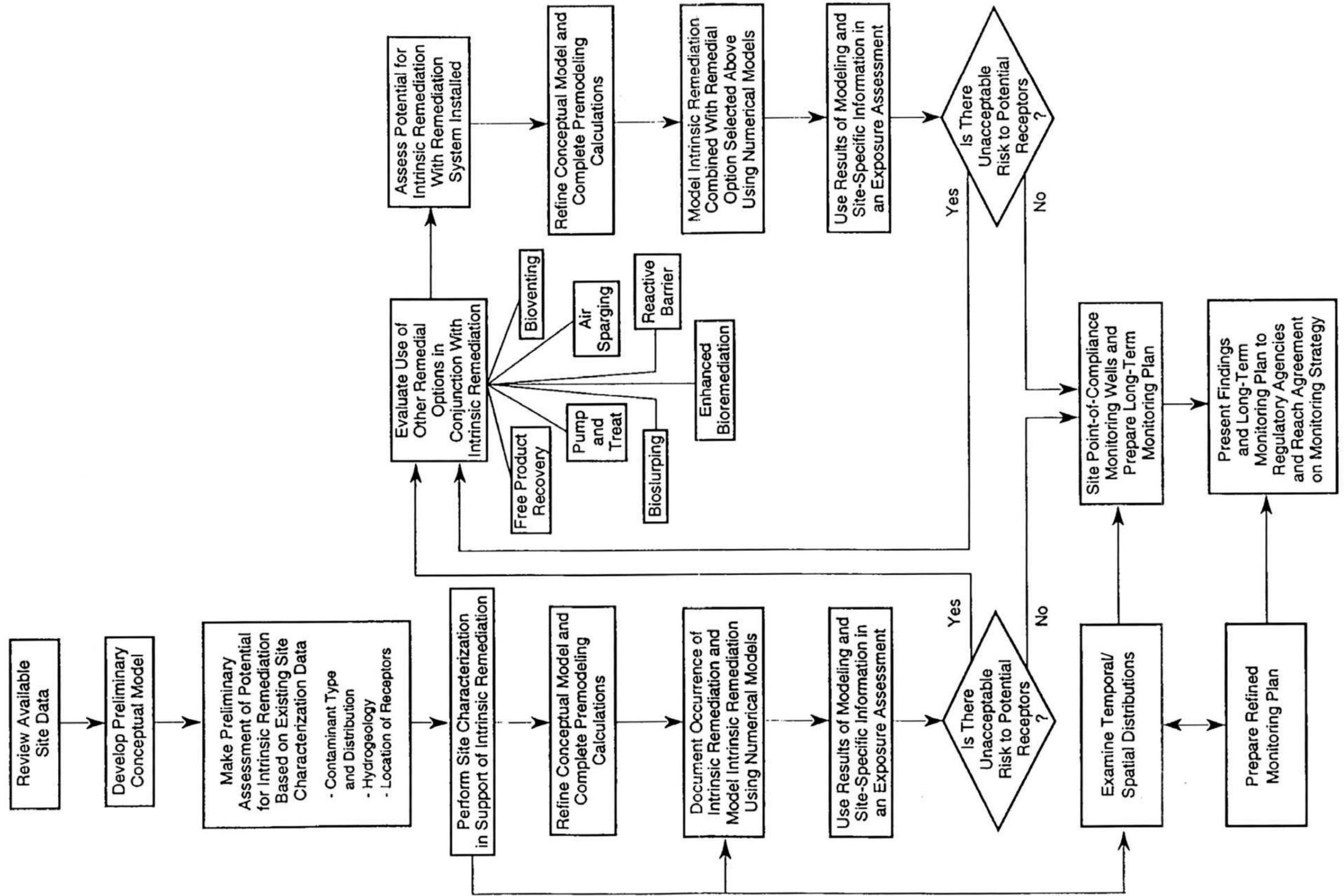
- Réglementation et pratiques dans 16 pays européens, rapport BRGM/RP-40743-FR, 61 p.
- Gérard, J.P., Nowak C., (2000). Participation aux travaux de l'Agence Européenne de l'Environnement (AEE), Comparaison des approches nationales en matière d'inventaires de sites, Rapport BRGM/RP-50493-FR, 83 p.
- Hart, A., (2002). Fate, transport and natural attenuation of contaminants in the sub-surface. R and D Interim Report P2-169, 8 p.
- Husson, N. et Ferrière, L., (1998). Connaissances et perspectives de l'atténuation naturelle. L'atténuation naturelle : un nouveau mode de gestion des sites contaminés ? Rapport de DESS de l'Université de Paris-Sud - en association avec l'ADEME, 122 p.
- ITRC et RTDF, (1999). Technical/Regulatory Guidelines. Natural Attenuation of Chlorinated Solvents in Groundwater : Principles and Practices. 123 p. <http://www.itcreweb.org/common/default.asp>
- Jones, D. Lethbridge, G., McCarthy, P., Thomson, S., (2001). Project SIREN : Phase 2a. Conceptual Site Model and Groundwater Model. English et Welsh Environment Agency. R and D Technical Report P2-208/TR/2, 64 p.
