



Faisabilité de la phytoremédiation de sols de cokerie contaminés par des HAP

Sébastien Denys, Claire Rollin

► **To cite this version:**

Sébastien Denys, Claire Rollin. Faisabilité de la phytoremédiation de sols de cokerie contaminés par des HAP. 10. Congrès de la Société Française de Génie des Procédés "Le génie des procédés vers de nouveaux espaces" (SFGP 2005), Sep 2005, Toulouse, France. SFGP. Paris, pp.NC, 2005. <ineris-00976167>

HAL Id: ineris-00976167

<https://hal-ineris.ccsd.cnrs.fr/ineris-00976167>

Submitted on 9 Apr 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.

Faisabilité de la Phytoremédiation de Sols de Cokerie Contaminés par des HAP

DENYS Sébastien et ROLLIN Claire

INERIS

Parc Technologique ALATA, BP 2, 60 550 VERNEUIL en HALATTE

Résumé

La phytoremédiation des contaminants présents dans les sols est une technologie émergente mettant en jeu les différentes interactions entre la matrice contaminée et l'organisme végétal. Pour les contaminants organiques, tels les HAP, la phytodégradation semble être l'approche la plus prometteuse. Cependant, bien que prouvée en laboratoire, peu d'études prouvant l'efficacité de cette approche sur le terrain ont été menées.

Dans le cadre de cette étude, la phytoremédiation des HAP présents dans un sol de cokerie a été mise en œuvre au cours d'une expérimentation de plein champ sur deux années. Au préalable, le sol a été homogénéisé puis disposé en six parcelles sans connexion hydrologique. Sur quatre de ces parcelles, différentes espèces végétales couramment rencontrées ont été semées : gazon (tonte courte, parcelle 1 ; tonte longue, parcelle 2) ; plantes ornementales (parcelle 3), arbustes (parcelle 4). La cinquième parcelle (P5) a été laissée en friche et la sixième (P6) désherbée manuellement. Au cours des trois années, un échantillonnage représentatif de deux horizons (0-50 cm et 50-100 cm) de sol a été mené sur chaque parcelle pour caractériser l'évolution des teneurs des 16 HAP prioritaires de l'US-EPA dans les sols. L'impact possible de la phytoremédiation sur les écosystèmes a été évalué en pratiquant sur les sols, ainsi que sur les lixiviats, différents tests de toxicité.

Sur la durée du traitement, la teneur moyenne en HAP dans les sols décroît légèrement au cours du temps pour trois parcelles de l'essai. Cette diminution varie entre 3% pour P5 et 24% pour P1 de la teneur totale en HAP initialement présents dans le sol. La décroissance moyenne était plus élevée dans l'horizon profond (14%) que dans l'horizon de surface (12%). Pour les trois autres parcelles, une légère augmentation de la teneur moyenne en HAP a été mise en évidence. Celle-ci variait entre 5% pour P3 et 13% pour P6. Statistiquement, en tenant compte de l'hétérogénéité spatiale de la contamination, seule la diminution de la teneur totale en HAP observée sur la parcelle P1 était significative. Pour l'ensemble des parcelles, une diminution significative des HAP à 3 cycles a été observée, alors que les teneurs en HAP à 4 cycles et plus restaient relativement constantes au cours du temps. Durant les deux premières années, aucune toxicité n'a été détectée sur les matrices solides ou sur les lixiviats. Seule une légère toxicité des lixiviats a été observée la dernière année pour un seul des tests réalisés.

Cette étude montre que la phytodégradation des HAP, bien que prometteuse à l'échelle de laboratoire, n'est pas facilement transposable en plein champ. Une des raisons peut être liée à l'effet pépite, induisant une incertitude supplémentaire concernant l'homogénéité de l'échantillonnage au cours du temps. En outre, il est possible qu'une légère toxicité apparaisse à moyen terme tel que montré par nos résultats sur les lixiviats.

