

# BIODéPOL : biodépollution des nappes phréatiques contaminées aux hydrocarbures



## Risques chroniques

Juin 2018

La région Provence-Alpes-Côte d'Azur a soutenu le projet de recherche BIODéPOL dans le cadre d'un appel à projet de recherche finalisée 2014 - 2016. Ce projet, conduit par ECOGEOSAFE et l'Ineris, en partenariat avec la Société du Pipeline Sud-Européen (SPSE), a porté sur l'étude des mécanismes de biodégradation des polluants dans les eaux souterraines, avec pour objectif d'évaluer la faisabilité opérationnelle et déterminer les conditions optimales de mise en œuvre de l'atténuation naturelle comme mesure de gestion d'un site pollué, en particulier aux hydrocarbures. En support des travaux réalisés par les partenaires dans leur laboratoire et leurs installations expérimentales, BIODéPOL s'est appuyé sur un site atelier situé dans la plaine de la Crau, dans le département des Bouches-du-Rhône.



Le 7 août 2009, un pipeline de pétrole brut traversant la plaine de la Crau et appartenant à la société SPSE s'est rompu, répandant plus de 5000 m<sup>3</sup> de pétrole brut au sein de la réserve naturelle nationale des Coussouls (figure 1).



Figure 1 : réserve naturelle nationale des Coussouls de Crau, PACA (@Ineris)

Le pétrole répandu au sol a migré suivant la topographie du terrain sur une surface de près de 5 hectares sur un sol caillouteux pauvre, recouvert d'une végétation rare et dispersée, le Coussoul, écosystème d'intérêt

national protégé. Une fraction s'est également infiltrée verticalement à la faveur des hétérogénéités du sol.

Les conséquences d'un tel accident industriel sur ce site classé réserve naturelle sont non négligeables. L'accident a eu un impact visuel et écologique, avec la mise en péril d'espèces animales et végétales endémiques. Cet accident a également entraîné une dégradation de la qualité des milieux, en particulier les sols et les eaux souterraines (nappe phréatique).

L'enjeu après l'accident était de mettre en sécurité la zone, d'éviter l'extension de la pollution et de dépolluer, traiter les milieux impactés. La Société SPSE a donc immédiatement mis en œuvre des moyens opérationnels pour extraire un maximum de pétrole brut du sol. Des solutions de traitement de la nappe phréatique ont également été déployées : pompage, écrémage de la lentille de flottant (sur la partie supérieure de la nappe) et barrière hydraulique pour éviter que le panache de pollution ne se propage. Ce dispositif a été maintenu pendant quatre ans, de mars 2010 à mars 2014.

Après les opérations d'excavations des terres souillées et le remblaiement, la surface a été rendue à son usage

pastoral en 2014. Pour la nappe phréatique une pollution persiste, et l'efficacité des mesures d'urgence mises en place après l'accident a décliné au fil du temps. C'est dans ce contexte que le site a été associé au projet BIODéPOL. En l'absence d'usages et de cibles proches (de risque pour la santé humaine), l'atténuation naturelle est rapidement apparue comme la solution de gestion la plus appropriée (sur la base d'un bilan coûts/avantages). Il convenait toutefois de le vérifier sur une période suffisante.

Certains aspects liés à la démonstration de l'atténuation naturelle (ATTENA, 2013), comme l'étude à différentes échelles des mécanismes pouvant conduire à diminuer le flux et les teneurs en polluants, doivent en effet permettre de constater l'existence mais également la pérennité du processus d'atténuation naturelle. Ainsi, la mise en place de l'atténuation naturelle comme mesure de gestion à long terme requiert des éléments de validation, aussi bien vis-à-vis de paramètres de caractérisation de la pollution actuelle que sur ceux à considérer dans le cadre d'une surveillance à mener tout au long du traitement.

L'activité microbiologique est bien souvent un mécanisme majeur de l'atténuation naturelle. Les enjeux du projet BIODéPOL étaient donc, d'une part, de développer une méthodologie d'étude opérationnelle de biodépollution, et, d'autre part, d'élaborer un protocole de surveillance spatio-temporel à même d'apporter les éléments nécessaires pour l'acceptabilité sociétale et administrative d'une telle gestion.

Pour y parvenir, se sont associés un bureau d'études, ECOGEOSAFE, et un organisme de recherche public, l'Ineris, soutenus par un industriel, SPSE, qui mettait à disposition un site atelier et ses capacités logistiques.