- Klier, N.J., West, R.J., et Donberg, P.A (1998). Aerobic biodegradation of dichloroethylenes in surface and subsurface soils : Chemosphere (sous presse).
- Lemière, B., Seguin, J.J., Le Guern, C., Guyonnet, D., Baranger, P. (2001). Guide sur le comportement des polluants dans les sols et les nappes – Applications dans un contexte d'Evaluation Détaillée des Risques pour les ressources en eau, BRGM/RP-50662-FR, 103 p.
- Lors, C. (2000). Mise en évidence de l'atténuation naturelle ou accélérée par des processus biologiques des HAP dans le sous-sol d'anciennes cokeries. CNRSSP/01/03. 67 p.
- Marseille, F. (1997). Influence de la matière organique sur la mobilité des métaux. CNRSSP/97/13. 22 p.
- McCarty, P.L., et Semprini, L. (1994). Ground-water treatment for chlorinated solvents, *In Handbook of Bioremediation* : (Norris, R.D., Hinchee, R.E., Brown, R., McCarty, P.L, Semprini, L., Wilson, J.T., Kampbell, D.H., Reinhard, M., Bouwer, E.J., Borden, R.C., Vogel, T.M., Thomas, J.M., et Ward, C.H., Eds.), Lewis Publishers, Boca Raton, FL. p. 87-116.
- Mossmann, J.R. (2001a). Rapport d'avancement de l'étude bibliographique sur le comportement de l'arsenic dans les milieux naturels. Rapport CNRSSP 01/10.