Mots-clés : HAP, phytoremédiation, essais de plein-champ

1. Introduction

Les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) sont des polluants organiques persistants, aux origines multiples et qui ont un caractère ubiquiste dans l'environnement. Ces composés sont issus notamment des activités humaines et en particulier des processus industriels de pyrolyse et de combustion. Les HAP présentent une faible solubilité et, en conséquence, tendent à s'accumuler dans les sols où leur dégradation se fait essentiellement par voie microbienne. En vue d'une réhabilitation des sites

contaminés par ces molécules, il est nécessaire de mettre en place des moyens de dépollution adaptés. La phytoremédiation est une technique émergente de dépollution des sols contaminés par des éléments métalliques ou organiques. Par rapport à d'autres techniques, elle a l'avantage de ne pas affecter la qualité intrinsèque des sols (notamment la qualité agronomique) et son application représente un faible coût. En ce sens, elle pourrait être une voie à explorer pour la dépollution de sols pollués par des substances organiques. L'évaluation d'une telle technologie passe par la compréhension des mécanismes impliqués dans les processus de dépollution par les plantes mais aussi par une étude de faisabilité. Alors que l'élucidation des mécanismes passe par la mise en place d'expérimentations en conditions contrôlées de laboratoire, l'étude de faisabilité de la phytoremédiation doit mettre en œuvre des essais de plein champ réalisés en conditions naturelles.

Cette étude consiste en une telle étude de faisabilité, réalisée sur un dispositif de plein champ au cours de trois années d'expérimentation et sur des sols en provenance d'une ancienne cokerie. Les sols ont subi un premier traitement de dépollution par voie biologique (ensemencement de la terre contaminée par une culture liquide de microflore du sol et par une culture de deux champignons lignolytiques). Suite à ce premier traitement, qui a contribué à diminuer de façon significative les teneurs en HAP dans les sols, une phytoremédiation des sols pollués par les HAP résiduels est envisagée. L'évaluation de la faisabilité de ce traitement implique le suivi de l'évolution des teneurs en HAP dans les sols du site. De plus, afin de s'assurer de l'innocuité d'un tel traitement vis à vis de l'environnement, un suivi de l'écotoxicité des sols et des lixiviats est également effectué.

2. Etat de l'art relatif à la phytoremédiation des sols contaminés par les HAP

Alors que la phytoremédiation appliquée aux éléments en trace métalliques utilise le transfert de l'élément vers la plante (phytoaccumulation) (Raskin et al., 1997, Fritz et Wenzel, 2002) elle consistera plutôt, pour les composés trace organique, en une dégradation des molécules au voisinage des racines (phytodégradation) du fait de l'accumulation relativement faible des HAP par les plantes (*e.g.* Fismes et al., 2002 ; Samsøe-Petersen et al., 2002, Henner et al., 1999).

2.1 Mise en évidence et quantification de la phytodégradation des HAP

La dégradation des HAP présents dans les sols est accélérée lorsqu'un couvert végétal est présent sur le sol. Ainsi, lors d'une étude *in situ*, l'observation de profils racinaires de mûrier, combinée avec l'étude de la distribution des teneurs en HAP, a montré que les teneurs en HAP dans la zone supérieure du sol (0-60 cm de profondeur, zone de développement racinaire) sont en moyenne de 70 % inférieures aux teneurs mesurées dans la zone sous-jacente, qui correspondait à une zone non atteinte par le développement racinaire (Olson et Fletcher, 1999).

De même, l'implantation d'espèces prairiales (Graminées) sur des colonnes de sol contenant du benzo(*a*)anthracène, du chrysène, du benzo(*a*)pyrène et du dibenz(*a,h*)anthracène a conduit à une diminution significative des teneurs de ces quatre HAP, par comparaison avec des colonnes témoins ne contenant pas de végétaux (Aprill et Sims, 1990). Ces diminutions de teneurs étaient fonction de la solubilité dans l'eau du composé considéré et étaient les plus fortes pour le benz(*a*)anthracène et les plus faibles pour le dibenz(*a,h*)anthracène, le premier composé étant le plus soluble à l'eau que le dernier. Cette dernière observation montre que l'efficacité de la dégradation du HAP sera fonction de ses propriétés physico-chimiques, et notamment de la disponibilité du composé au voisinage de la racine.

Une dégradation des HAP peut être observée de manière similaire lorsqu'un apport d'exsudats racinaires est effectué sur un sol non végétalisé. Ainsi, l'incorporation d'exsudats de maïs, obtenus à partir de cultures hydroponiques, a pour effet d'augmenter la dégradation du pyrène marqué au ¹⁴C dans des sols non végétalisés (Yoshitomi et Shann, 2001). Cette dernière observation montre que le rôle de la plante sur la dégradation des HAP est fortement corrélé à l'exsudation racinaire, attribuable à l'effet rhizosphérique. Ce dernier se traduit par une augmentation de l'activité microbienne du sol, au voisinage des racines. A ce niveau, l'exsudation de composés de natures diverses (carbohydrates, acides aminés,...), sources de nutriments carbonés et azotés, stimulent la croissance de microorganismes, dont certains dégradent les HAP (Alkorta et Garbisu, 2001 ; Shann, 1995 ; Sung et al., 2001 ; Yoshitomi et Shann, 2001).