L'objectif du programme proposé était de valider et de développer des tests à différentes échelles, du laboratoire jusqu'au site pilote en passant par une cuve expérimentale, de mettre en œuvre des outils et des démarches innovantes, permettant de caractériser et de suivre l'atténuation naturelle, tout en considérant l'aspect opérationnel. Cette démarche s'est appuyée sur l'association d'approches à la fois hydrogéologiques, biogéochimiques et géophysiques.

## L'étude de la source de pollution

La rupture du pipeline, le 7 août 2009, a répandu dans la réserve des Coussouls de Crau, plus de 5000 m<sup>3</sup> de pétrole brut (phase pure ou organique). Ce pétrole présente une densité plus faible que l'eau (0,86 kg/L), ce qui implique une pollution de type LNAPL (*Light Non Aqueous Phase Solid*), le pétrole brut reste en surface. Il existe dès lors une interface liquide-solide à travers laquelle certains éléments du pétrole brut

se solubilisent et migrent dans la nappe phréatique en phase dissoute (figure 2).

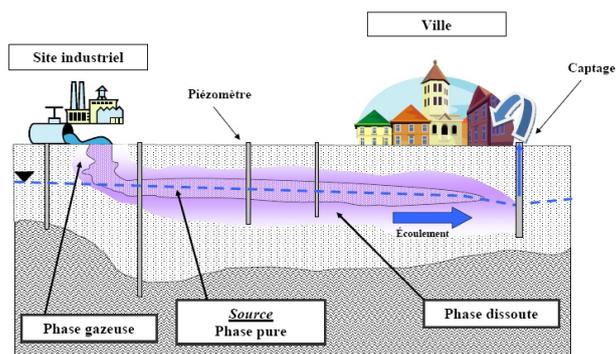


Figure 2 : schéma illustrant l'évolution de la pollution aux LNAPL dans un aquifère (©Ineris)

Des analyses spécifiques de la source de pollution ont été réalisées à deux périodes clefs : lors de l'accident en 2009 et en 2015 après arrêt des traitements post-accidentels (tableau 1).

% par masse d'échantillon	Pétrole brut 2009	Pétrole brut 2015
Total hydrocarbures (%)	95,62	57,21
Total aliphatiques (%)	83,30	60,60
Total aromatique (%)	10,69	39,21
Total HAP (%)	0,05	0,114
Total BTEX (%)	0,58	0,068

Tableau 1 : différence de composition du pétrole brut à intervalle de 6 ans

La quantité d'hydrocarbures par kilogramme de matière en 2009 et en 2015 a évolué. En effet, dans 1 kilogramme de matière en 2009, il y avait 95,62 % d'hydrocarbures alors qu'en 2015, il ne restait plus qu'en moyenne 57,21 %. Cette différence s'explique par une hydratation du pétrole brut (émulsion), par la présence de matière en suspension (fines particules), mais surtout par la solubilisation des composés hydrocarbonés du pétrole. Or, ce sont ces phases solubilisées (phase dissoute) qui sont particulièrement concernées par l'activité microbiologique et l'atténuation naturelle.

Ces données montrent également que le pourcentage de BTEX a été fortement diminué (contrairement aux HAP), confirmant une solubilisation plus importante de ces molécules dans la nappe. Le programme BIODéPOL s'est principalement focalisé sur une substance, le benzène (BTEX), qui est un polluant persistant et très mobile souvent retenu comme traceur de pollution dans le domaine des sites pollués.

## La biodégradation naturelle des hydrocarbures

L'atténuation naturelle peut reposer sur un ou plusieurs mécanismes selon le nombre d'atomes de carbone et la structure moléculaire des polluants. Plus le nombre d'atomes de carbone de la molécule est important, plus la solubilité, la volatilité et la biodégradabilité sont faibles. Les propriétés et caractéristiques physico-chimiques du milieu telles que le pH, la température, les éléments nutritifs rentrent aussi en ligne de compte.

La biodégradation, qui regroupe l'ensemble des mécanismes de transformation des contaminants en sous-produits par l'action de micro-organismes (bactéries, champignons), est un des processus majeurs dans l'atténuation naturelle. La biodégradation permet en effet la réduction de la masse des polluants (dissous) dans les milieux.

De nombreux micro-organismes ont des capacités à dégrader les composés impliqués dans les pollutions d'origine industrielle (dont les BTEX), en conditions aérobies ou anaérobies. Les polluants sont métabolisés par les bactéries et représentent une source d'énergie pour leurs activités.

À partir de données mesurées sur le terrain et d'expériences en laboratoire, ECOGEOSAFE a déterminé les activités microbiennes (figure 3) et a pu dresser une capacité assimilative des hydrocarbures en fonction des différents accepteurs d'électrons en présence.