- Mossmann, J.R. & Lors, C. (2002). Promotion/limites de l'atténuation naturelle : cas des HAP Etablissement d'un protocole d'évaluation et caractérisation d'un site expérimental. Prise en compte des mécanismes de biodégradation. Rapport CNRSSP 01/18.
- National Research Council (2000). Natural attenuation for Groundwater remediation, ISBN 0-309-06932-7, National Academies Press, 274 p.
- NAVFAC (2000). Environmental Restoration Interactive CD Version 3.0. Naval Facilities Engineering Service Center, février 2000, CD-ROM.
- OCETA Environmental Technology Profile : Intrinsic and enhanced chlorinated solvent bioremediation. A full scale demonstration. <http://www.oceta.on.ca>.
- Quantin, C. (2001). Incidence de la biodégradation des matières organiques sur le devenir des métaux et des contaminants organiques dans un sol nickelifère et un sédiment de rivière. Thèse de l'Université Henry Poincaré, Nancy 1. 354 p.
- Saada, A. (2000). Mécanismes moléculaires et rétention de contaminants organiques industriels. Rapport BRGM/RP-50615-FR, 36 p.
- Sims, J.L., Suflita, J.M. et Russel H.H. (1991). Reductive Dehalogenation of Organic Contaminants in Soils and Ground Water. Rapport EPA/540/4-90/054, 12 p.
- Sinke, A., Hecho., I. (1999). Monitored Natural Attenuation : Review of existing guidelines and protocols. TNO-Nicole report TNO-MEP R99/313.
- Swartjes F.A. (1999). Risk-based assessment of soil and groundwater quality in the Netherlands : Standards and remediation urgency. Risk Analysis, **19**, 6, p. 1235-1249.
- Towler, P.A., Neaville, C., Letherbridge, G., Swannell, R.O.J. (2001). Project SIREN : Phase 1 Report. English et Welsh Environment Agency. R and D Technical Report P358, 13 p.
- USEPA (1994). Symposium on Natural Attenuation of Ground Water, Denver (Colorado) 29 août 1994. Rapport EPA/600/R-94/162, 148 p.
- USEPA (1997). Proceedings of the Symposium on Natural Attenuation of Chlorinated Organics in Ground Water, Dallas (Texas) 11-13 sept 1996. Rapport EPA/540/R-97/504, 191 p. <http://www.epa.gov/ORD/WebPubs/natural/natural.pdf>
- USEPA (1998). Technical protocol for evaluating natural attenuation of chlorinated solvents in ground water. Rapport EPA/600/R-98/128. <http://www.epa.gov/ada/pubs/reports.html>