2.2. Choix de l'espèce végétale utilisée pour la phytoremédiation

Une optimisation de la phytoremédiation implique un choix adéquat de l'espèce végétale utilisée. En effet, la composition chimique des exsudats racinaires, ainsi que les taux d'exsudation étant considérablement différents entre espèces, l'intensité de phytodégradation des HAP, dont dépend l'efficacité du traitement, sera fonction de l'espèce. Par exemple, des extractions de la fraction biodisponible de deux HAP (phénanthrène et pyrène) sur des sols rhizosphériques obtenus à partir de cultures de fétuque et de blé ont montré des teneurs différentes en HAP extraits, laissant suggérer que la phytodégradation serait la plus efficace dans la rhizosphère de fétuque que dans celle du blé, puisque la fraction du polluant disponible pour l'activité biotique du sol et pour un même niveau de contamination était la plus importante dans le cas de la fétuque (Liste et Alexander, 2000).

3. Matériels et Méthodes

3.1. Configuration du dispositif expérimental

Le dispositif expérimental est constitué de six parcelles non connectées hydrologiquement entre elles (Figure 1). Chaque parcelle est isolée du milieu naturel par une géomembrane. Au centre du site, une cuve permet de récupérer les eaux de drainage en provenance de chaque bassin.

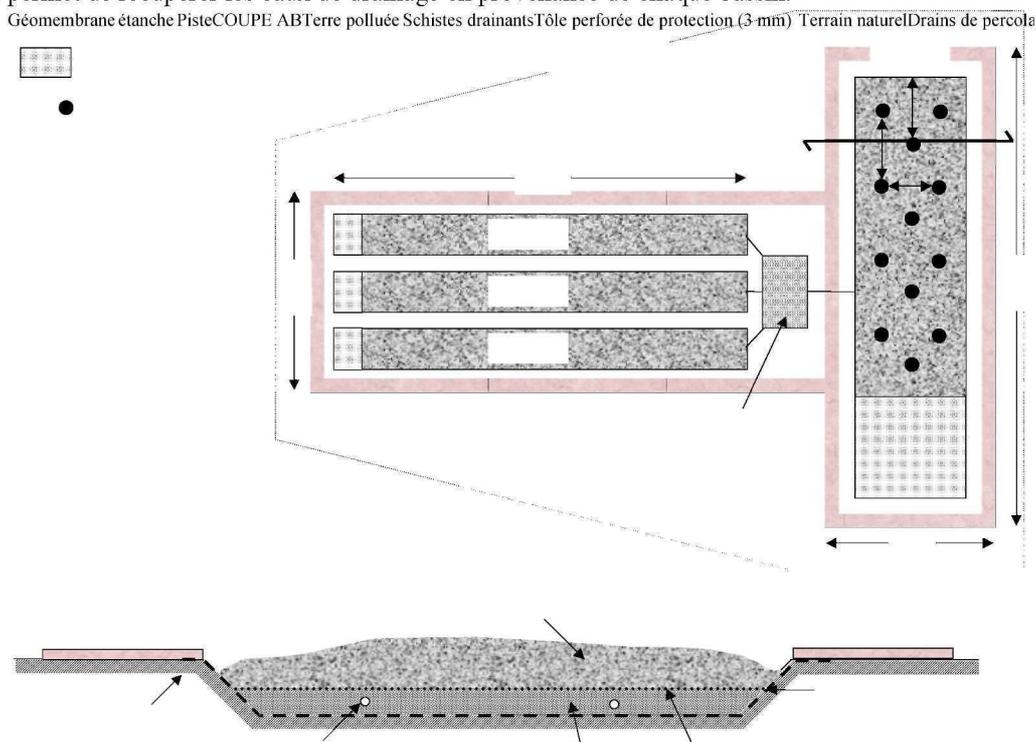


Figure 1. Configuration du site expérimental

A chaque parcelle correspond une modalité de végétalisation : mélange de Graminées (parcelle 1, tondeuse entre 3 et 5 cm tous les mois) ; pelouse fauchée (parcelle 2, fauchée trois fois par an) ; sol nu (parcelle 3, désherbé sans produits phytosanitaires) ; sol en friche (parcelle 4) ; mélange de plantes ornementales (rosier, glaieul, dahlia, œillet, tulipe, pivoine, crocus et narcisse parcelle 5) ; arbustes (chêne pédonculé, faux-acacia, aulne glutineux, saule blanc et érable sycomore, parcelle 6).

