HAL
open science

Surveiller une biodégradation d'hydrocarbures par des mesures géo- électriques et des analyses de CO2

Cécile Noel, Jean-Christophe Gourry, Ioannis Ignatiadis, Stéfan Colombano, Fabienne Battaglia-Brunet, Christophe Guimbaud, Alain Dumestre, Sébastien Dehez

To cite this version:

Cécile Noel, Jean-Christophe Gourry, Ioannis Ignatiadis, Stéfan Colombano, Fabienne Battaglia-Brunet, et al.. Surveiller une biodégradation d'hydrocarbures par des mesures géo- électriques et des analyses de CO2. 3èmes rencontres nationales de la recherche sur les sites et sols pollués, ADEME, Nov 2014, Paris, France. hal-01079718

HAL Id: hal-01079718

https://brgm.hal.science/hal-01079718

Submitted on 3 Nov 2014

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Surveiller une biodégradation d'hydrocarbures par des mesures géo-électriques et des analyses de CO_2

Cécile NOEL[1,2*], Jean-Christophe GOURRY[1], Ioannis IGNATIADIS[3], Stefan COLOMBANO[4], Fabienne BATTAGLIA[5], Christophe GUIMBAUD[2], Alain DUMESTRE[6], Sébastien DEHEZ[7]

[1] : BRGM (DRP/RAI), 3 avenue Claude Guillemin, BP 36009, 45060 Orléans Cedex 2, France, cecile.noel@cnrs-orleans.fr et jc.gourry@brgm.fr

[2] : LPC2E, CNRS (équipe atmosphère), 3 avenue de la Recherche Scientifique, 45071 Orléans Cedex 2, France, cecile.noel@cnrs-orleans.fr et christophe.guimbaud@cnrs-orleans.fr

[3] : BRGM (D3E/SVP), 3 avenue Claude Guillemin, BP 36009, 45060 Orléans Cedex 2, France, i.ignatiadis@brgm.fr

[4] : BRGM (D3E/3SP), 3 avenue Claude Guillemin, BP 36009, 45060 Orléans Cedex 2, France, s.colombano@brgm.fr

[5] : BRGM (D3E/BGE), 3 avenue Claude Guillemin, BP 36009, 45060 Orléans Cedex 2, France, , f.battaglia@brgm.fr

[6] : Serpol, 2 chemin du Génie, BP 80, 69633 Vénissieux Cedex, France, alain.dumestre@serpol.fr

[7] : Total Petrochemicals France, Pôle d'Etudes et de Recherche de Lacq, BP 47, 64170 Lacq, France, sebastien.dehez@total.com

Résumé

La biodégradation est une méthode de dépollution *in situ* utilisée pour dégrader des hydrocarbures. C'est une décontamination par voie biologique efficace, mais l'on ne sait pas encore la monitorer correctement sans avoir recours à des forages couteux. Cependant, la biodégradation est source de CO_2 possédant une signature isotopique ($\delta^{13}C(CO_2)$) particulière. De plus, l'activité bactérienne modifie les propriétés électriques du sol et elle peut être détectée par des méthodes géo-électriques. C'est pourquoi on étudie ici la mise au point d'une méthodologie de surveillance qui combine des mesures géophysiques de surface (résistivité électrique et chargeabilité) et des analyses de CO_2 (concentration et signature isotopique). Elle a été testée sur une station-service au sud de Paris, polluée par des BTEX (Benzène, Toluène, Ethylbenzène, Xylènes) et en cours de biodépollution. Les premiers résultats ont identifié une zone chargeable et conductrice à 2.5 m de profondeur, au niveau du panache de BTEX défini par les analyses de puits. De plus, cette zone émet du CO_2 avec un $\delta^{13}C(CO_2)$ proche de celui des BTEX et caractéristique d'une biodégradation.

Introduction

La pollution des sols par des hydrocarbures représente un problème environnemental majeur puisqu'elle impacte les écosystèmes et la qualité des nappes phréatiques. Des méthodes de traitement *in situ*, telle que la biodégradation, sont souvent utilisées pour combattre la pollution. C'est une décontamination par voie biologique qui consiste à stimuler les bactéries présentes naturellement dans le sol afin qu'elles puissent détruire en un minimum de temps les hydrocarbures qu'elles utilisent comme source de carbone au cours de leur respiration. Cette méthode est efficace, mais l'on ne sait pas encore dire quand le site est réhabilité sans faire des prélèvements dans le sol via des forages couteux et peu nombreux. Cependant, il serait possible de suivre indirectement la dépollution à travers des indicateurs de la biodégradation. Nous en avons choisi deux.