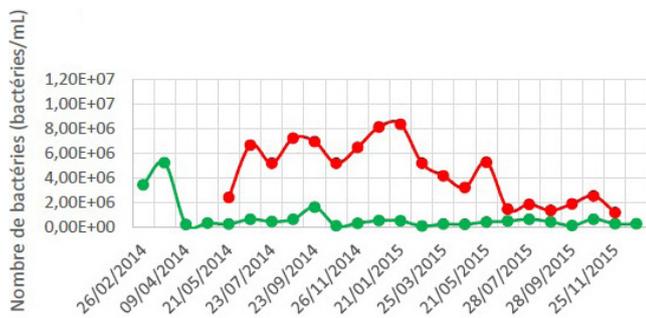


Figure 3 : dénombrement bactérien (nombre de bactéries/mL) à partir de deux piézomètres (amont en vert et aval en rouge) (©ECOGEOSAFE)

Une distribution spatiale des activités microbiennes particulières au site étudié a ainsi été réalisée, et vient confirmer les constats effectués sur d'autres sites similaires, rappelés dans le projet ATTENA, 2013 (figure 4), quant à l'existence de processus de biodégradation impliquant des métabolismes différents.

Les tests microbiologiques développés ont permis de déterminer les capacités de biodégradation du site par la flore microbienne endémique (figure 5). De nombreuses études au laboratoire ont été réalisées en pré-

sence de différentes concentrations en benzène (allant de l'ordre du  $\mu\text{g/L}$  au  $\text{mg/L}$ ) avec des souches pures ou des consortia issus du site étudié.

### Schématisation du profil de l'aquifère

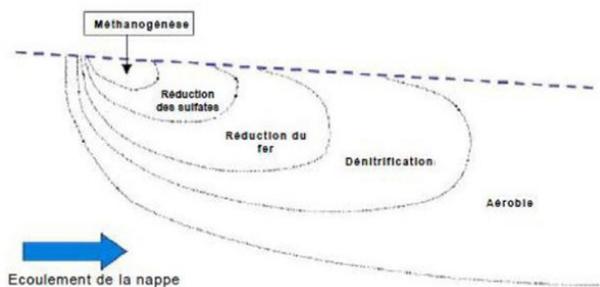


Figure 4 : évolution schématique de l'établissement des différents métabolismes microbiens (ATTENA, 2013)

ECOGEOSAFE a pu observer que la flore microbienne de la Crau possède une capacité de biodégradation de l'ensemble des BTEX. Les expériences au laboratoire ont montré qu'elle était à même de tolérer, en autres hydrocarbures, de fortes concentrations en benzène (test avec  $90 \text{ mg/L}$ ) et d'activer son métabolisme pour le dégrader et l'utiliser comme substrat de croissance (figure 4).

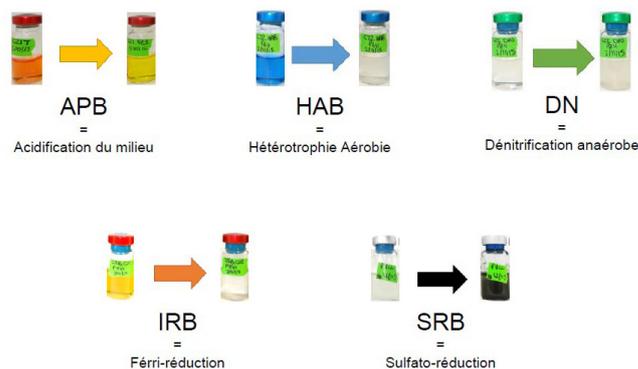


Figure 5 : illustration de différents tests d'activités (©ECOGEOSAFE)

Ces études ont permis d'identifier les mécanismes, les paramètres de contrôle des activités microbiennes et de déterminer les leviers d'action à même de les suivre voire de les stimuler, générant ainsi une barrière microbologique réactive.

## La comparaison d'outils et de méthodes de mesures et d'échantillonnage sur site

La caractérisation et le suivi sur le long terme de la qualité des eaux souterraines et d'autres paramètres pertinents est un point essentiel de la démarche de gestion par atténuation naturelle.

L'Ineris a réalisé une comparaison entre outils et protocoles d'échantillonnage des eaux souterraines sur le

site atelier de la Crau entre 2014 et 2015. L'objectif étant de comparer les résultats obtenus à partir de différents dispositifs afin d'alimenter le retour d'expérience, tout en rendant plus robuste la connaissance de la pollution sur le site et le choix des moyens de surveillance du milieu eau souterraine à considérer dans le cadre du traitement par atténuation naturelle.