3.2. Echantillonnage des parcelles et préparation des terres

Pour chaque parcelle, deux horizons de sol (0-50 cm et 50 – 100 cm) ont été échantillonnés. Lors de la première année d'expérimentation, par horizon, trois échantillons composites et trois échantillons aléatoires ont été prélevés. En plus de ces échantillons, un échantillon moyen est réalisé au laboratoire par horizon et par parcelle, conduisant à la réalisation de 24 échantillons supplémentaires. Pour les deux années suivantes, seuls des échantillons moyens sont réalisés. L'ensemble des prélèvements est effectué à

l'aide d'une tarière à moteur. Les terres ainsi prélevées sont tamisées à 5 mm et stockées en chambre froide (+ 4°C) avant analyse.

3.3. Tests de lixiviation

Les lixiviats sont obtenus à partir des échantillons de sol sec et selon la norme NF 31-210 (AFNOR, 1998b). Ils sont réalisés à partir des échantillons moyens des six parcelles en profondeur et en surface et prélevés une année après la mise en place du traitement de phytoremédiation (2002) et en fin de seconde année du traitement (2003). Un échantillon de terre sèche est agité pendant 24 h avec de l'eau distillée (100 g de terre / 1 L d'eau distillée). La suspension est alors centrifugée pendant 10-15 min. à 3000 tours.min⁻¹ puis le surnageant est filtré à 0,45 µm. Les lixiviats sont stockés en chambre froide (+ 4°C) avant analyses.

3.4. Test de toxicité

Deux types d'écotoxicité ont été caractérisés : la toxicité aiguë (évaluation de la mortalité des individus exposés au produit testé) et la toxicité chronique (évaluation de l'inhibition de la reproduction des individus exposés au produit testé). Les tests ont été réalisés sur des échantillons moyens de surface et de profondeur pour chacune des six parcelles.

3.4.1. Tests sur les matrices solides

Les tests ont été réalisés à l'aide d'un test normalisé utilisant des vers de terres (*Eisenia fetida*) (AFNOR, 1994). Deux types de toxicités ont été caractérisés par ce test : toxicité aiguë en évaluant la mortalité ; toxicité chronique, en évaluant l'inhibition de la reproduction.

3.4.2 Tests sur les lixiviats

Les tests sont effectués sur les lixiviats obtenus selon le protocole décrit plus haut. Deux tests normalisés ont été effectués :

- Inhibition de la croissance de daphnies (*Ceriodaphnia dubia*), norme NF T 90-376 (AFNOR, 2000) ;
- Inhibition de la croissance d'algues (*Pseudokirchneriella subcapitata*) ; norme NF T 90-375 (AFNOR, 1998a).

4.4. Dosage des teneurs en HAP

Les HAP dosés dans les sols ou les lixiviats au cours de l'expérimentation sont les 16 HAP prioritaires de l'US-EPA. Dans les sols, les HAP sont extraits par ASE (Accelerated Solvent Extractor – Dionex) au CH₂Cl₂ à 120°C et à une pression de 120 Bars pendant 5 minutes. Les extraits CH₂Cl₂ sont ensuite dosés par HPLC (Dionex). Dans les lixiviats, Les HAP dans les lixiviats sont extraits au CH₂Cl₂ (rapport volumique lixiviat/solvant : 5/1). Les extraits sont évaporés puis les résidus dissous dans 2 mL d'acétonitrile avant dosage par HPLC (Dionex).

5. Résultats et Discussion

5.1. Teneurs initiales des sols en HAP

L'homogénéité des teneurs en HAP au sein d'une parcelle est démontrée par l'équivalence des teneurs entre les différents échantillons prélevés (composites, aléatoires et moyens). Cette homogénéité est également retrouvée entre les parcelles : les teneurs moyennes totales varient entre 3128 mg kg⁻¹ pour la parcelle 3 et 3893 mg kg⁻¹ pour la parcelle 6. La teneur moyenne en HAP totaux pour l'ensemble des six parcelles est de 3473 mg.kg⁻¹. Cette homogénéité dans les teneurs totales se retrouve également en terme de distribution des HAP en fonction du nombre de cycles aussi bien entre les différents échantillons prélevés au sein d'une même parcelle qu'entre les parcelles. Par exemple, pour la parcelle 1 et les différents types d'échantillon, les teneurs sont comprises entre 804 mg kg⁻¹ et 1048 mg kg⁻¹ pour les 2-3 cycles, entre 1314 et 1422 mg kg⁻¹ pour les 4 cycles, entre 587 et 787 mg kg⁻¹ pour les 5 cycles et entre 210 et 284 mg kg⁻¹ pour les 6 cycles.