La biodégradation peut conduire à la minéralisation totale du carbone, c'est-à-dire à la transformation des composés organiques en eau et en CO_2. De plus, lors des processus de transformations biologiques naturels, les deux isotopes stables du carbone (^{12}C et ^{13}C) participent aux réactions, mais les liaisons entre les atomes légers seront plus rapidement dissociées [1]. Les molécules qui comprennent des isotopes ^{12}C vont donc réagir préférentiellement et le CO_2 produit est appauvrit en ^{13}C.

De plus, l'activité bactérienne modifie les propriétés physicochimiques et électriques du milieu et elle peut être détectée par des méthodes géo-électriques. En effet, des expériences en laboratoire et sur le terrain ont montré que les sols pollués par des hydrocarbures matures étaient caractérisés par une plus forte conductivité électrique alors que les hydrocarbures sont électriquement résistifs [2-7].

C'est pourquoi le projet de recherche ANR BIOPHY (ECOTECH 2010) a pour but de mettre au point une surveillance qui combine des mesures géophysiques de surface (résistivité électrique et chargeabilité) et des

analyses de CO_2 (concentration et signature isotopique). La faisabilité de la méthode a été démontrée en laboratoire, sur des colonnes de sable. Elle a ensuite été testée sur une station-service au sud de Paris.

Matériel et méthodes

Le site étudié est une station-service au sud de Paris où de l'essence sans plomb a fui d'une cuve de stockage en 1997. La station est toujours en activité mais l'ancien parc à cuves (source de la pollution) a été démantelé en 1997 (Figure 1).

Plusieurs puits ont été forés pour caractériser le site. Les analyses ont montré que :

- Le sol est principalement composé de limons et d'argiles et il a une faible perméabilité (entre 10^{-6} et 10^{-7} m/s) ;
- La direction du flux est Nord-Ouest ;
- Le sommet de la nappe phréatique se situe entre 2.5 et 4.5 m de profondeur ;
- La vitesse de la nappe est d'environ 17 m/an ;
- Le site est contaminé par des hydrocarbures, on a montré notamment la présence de BTEX (Benzène, Toluène, Ethylbenzène, Xylènes) dans la zone de l'ancien parc à cuves (entre 2 et 5 m de profondeur, Figure 1) ;
- Il y a des indices d'une atténuation naturelle qui atteste d'une activité bactérienne, telle que l'absence d'oxygène dissous au niveau du panache de BTEX.

Une atténuation naturelle est déjà en cours sur le site mais elle est limitée par le manque d'oxygène (accepteur d'électron nécessaire au métabolisme aérobie). C'est pourquoi un biotraitement par apport d'oxygène a été décidé pour ce site.

Une barrière réactive de 4 m de profondeur a été creusée perpendiculairement à la progression de la pollution pour réduire le panache en aval (Figure 1). Elle est équipée de deux puits de pompage et de trois puits de réinjection. De l'H_2O_2 diluée est ajoutée à l'eau pompée dans la barrière, puis elle est réinjectée sous le niveau de la nappe afin d'y apporter de l'oxygène et ainsi stimuler l'activité bactérienne.