La démarche de comparaison menée a reposé sur l'acquisition d'un important jeu de données de concentrations, relatif à une gamme de valeurs étendue. Plusieurs campagnes ont été effectuées durant la période 2014-2015 sur le site atelier de BIODÉPOL, dont quatre majeures, considérant à chaque fois plusieurs piézomètres (BTEX, HAP, Hydrocarbures Volatils >C5-C10 et Hydrocarbures Totaux >C10-C40 ont été recherchés).

De nombreux dispositifs ont été utilisés dans le cadre d'une approche mononiveau puis multiniveaux au sein de la colonne d'eau (nappe phréatique) : PDB pour « *Passive Diffuse Bag* », membranes (LDPE et de dialyse), hydrasleeve, bailer, préleveur commandé, échantillonneur pneumatique à vessie associé à des obturateurs ou packers, pompe immergée PP36 avec système *Low Flow* (figure 6), pompe Gigant, pompe péristaltique.



Figure 6 : pompe PP36 avec système Low Flow utilisée sur un puits du site atelier (© Ineris)

L'interprétation des résultats obtenus a permis de mettre en avant certaines tendances comme l'absence d'influence de la purge. En effet, la purge de l'ouvrage qui est destinée à renouveler l'eau du piézomètre s'est ici révélée sans conséquence sur le résultat du suivi

des concentrations considérant l'incertitude analytique. Ce constat peut être associé à l'existence de terrains perméables qui contribuent sur tout ou partie de la colonne d'eau au renouvellement naturel (constat effectué au sein d'ouvrages récents, datant de 2009 pour les plus anciens).

Une autre tendance mise en évidence concerne le suivi des BTEX au niveau superficiel de la nappe. Les dispositifs employés donnent des résultats comparables au regard de l'incertitude fournie par le laboratoire et ceci pour différentes gammes de concentrations (figure 7).

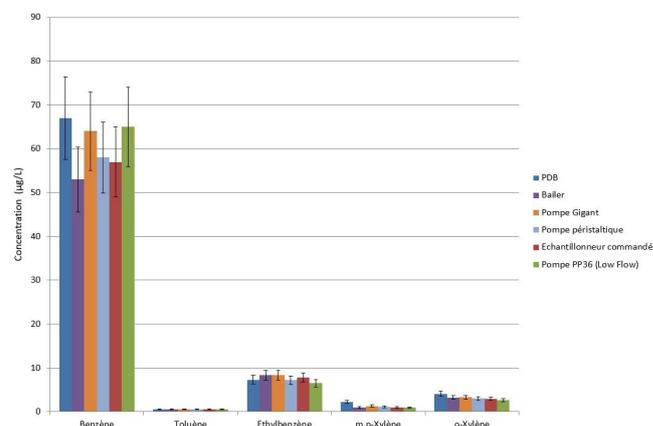


Figure 7 : concentration en BTEX déterminées par le laboratoire pour différents dispositifs de prélèvement (concerne un piézomètre de la zone impactée et une campagne) (© Ineris)

Des essais complémentaires ont permis d'identifier :

- / un transport sous forme de particules ou colloïdes ; pour les HAP et les fractions d'hydrocarbures >C10-C16 les concentrations mesurées sont ainsi attribuées à l'existence d'un transport particulaire/colloïdale ;
- / des flux verticaux au sein de la colonne d'eau pouvant conduire à homogénéiser les concentrations ; au niveau d'un piézomètre, la présence de flux verticaux peut être liée à des écarts de température, à la diffusion moléculaire au sein de la colonne d'eau, ou encore à l'hétérogénéité de l'aquifère et en particulier à des différences de perméabilités entre horizons recoupés par le piézomètre (crépiné).

L'ensemble de ces résultats a conduit à une réflexion entre partenaires pour dimensionner une surveillance adaptée au site atelier, considérant également les paramètres spécifiques à la surveillance de la biodégradation. Cette démarche s'est appuyée sur un modèle numérique développé dans le cadre de BIODÉPOL (modèle d'écoulement et de transport du benzène au sein de la nappe de la Crau et de la zone d'étude).

Cet exercice de comparaison initié dans le cadre de BIODÉPOL, mené à l'échelle réelle et également à

l'échelle d'une cuve expérimentale (Plate-forme expérimentale ARDEVIE de l'Ineris, Aix-en-Provence), a été conduit par l'Ineris sur plusieurs sites pollués de 2014-2017. Il montre clairement les multiples précautions nécessaires à l'obtention de données robustes, représentatives de la distribution d'un panache de polluant au sein du milieu eau souterraine et de la dynamique générale de biodégradation des hydrocarbures en lien avec l'atténuation naturelle (que l'on s'intéresse aux polluants dissous ou adsorbés sur des fractions particulaires, colloïdales).