- USEPA (1999). Use of Monitored Natural Attenuation at Superfund, RCDA Corrective Action, and Underground Storage Tank Sites. Final OSWER Directive 9200. 4-17 P.). <http://www.epa.gov/swerust1/directiv/d9200417.pdf>
- Wiedemeier, T., Swanson, M., Moutoux, D., Gordon, E., Wilson, J., Wilson, B., Kampbell, D., Haas, P., Miller, R., Hansen, J., et Chapelle F. (1998). Technical Protocol for Evaluating Natural Attenuation of Chlorinated Solvents in Ground Water. Rapport EPA/600/R/128, United States Environmental Protection Agency (EPA), Office of Research and Development.
- Wilson, J.T., Kampkell, D.H., Ferrey, M., Estuesta, P. (2001). Evaluation of the Protocol for Natural Attenuation of Chlorinated Solvents : Case study at the twin Cities Army Ammunition Plant. Rapport EPA/600/R-01/025, 38 p. <http://www.epa.gov/ada/pubs/reports.html>

ANNEXE 1

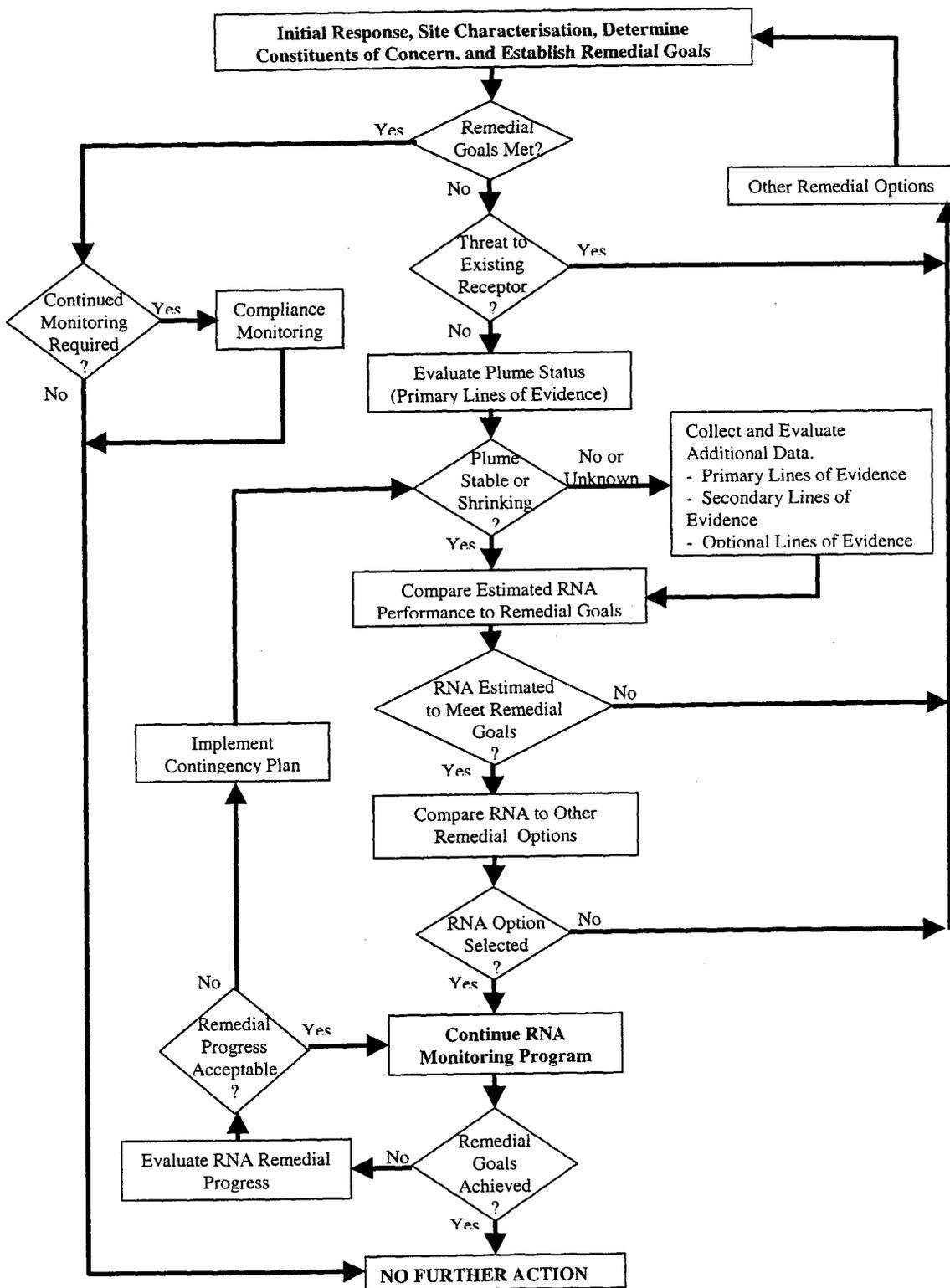
Exemple d'organigramme d'utilisation de l'atténuation naturelle en tant que stratégie de remédiation intrinsèque (Etats-Unis)



Annexe 1 : Organigramme de remédiation intrinsèque (Barcelona, M., (1994). Site Characterization : What Should We Measure, Where (When ?), and Why? USEPA. Symposium on Natural Attenuation of Ground Water, Denver (Colorado) 29 août 1994. Rapport EPA/600/R-94/162, p 20-25).

ANNEXE 2

Organigramme du protocole de l'« American Society for Testing and Materials » (ASTM) pour le traitement des sites pollués par l'atténuation naturelle (Etats-Unis)