5.2 Evolution de la teneur en HAP dans les sols lors du traitement de phytoremédiation

L'évolution de la teneur en HAP dans les sols en cours de traitement est évaluée par le biais des échantillons moyens.

5.2.1. Prise en compte de l'hétérogénéité spatiale et calcul de l'évolution des teneurs en HAP au cours du temps.

Bien qu'une certaine homogénéité dans les teneurs en HAP ait été mise en évidence, une caractérisation pertinente de l'évolution de la teneur en HAP dans les sols au cours du temps impose de prendre en compte l'hétérogénéité spatiale de la distribution. Celle-ci peut être évaluée statistiquement pour chaque parcelle du dispositif en calculant le coefficient de variation (CV) associé aux teneurs en HAP des différents échantillons (Tableau 1).

Tableau 1 : Coefficients de variation des teneurs en HAP pour les différents types d'échantillons prélevés en 2001.

Parcelle	Coefficient de Variation (%)			
	Composite	Aléatoire	Moyens	Global*
1	3	8	6	6
2	5	16	11	10
3	11	5	14	10
4	14	15	13	14
5	15	19	19	18
6	22	10	17	16

*Le coefficient de variation global est la moyenne des coefficients de variation composite, aléatoire et moyens.

Les coefficients de variation varient entre 6% (parcelle 1) et 18% (parcelle 5) de la teneur en HAP. Entre la première et la dernière année de l'expérimentation, l'évolution (E) des teneurs en HAP dans les sols est calculée selon l'équation

$$E = ([HAP]_{2001} - [HAP]_{2003}) / [HAP]_{2001} * 100 \quad (1)$$

Afin de tenir compte de l'hétérogénéité spatiale de la distribution en HAP dans les sols, l'évolution est considérée comme significative si, pour la parcelle considérée, $|E| > CV$. Dans ce cas, une évolution positive traduira une augmentation de la teneur en HAP et inversement une évolution négative traduira une diminution de la teneur en HAP au cours du temps. Seules seront présentées et discutées ci-dessous les résultats relatifs aux diminutions des teneurs en HAP au cours du temps.

5.2.2 Diminution des teneurs en HAP totaux

Pour l'horizon de surface (0-50 cm) les diminutions significatives des teneurs en HAP totaux sont rencontrées uniquement dans le cas des parcelles 1, 2, et 6 (pelouse courte, sol nu, arbustes) et sont respectivement de 25, 2 et 7 % des teneurs en HAP initiales (Figure 2).

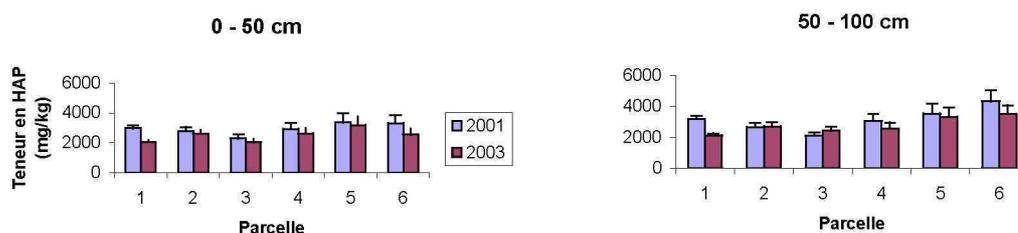


Figure 2 : Evolution des teneurs en HAP totaux dans les horizons de surface (0-50 cm) et de profondeur (50-100 cm) au cours du traitement de phytoremédiation

Pour l'horizon de profondeur, les diminutions significatives des teneurs en HAP totaux sont rencontrées dans le cas de parcelles 1, 4 et 6 (pelouse courte, végétation naturelle, arbustes) et sont respectivement de 26, 2 et 3 % des teneurs en HAP initiales.