## Le bilan et les perspectives

Le programme de recherche BIODéPOL aura permis d'acquérir des connaissances opérationnelles liées à l'application de l'atténuation naturelle. En effet, les travaux conduits par ECOGEOSAFE et l'Ineris, avec la participation de la société SPSE, ont permis des avancées dans la mise en œuvre opérationnelle de la solution de gestion d'un site pollué par atténuation naturelle.

Les travaux réalisés par les partenaires ont démontré que la lentille de flottant de brut résiduel était stabilisée sur le long terme à l'aplomb de la zone d'infiltration initiale. Le confinement des polluants dissous à proximité de celle-ci par les mécanismes d'atténuation naturelle dont, en particulier les activités microbiennes, a aussi été démontré. En effet, après identification des micro-organismes en présence, les paramètres d'activation, d'entretien et de contrôle des activités microbiennes ont été identifiés et quantifiés.

Des cartes dynamiques de distribution de polluants ont également été produites à différentes périodes (figure 8).

Un panel de dispositifs, du plus simple (ex. bailer) au plus complexe à mettre en œuvre (ex. échantillonnage sous obturateurs), a été testé et comparé, ce qui a permis d'optimiser le plan d'échantillonnage des eaux souterraines.

Ces éléments ont contribué à définir un protocole de surveillance adapté, proportionné.

En outre, l'Ineris a produit un modèle numérique prédictif du transfert de pollution (basé sur le benzène), intégrant l'aspect écoulement et transport (avec bio-

dégradation). Ce modèle devra être validé et évoluer dans le temps au regard d'une comparaison entre prédictions et mesures. Mais il a d'ores et déjà été employé pour dimensionner la surveillance sur le long terme et en définir les critères (points de suivi, fréquence, etc.).

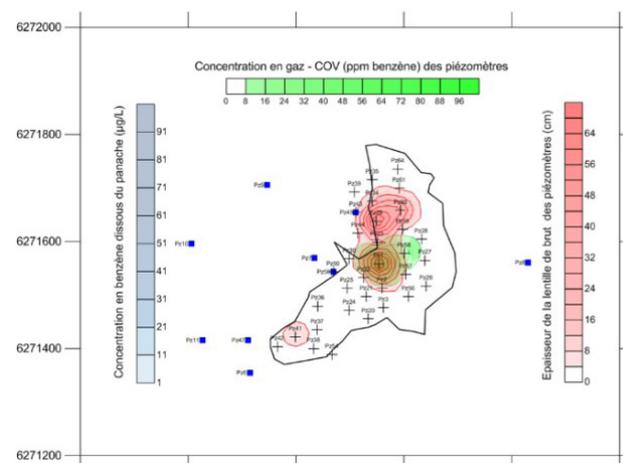


Figure 8 : résultats des mesures d'épaisseur de brut, panache de benzène dans l'eau et des COV dans les piézomètres (campagne 2016) (©ECOGEOSAFE)

Enfin, des seuils d'intervention et des solutions correctives ont été proposés en cas d'évolution « anormale » par rapport aux prédictions du modèle. Il s'agit de fournir dans le cadre d'un protocole de gestion par atténuation naturelle, et par anticipation, des solutions permettant de maîtriser les conséquences d'une évolution contraire aux tendances constatées précédemment et aux prédictions.

Depuis la fin du projet et la mise en place de la gestion par atténuation naturelle, deux années supplémentaires sont spécifiquement dédiées à l'acquisition et à l'exploitation de données complémentaires sur les HAP.

Finalement, BIODéPOL, aura rempli ses objectifs, contribuant à l'acceptation de l'atténuation naturelle comme solution de gestion sur le site atelier et précisant les modalités opérationnelles de démonstration de cette solution de gestion, complétant ainsi les travaux menés précédemment dans le cadre du projet ATTENA.

Les partenaires remercient la région Provence-Alpes-Côte d'Azur (PACA) et le ministère de la Transition écologique et solidaire (MTES) pour le soutien financier apporté au projet de recherche BIODéPOL.

Pour aller plus loin :

- / ADEME. Protocole opérationnel de gestion de sites par ATTEnuation NATurelle dans le contexte réglementaire français. Projet ATTENA - Phase 2 (2013)
- / BARPI (Bureau d'Analyse des Risques et Pollutions Industriels). Fiche n°36654 (2011)
- / Ineris. Rapports BIODéPOL disponibles sur Ineris.fr (2016, 2017)
- / Ineris. Comparaison d'outils et de protocoles d'échantillonnage des eaux souterraines. Réf. DRC-17-164249-11465A (2018).