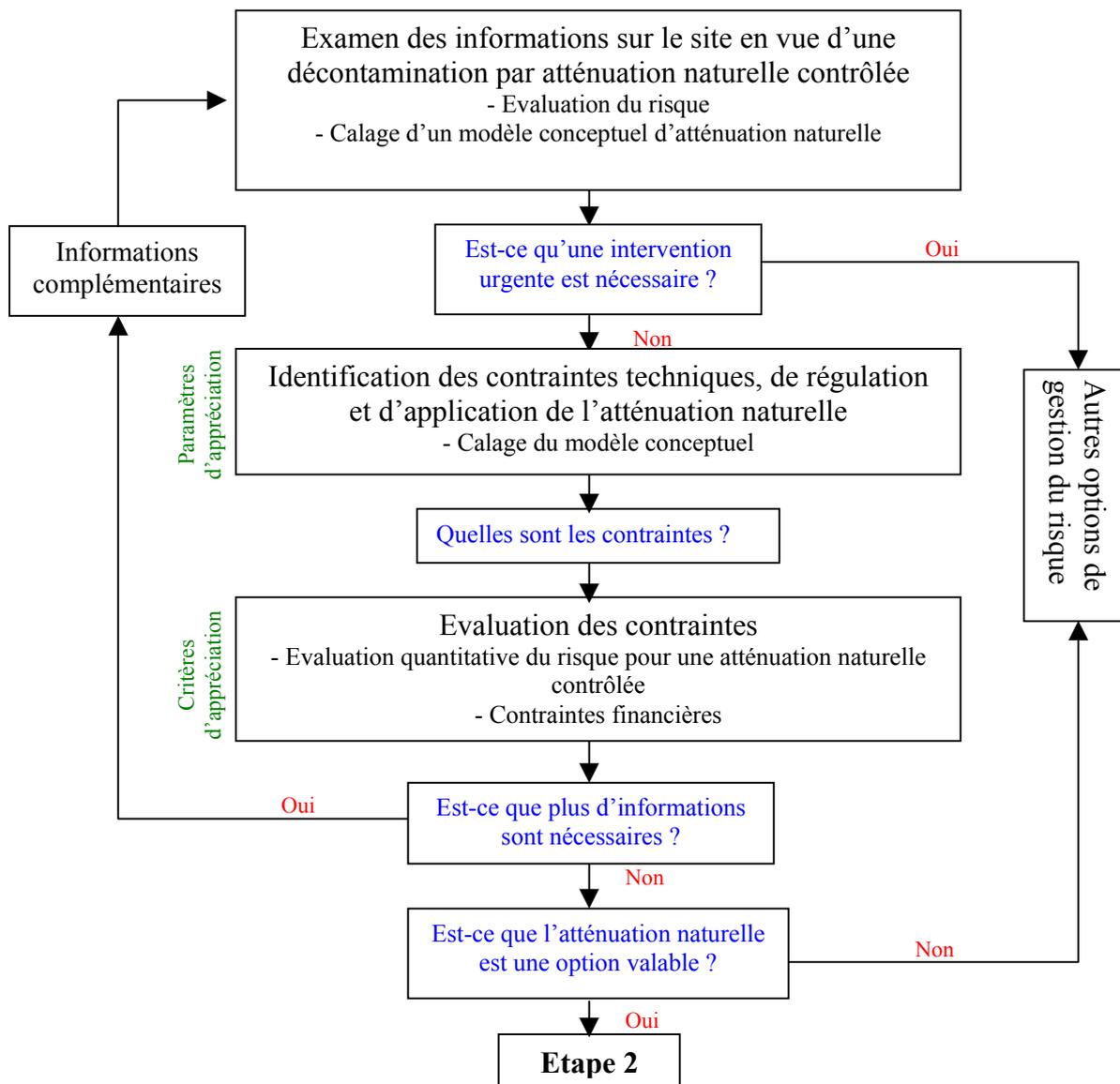


Source : Cutter, T., et al., 2001

ANNEXE 3

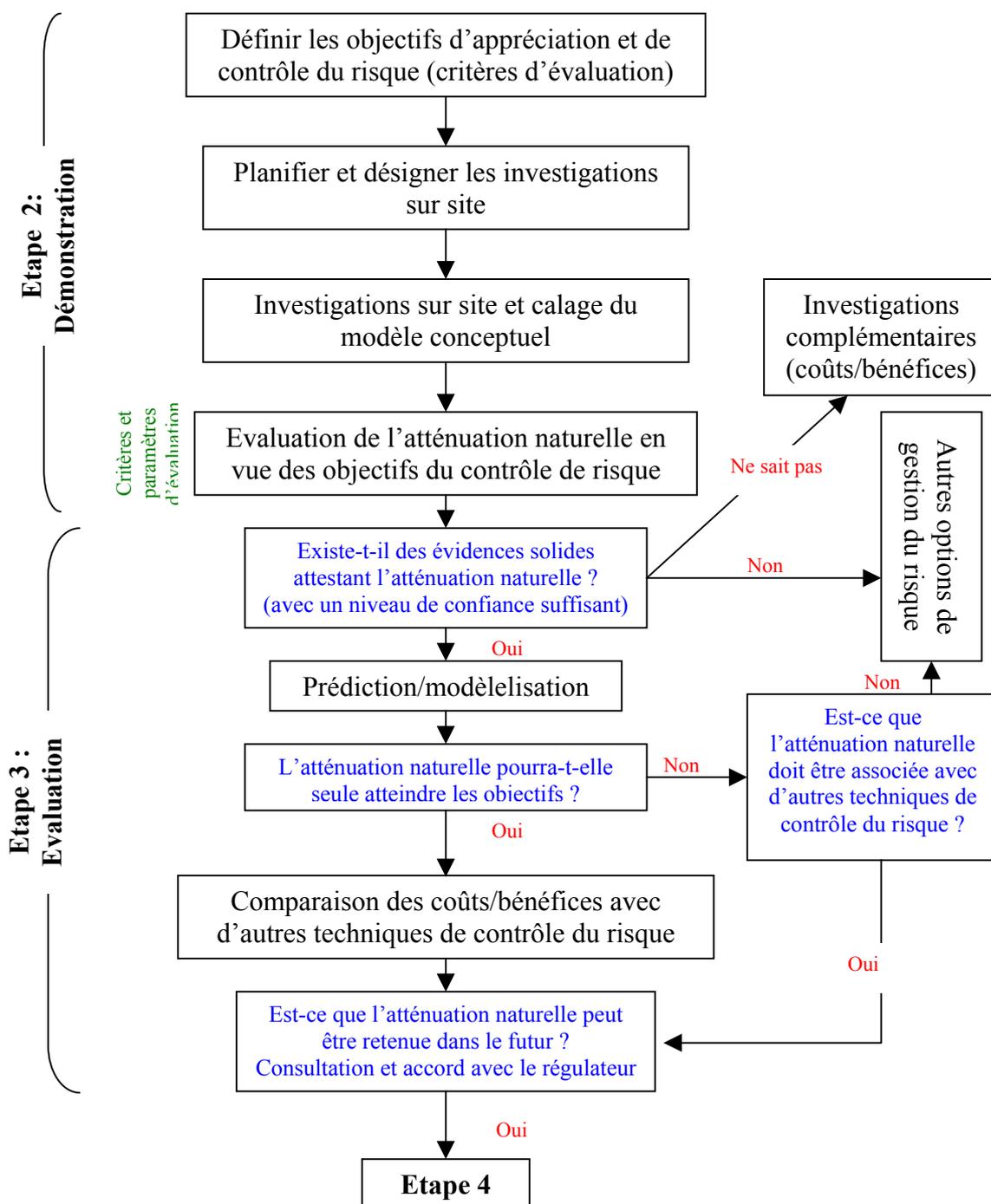
Organigrammes des trois étapes du protocole existant au Royaume-Uni pour la mise en évidence de l'atténuation naturelle