En général, les diminutions des teneurs totales observées dans le cas présent, notamment pour les parcelles 2, 4 et 6 sont faibles par rapport aux données publiées dans la littérature. Ainsi, par exemple, une diminution des teneurs en HAP variant entre 62 et 67 % des teneurs totales ont été mesurées dans le cadre d'expérimentation en pots (Jöner et al, 2004).

5.2.3. Evolution des teneurs en fonction du nombre de cycles des HAP

L'évolution des teneurs est également examinée en fonction du nombre de cycles des HAP, en distinguant entre les différentes catégories : 2 cycles (naphtalène), 3 cycles, 4 cycles et 5-6 cycles (Tableau 2).

Tableau 2 : Diminution des teneurs en HAP entre 2001 et 2003 en fonction du nombre de cycles des molécules.

	Parcelle	Diminution des teneurs entre 2001 et 2003 (%)	
		Surface	Profondeur
naphtalène	1	4	13
	6	2	-
3 cycles	1	55	61
	2	36	29
	3	34	28
	4	36	39
	5	26	25
	6	42	41
4 cycles	1	19	21
	3	1	-
5-6 cycles	1	12	10

Pour la parcelle 1, une diminution de la teneur en HAP pour l'ensemble des classes décrites est observée. L'espèce végétale utilisée sur cette parcelle (gazon) semble donc être la plus efficace pour le traitement de phytoremédiation, tel qu'il est réalisé ici. Pour les HAP à 3 cycles, une diminution des teneurs dans les sols est observée sur l'ensemble des six parcelles. Pour ces composés, la diminution maximale des teneurs est obtenue pour la parcelle n°1, avec une diminution de 55 % en surface et 61 % en profondeur. Les HAP à 3 cycles semblent donc être dégradés de façon préférentielle dans le cadre de cette étude. D'autres auteurs constatent également cette dégradation préférentielle des HAP les plus légers, et notamment les 3 cycles dans le cadre de traitements biologiques (Haeseler et al., 1999 ; Jöner et al., 2001). La faible diminution des teneurs pour les HAP les plus lourds (4 et 5-6 cycles) peut être liée à la nature plus récalcitrante de ces molécules, qui en font des composés faiblement biodisponibles. Des résultats similaires, notamment sur les HAP à 5 et 6 cycles ont déjà été observées dans des études antérieures sur la bioremédiation ou la phytoremédiation biologiques (Haeseler et al., 1999 ; Jöner et al., 2001).

Il est probable que la faible diminution des teneurs en naphtalène ne soit pas représentative de la réalité, du fait de l'aspect fortement volatil de cette molécule.

5.3. Evolution des teneurs en HAP lixiviables

L'évolution des teneurs en HAP dans les lixiviats est donnée au cours du temps, en prenant comme valeur de référence les teneurs dans les lixiviats du sol avant toute remédiation.

Les teneurs en HAP dans les lixiviats ont diminué de 97 % à l'issue des deux traitements bioremédiation/phytoremédiation.

La diminution maximale est obtenue pour les HAP à 3 cycles, alors que la diminution minimale l'est pour les HAP à 5 et 6 cycles. Ces observations peuvent être mises en relation avec celles effectuées sur l'évolution des teneurs en HAP dans les sols. Ainsi, la diminution plus importante des teneurs en HAP à 3 cycles dans les lixiviats peut être liée à une dégradation plus importante des HAP dans ces terres. Inversement, une faible diminution des teneurs en HAP à 5 et 6 cycles peut être corrélée à une faible dégradation de ces HAP (et donc à une quantité résiduelle de ces HAP plus importante dans les sols), liée notamment à leur nature plus récalcitrante.

La diminution des teneurs en HAP lixiviables au cours du temps peut être décrite comme un processus à deux temps :

- une diminution importante des teneurs en HAP lixiviables au cours du traitement de bioremédiation, corrélée à la diminution des teneurs en HAP biodisponibles lors de ce premier traitement ;

- une diminution plus lente des teneurs en HAP lixiviables au cours du traitement de phytoremédiation. La faible capacité de lixiviation des HAP dans les terres en fin de traitement de phytoremédiation permet de conclure quant à un faible risque de transfert de ces HAP vers les nappes.