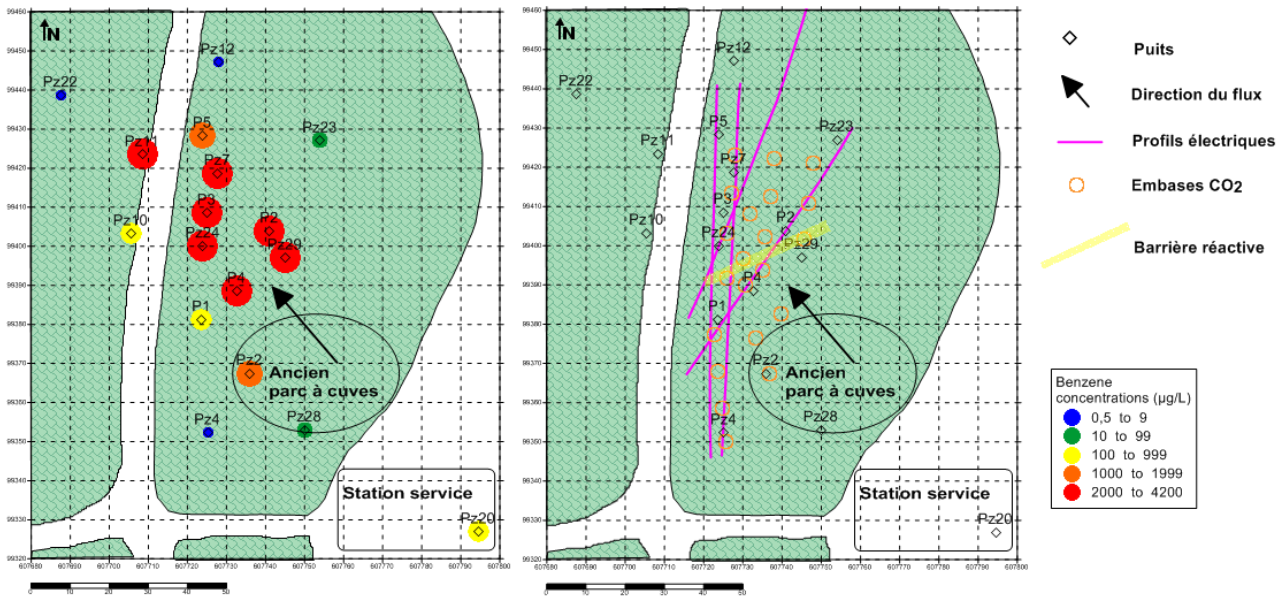

Figure 1 : Carte des concentrations en benzène dans les puits (à gauche) et carte représentant l'emplacement des puits, de la barrière réactive, des embases pour l'analyse du CO_2 et des profils électriques (à droite).

Avant le début de la stimulation de la biodégradation, une campagne de mesures géophysiques a été menée sur quatre profils de 95 m de long (Figure 1). Des mesures de résistivité électrique (ER) et de polarisation induite (IP) sont réalisées en injectant dans le sol un courant électrique (I) entre deux électrodes émettrices et en mesurant le potentiel induit (V) entre deux électrodes de réception. En comparant le signal envoyé et le signal reçu, nous pouvons obtenir la réponse électrique du sol.

Pour les mesures ER, nous obtenons la résistivité (la capacité du sol à conduire le courant électrique) en multipliant la résistance (I/V) par un facteur géométrique qui dépend du dispositif de mesure. Pour les mesures IP, nous mesurons le temps que met le potentiel V à revenir à zéro lorsque nous coupons l'injection de courant I. Cela permet de calculer la chargeabilité (aire sous la courbe de décroissance du potentiel) qui

représente la capacité du milieu à stocker des charges. Des mesures vont être faites régulièrement pour surveiller la progression de la biodépollution.

La concentration de CO_2 et le rapport isotopique $\delta^{13}C(CO_2)$ sont mesurés par spectroscopie laser infrarouge. Le spectromètre utilisé, le SPIRIT (SPectromètre Infra-Rouge In Situ Troposphérique), est un prototype développé par le LPC2E (CNRS, Orléans, [8]). Il est directement relié à une chambre d'accumulation des gaz posée sur une embase fixée au sol. Les émissions de CO_2 provenant de la subsurface y sont piégées et le flux de gaz ainsi que le rapport isotopique du carbone sont mesurés en quelques minutes. 21 embases ont été disposées sur le site (Figure 1).

Résultats et discussion

Les données ER et IP de la campagne préliminaire ont permis de mettre en évidence une couche chargeable et conductrice à 2.5 m de profondeur. Cette zone correspond au sommet de la nappe, là où la biodégradation produit des métabolites chargeables et conducteurs. Après interpolation des résultats en 3D et extraction de l'horizon situé à 2.5 m de profondeur, les données ont été représentées sur une carte (Figure 2). On peut voir que la zone de forte chargeabilité correspondant à la zone polluée définie par les analyses chimiques de forages, en aval de l'ancien parc à cuves.