Etape 1 : Appréciation de la fiabilité de l'atténuation naturelle



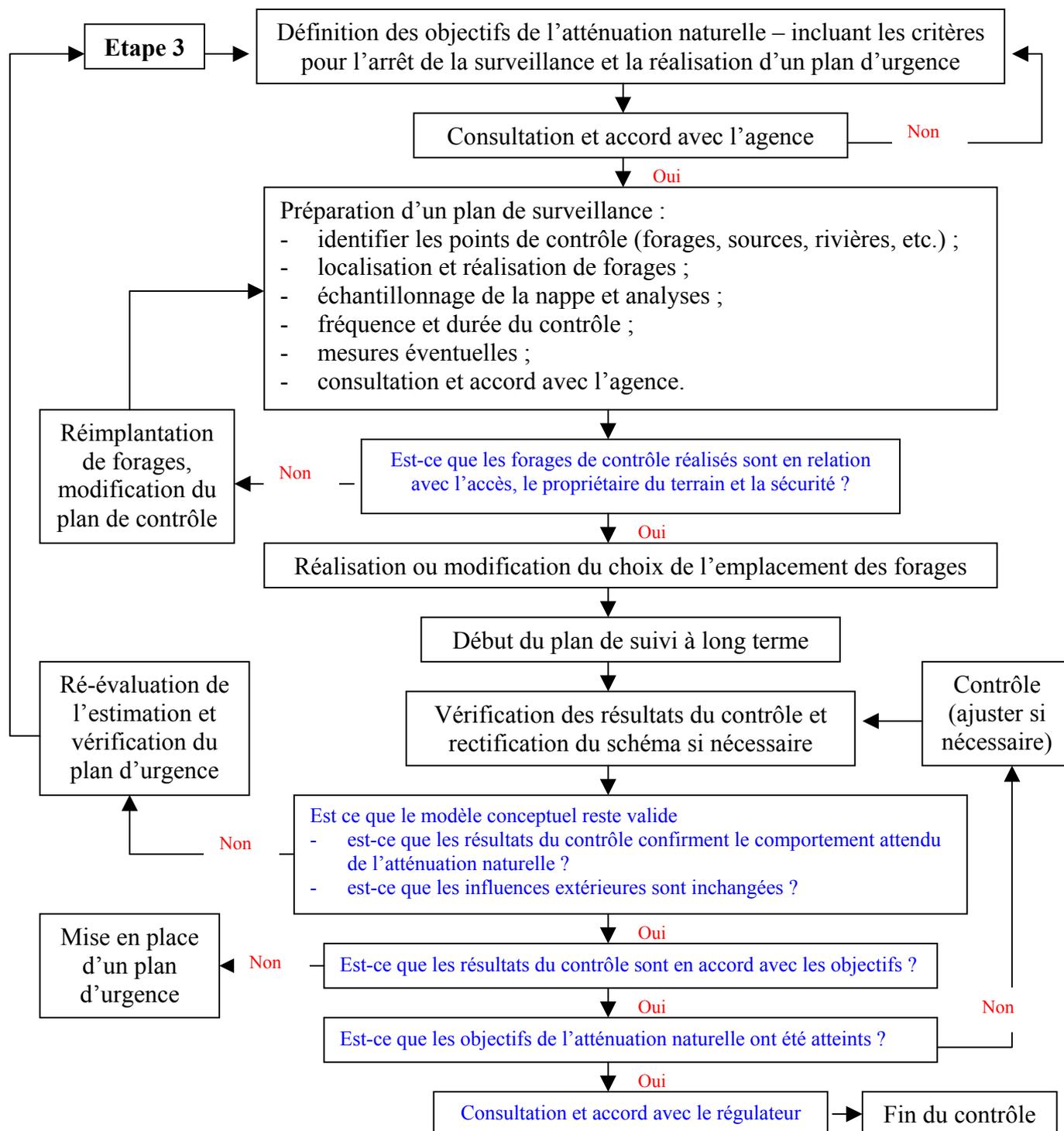
Annexe 2a : Diagramme récapitulatif de l'étape 1, extrait de « Carey, M. A., Finnamore, J. R., Morrey, M. J. et Marsland, P. A. (2000). Guidance on the Assessment et Monitoring of Natural Attenuation of Contaminants in Groundwater. English et Welsh Environment Agency. 131 p. »

Étapes 2 et 3 : Démonstration des caractéristiques propres de l'atténuation naturelle et évaluation du potentiel d'atténuation naturelle à long terme