5.4. Evolution de la toxicité des terres et des lixiviats au cours du temps

5.4.1. Ecotoxicité aiguë des sols

La toxicité des sols (phase solide uniquement) a été étudiée par un test de toxicité aiguë effectué sur *Eisenia fetida*. Ce test a été effectué sur trois terres contaminées : une terre en provenance du sol avant tout traitement de remédiation, et sur deux échantillons moyens du dispositif expérimental, le premier de surface (0-50 cm) et le second de profondeur (50-150 cm), prélevés avant l'étape de phytoremédiation.

Les tests effectués sur la première terre ont montré une mortalité de 100 % des vers mis en expérimentation à la concentration de 50 %. A la concentration de 10 %, aucun effet léthal n'est observé. Pour les deux échantillons représentatifs de la surface et de la profondeur, et prélevés avant le traitement de phytoremédiation, aucun effet léthal n'est observé. Ainsi, le traitement de bioremédiation suffit à supprimer la toxicité aiguë des sols. Ceci pourrait notamment s'expliquer par la diminution significative des teneurs en HAP dans les terres consecutive au traitement de bioremédiation.

5.4.3. Toxicité chronique des lixiviats

Pour les deux tests réalisés, aucune toxicité significative n'a été mise en évidence après l'étape de bioremédiation et en fin de première année de phytoremédiation. A l'issue de cette première année, le traitement n'a donc pas d'impact significatif sur une éventuelle augmentation de la toxicité de la solution du sol. Sur les lixiviats obtenus en 2003, une toxicité légère est observée pour le test d'inhibition de la croissance des algues. Cette toxicité est significative pour l'échantillon moyen des 6 parcelles représentatif de l'horizon de surface. Pour cet échantillon, la concentration en lixiviat entraînant 50% d'inhibition de la croissance en 72 heures est de 15 %. Ce dernier résultat montre que la toxicité des lixiviats vis à vis des écosystèmes tend à augmenter au cours du temps. Il convient cependant de rester prudent face à ce résultat qui ne concerne qu'un seul des deux tests employés ici. En général, la faible toxicité des lixiviats observée est en accord avec d'autres données de la littérature pour lesquelles aucune toxicité n'a été mise en évidence pour des lixiviats de sols contaminés en HAP et sur lesquels un traitement de bioremédiation ou de phytoremédiation avait été mené (Haeseler, 1999 ; Joner, 2003).

6. Conclusions

L'objectif de cette étude était de tester la faisabilité d'un traitement de phytoremédiation de sols pollués par des HAP et consécutif à un premier traitement de bioremédiation. Au vu de la littérature, le mécanisme majeur susceptible de contrôler la phytoremédiation de telles molécules est la phytodégradation par stimulation de l'activité microbienne des sols. L'efficacité de ce traitement a été testée *via* l'étude de l'évolution des teneurs en HAP dans les sols au cours du temps, à l'échelle d'un pilote expérimental constitué de six bassins végétalisés ou non. Différents paramètres ont été caractérisés au cours de l'expérimentation :

- Evolution de la teneur en HAP dans les sols, paramètre indicateur de l'efficacité du traitement en lui-même
- Evolution de la fraction en HAP lixiviables dans les sols au cours du traitement, paramètre indicateur du potentiel de contamination des nappes par lixiviation des HAP en cours de traitement
- Toxicité des sols et des lixiviats, paramètre indicateur de la dangerosité de ces matrices vis à vis des écosystèmes.

L'étude de l'évolution des teneurs en HAP lixiviables montre que le traitement initial de bioremédiation contribue de façon majoritaire à diminuer la quantité de HAP lixiviable. Au cours du traitement de phytoremédiation, il semble que les teneurs en HAP lixiviables soient stabilisées et évoluent peu au cours du temps. En outre, les faibles teneurs en HAP lixiviables au cours du traitement, ainsi que la faible évolution des teneurs en HAP dans les sols au cours du temps confirment une faible disponibilité des HAP dans les sols. Ceci limite la phytodégradation de ces molécules via les microorganismes du sol. Les tests de toxicité ou de génotoxicité montrent l'absence de toxicité des terres ou des lixiviats tout au long du traitement, puisque onze tests sur les douze réalisés ne montrent pas de toxicité.

Entre 2001 et 2003, les teneurs en HAP dans les sols diminuent. Cette diminution est statistiquement significative pour trois des modalités testées dans le cadre de la présente étude et est la plus importante pour la modalité gazon, tonte courte. En ce qui concerne la diminution des teneurs en fonction du nombre de cycles des molécules, l'évolution la plus importante est obtenue pour les HAP à 3 cycles alors que pour les composés les plus récalcitrants, *i.e.* les HAP à 5 et 6 cycles, aucune diminution significative n'est observée, hormis pour la parcelle n°1 (gazon tonte courte).