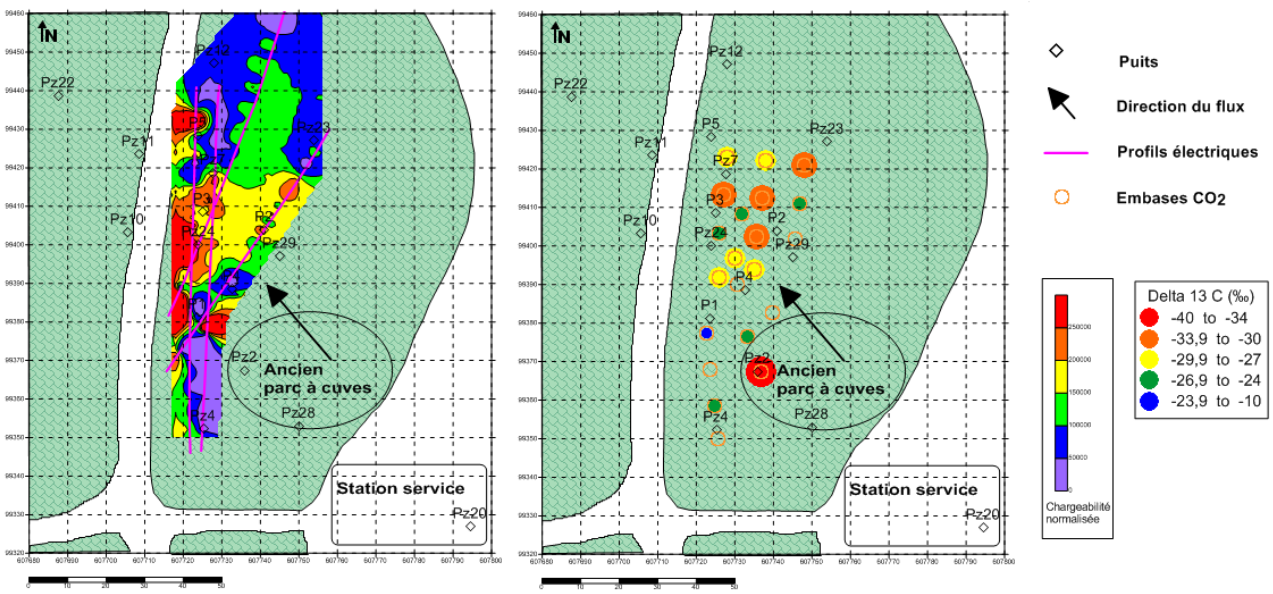

Figure 2 : Carte de la chargeabilité normalisée à 2.5 m de profondeur (à gauche) et carte des $\delta^{13}C(CO_2)$ à droite .

Les mesures d'émissions de gaz ont montré de forts flux de CO_2 émis au-dessus de la zone polluée, accompagné d'un faible rapport $\delta^{13}C(CO_2)$ (Figure 2) caractéristique d'une biodégradation des BTEX.

Conclusions et perspectives

Une barrière réactive a été installée sur le site expérimental afin d'apporter de l'oxygène à la nappe phréatique et ainsi stimuler la biodégradation des hydrocarbures. La méthode de suivi non destructrice a été mise en place et des mesures vont être réalisées régulièrement pour suivre l'évolution de la dépollution.

Les résultats de la campagne préliminaire ont identifiés une zone chargeable et conductrice à 2.5 m de profondeur, au niveau du panache de BTEX défini par les analyses de puits. De plus, cette zone émet du CO_2 avec $\delta^{13}C(CO_2)$ proche de celui des hydrocarbures et caractéristique d'une biodégradation.

Nos résultats montrent l'intérêt de combiner des méthodes géophysiques de surface avec des analyses de gaz pour surveiller des zones de biodégradation et vont nous permettre de fournir une technique de monitoring de la dépollution *in situ* appropriée .

Références

[1] Meckenstock, R.-U., Morasch, B., Grieber, C., Richnov, H.-H. (2004). Stable isotope fractionation analysis as a tool to monitor biodegradation in contaminated acquifers. *Journal of Contaminant Hydrology*, 75, 215-255.
[2] Sauck, W.-A. (2000). A model for the resistivity structure of LNAPL plumes and their environs in sandy sediments. *Journal of Applied Geophysics*, 44, 151-165.
[3] Atekwana, E.-A., Atekwana, E.-A., Rowe, R.-S., Werkema, D.-D., Franklyn, L. (2004). The relationship of total dissolved solids measurements to bulk electrical conductivity in an aquifer contaminated with hydrocarbon. *Journal of Applied Geophysics*, 56, 281-294.
[4] Abdel Aal, G.-Z., Slater, L.-D., Atekwana, E.-A (2006). Induced-polarization measurements on unconsolidated sediments from a site of active hydrocarbon biodegradation. *Geophysics***,** 71(2), H13-H24.
[5] Davis, C.-A., Atekwana, E.-A., Atekwana, E.-A., Slater, D.-L., Rossbach, S., Mormile, M.-R. (2006). Microbial growth and biofilm formation in geologic media is detected with complex conductivity measurements. *Geophysical Researh Letters*, 33(L18403), 1-5.
[6] Che-Alota, V., Atekwana, E.-A., Atekwana, E.-A., Sauck, W.-A., Werkema, D.-D. (2009). Case History Temporal geophysical signatures from contaminant-mass remediation. *Geophysics*, 74(4), B113-B123.
[7] Atekwana, E.-A., Atekwana, E.-A. (2010). Geophysical Signatures of Microbial Activity at Hydrocarbon Contaminated Sites: A Review. *Surveys in Geophysics*, 31, 247-283.
[8] Guimbaud, C., Catoire, V., Gogo, S., Robert, C., Laggoun-Défarge, F., Chartier, M., Grossel, A., Albéric, P., Pomathiod, L., Nicoullaud, B., Richard, G. (2011). A portable infrared laser spectrometer for field measurements of trace gases. *Meas Sci Technol*, 22, 1-17.

Remerciements
Nous tenons à remercier l'ANR (Agence Nationale de la Recherche) pour le financement du projet de recherche ECOTEH 2010 BIOPHY.

Nous remercions également tous les partenaires du projet BIOPHY pour leur implication dans le travail présenté ici : Brgm (Orléans, France), LPC2E (Cnrs, Orléans, France), Serpol (Vénissieux, France), Total Petrochemicals France, Pôle d'Etudes et de Recherche de Lacq (Lacq, France).