Annexe 2b : Diagramme récapitulatif des étapes 2 et 3, extrait de « Carey, M. A., Finnamore, J. R., Morrey, M. J. et Marsland, P. A. (2000). Guidance on the Assessment and Monitoring of Natural Attenuation of Contaminants in Groundwater. English et Welsh Environment Agency. 131 p. »

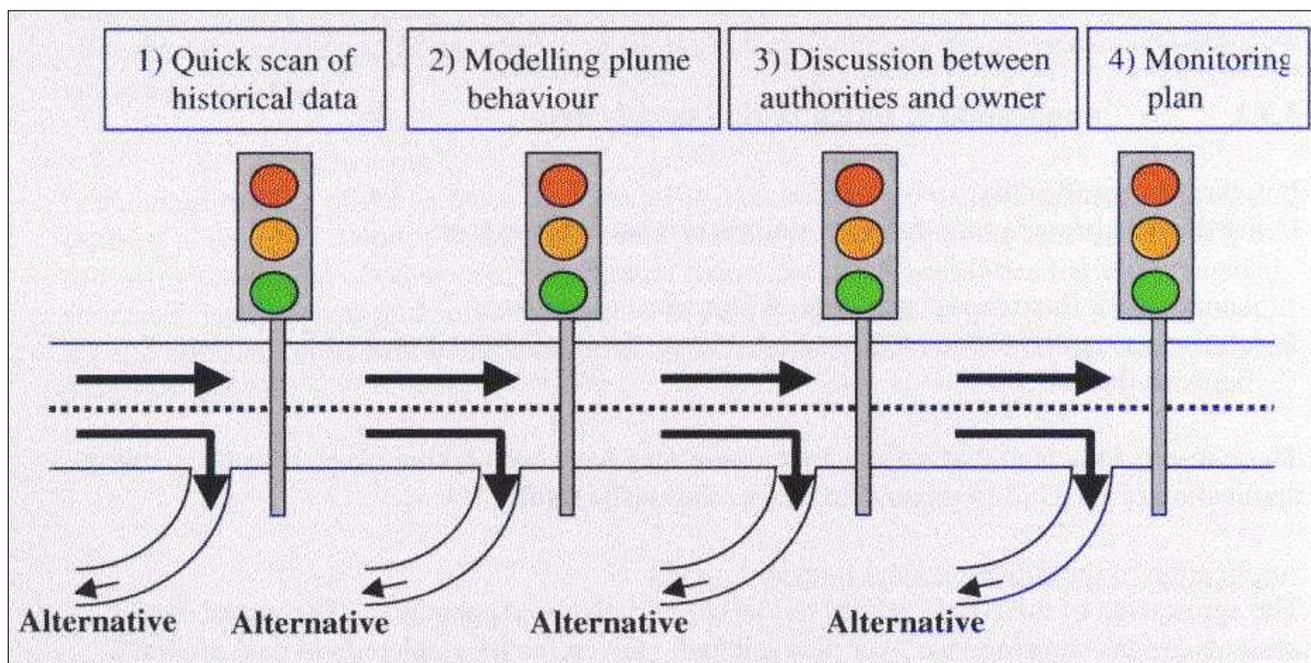
Etape 4 : Réalisation (mise en place du contrôle)



Annexe 2c : Diagramme récapitulatif de l'étape 4, extrait de « Carey, M. A., Finnamore, J. R., Morrey, M. J. et Marsland, P. A. (2000). *Guidance on the Assessment et Monitoring of Natural Attenuation of Contaminants in Groundwater. English et Welsh Environment Agency. 131 p.* »

ANNEXE 4

Schéma simplifié du système hollandais « feux de croisement » : réflexions sur la prise en compte de l'atténuation naturelle dans la gestion des sites contaminés



Source : Cutter, T., *et al.*, 2001



Centre scientifique et technique
Service environnement industriel et procédés innovants
3, avenue Claude-Guillemin
BP 6009 – 45060 Orléans Cedex 2 – France – Tél. : 33 (0)2 38 64 34 34