7. Références

- AFNOR, 1998a. Détermination de la toxicité chronique des eaux par inhibition de la croissance de l'algue d'eau douce *Pseudokirchneriella subcapitata* (*Selenastrum Capricornutum*). Norme NF T 90-375.
- AFNOR, 1998b. Essai de lixiviation. Norme XP X 31-210.
- AFNOR, 2000. Détermination de la toxicité chronique vis-à-vis de *Ceriodaphnia dubia* en 7 jours. Norme NF T 90-376.
- Alkorta, I. and C. Garbisu (2001). "Phytoremediation of organic contaminants in soils." *Bioresource Technology* **79**: 273-276.
- Aprill W. et R.C. Sims (1990) "Evaluation of the use of prairie grasses for stimulating polycyclic aromatic hydrocarbon treatment in soil". *Chemosphere*, **20**, (1-2) pp 253-265.
- Binet P., J.M. Portal et C. Leyval (2001). "Dissipation of 3-6 rings polycyclic aromatic hydrocarbons in the rhizosphere of ryegrass". *Soil Biology and Biochemistry* **32** :2011-2017.
- Fismes, J., C. Perrin-Ganier, et al. (2002). "Soil-to-root transfer and translocation of polycyclic aromatic hydrocarbons by vegetables grown on industrial contaminated soils." *Journal of Environmental Quality* **31**: 1649-1656.
- Fritz, W.J. et Wenzel, W.W. (2002). "Arsenic transformation in the soil-rhizosphere-plant system : fundamentals and potential application to phytoremediation " *Journal of Biotechnology* 259-278.
- Haeseler, F., D. Blanchet, V. Druelle, P. Werner, and J.P. Vandecasteele. 1999. Ecotoxicological assessment of soils of former manufactured gas plant sites: bioremediation potential and pollutant mobility. *Environmental Science and Technology* 33:4379-4384.
- Henner P. M. Schiavon, V. Druelle, E. Lichtfouse (1999) "Phytotoxicity of ancient gaswork soils. Effect of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) on plant germination." *Organic geochemistry* **30** (963-969).
- Jöner, E.J., D. Hirmann, O.H.J. Szolar, D. Todorovic, C. Leyval, and A.P. Loibner. 2004. Priming effects on PAH degradation and ecotoxicity during a phytoremediation experiment. *Environmental Pollution*.
- Jöner E., A. Johansen, A.P. Loibner, M.A. Dela Cruz, O.H.J Szolar, J.L. Portal, et C. Leyval. (2001) "Rhizosphere Effects on Microbial Community Structure and Dissipation and Toxicity of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons (PAHs) in Spiked Soils" *Environmental Science and Technology*, **35**, 2773-2777.
- Liste H. H. et M. Alexander (2000) "Plant promoted pyrene degradation in soil" *Chemosphere* **40** 7-10.
- Olson P.E. et J.S. Fletcher (1999). "Field evaluation of mulberry root structure with regard to phytoremediation". *Bioremediation Journal* **3**(1) : 27-33.
- Raskin I., R.D. Smith et D.E. Salt 1997 "Phytoremediation of metals : using plants to remove pollutants from the environment". *Current Opinion in Biotechnology*, **8** : 221-226.
- Samsoe-Petersen L., E. H. Larsen, et al. (2002). "Uptake of Trace Elements and PAHs by Fruit and Vegetables from contaminated soils." *Environmental Science and Technology* **36**: 3057-3063.
- Shann, J. R. (1995). "The Role of Plants and Plant/Microbial Systems in the Reduction of Exposure". *Environmental Health and Perspectives* **103**: (5): 13-15.
- Vervaeke, P., S. Luyssaert, J. Mertens, E. Meers, F.M.G. Tack, and N. Lust. 2003. Phytoremediation prospects of willow stands on contaminated sediment: a field trial. *Environmental Pollution* 126 : 275-282.
- Yoshitomi, K. J. and J. R. Shann (2001). "Corn (*Zea mays L.*) root exudates and their impact on ¹⁴C-pyrene mineralization." *Soil Biology and Biochemistry*: 1769-1776.

Remerciements

Les auteurs souhaitent remercier les Charbonnages de France et l'Agence de l'Eau Artois-Picardie pour le financement de cette étude.