



**HAL**  
open science

**Du transfert de colloïdes sur système modèle à la prise  
en compte des sols dans les aménagements urbains -  
Parcours scientifique au coeur des enjeux  
environnementaux urbains**

Beatrice Bechet

► **To cite this version:**

Beatrice Bechet. Du transfert de colloïdes sur système modèle à la prise en compte des sols dans les aménagements urbains - Parcours scientifique au coeur des enjeux environnementaux urbains. Sciences de l'environnement. Université Bretagne Loire (COMUE), 2019. tel-04531543

**HAL Id: tel-04531543**

**<https://univ-eiffel.hal.science/tel-04531543v1>**

Submitted on 8 Apr 2024

**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.

Copyright

**UNIVERSITE BRETAGNE LOIRE**

**ECOLE DOCTORALE EGAAL**

**Spécialité Sciences de la Terre et de l'Environnement**

Mémoire présenté pour l'obtention de l'Habilitation à Diriger des Recherches

**BEATRICE BECHET NEE HARMAND**

Chargée de recherche du Développement Durable - MTES  
Docteur en génie des procédés – Ingénieur ENSG – INPL Nancy

**DU TRANSFERT DE COLLOÏDES SUR SYSTEME MODELE A LA PRISE EN COMPTE DES SOLS  
DANS LES AMENAGEMENTS URBAINS**

**PARCOURS SCIENTIFIQUE AU CŒUR DES ENJEUX ENVIRONNEMENTAUX URBAINS**

**Soutenance prévue le 8 avril 2019 devant le jury suivant :**

Jean MARTINS	DR CNRS, IGE, Université Grenoble Alpes	Rapporteur
Régis MOUILLERON	Professeur, LEESU, Université Paris-Est Créteil	Rapporteur
Christophe SCHWARTZ	Professeur, L.S.E, Université de Lorraine	Rapporteur
Sylvie BARRAUD	Professeure, INSA Lyon	Examinatrice
Patrick LAUNEAU	Professeur, LPG, Université de Nantes	Examinateur
Teresa LEITAO	Senior Researcher, LNEC, Lisbon	Examinatrice

## RESUME

Ce mémoire d'habilitation à diriger des recherches, intitulé « Du transfert de colloïdes sur système modèle à la prise en compte des sols dans les aménagements urbains – Parcours scientifique au cœur des enjeux environnementaux urbains », expose le bilan et les perspectives de mes travaux de recherche sur les transferts réactifs de polluants dans des contextes variés : systèmes poreux modèles homogènes et hétérogènes, ouvrages in-situ d'infiltration d'eaux de ruissellement, sols urbains de jardins associatifs...mais il retrace aussi mon action d'animation et de structuration de la recherche sur les sols urbains du niveau régional (Pays de Loire) et national, ainsi que mon implication actuelle dans plusieurs projets de recherche européens et internationaux et à la direction de l'Institut de Recherche sur les Sciences et Techniques de la Ville (IRSTV FR 2488) (Chapitre 1).

.La prédiction du devenir des polluants en environnement urbain est confrontée à la complexité du système eau –sol- végétation, tant par la nature et la structure de ses composantes que par la variabilité des conditions hydriques et physico-chimiques qui y régissent. Pour appréhender cette complexité, de nombreuses compétences doivent être mises en œuvre : géochimie environnementale (caractérisation des eaux, des sols, des matériaux), physico-chimie des surfaces (observation des surfaces et processus aux interfaces) et transferts réactifs dans les milieux poreux (méthodes expérimentales et outils numériques).

Ce manuscrit comporte dans les chapitres 2 et 3 les résultats principaux que j'ai obtenus, en assainissement pluvial sur les eaux de ruissellement et les sédiments et sur la compréhension des processus de transfert des polluants métalliques, avec notamment une mise en exergue du transfert colloïdal. La fraction colloïdale métallique reste globalement faible par rapport à la concentration totale en métaux mais elle présente une forte variabilité temporelle. De plus, la mise en évidence dans les eaux de ruissellement de nanoparticules manufacturées induit de nouvelles questions scientifiques, qui appellent de développements analytiques et de modélisation. La fraction colloïdale demande à être mieux caractérisée par des méthodes d'observation et de microanalyse pour établir la spéciation des métaux trace. Le lien avec les performances épuratoires des ouvrages d'assainissement pourrait ainsi être mieux établi.

Le phénomène d'agrégation particulière observé dans les eaux de ruissellement se retrouve dans les sédiments des ouvrages d'infiltration et impacte fortement les possibilités de traitement des matériaux. En terme de mobilité des métaux, les résultats tendent à montrer qu'une vigilance doit être établie par rapport à des éléments tels que le zinc ou le cuivre dont la spéciation dans les eaux interstitielles est elle aussi très variable, soumise à des paramètres de salinité des eaux ou de séchage.

Le champ de la modélisation des transferts réactifs des systèmes complexes des bassins reste très ouvert, même si nous avons proposé quelques pistes, les tentatives se heurtant à la double complexité de la spéciation des métaux dans les eaux et de la composition du sédiment. Toutefois les derniers travaux lyonnais valident l'approche proposée. Sur les phénomènes de transfert, une synthèse sur les processus de transfert des métaux, tant dissous que particulière, serait nécessaire pour mener une analyse au regard des

données sur les eaux (source et eaux interstitielles) et les extractions en état statique existantes. Cette synthèse pourrait concerner plus spécifiquement le cuivre et le zinc qui sont les éléments les plus présents et les plus mobilisés en terme de flux. Cela pourrait être un point de départ intéressant pour aller sur la formulation d'un modèle de transfert entre l'eau, le sédiment et le sol sous-jacent.

En ce qui concerne les sols urbains, les travaux que nous avons menés sur les sols de jardins ont permis d'apporter de nouvelles données sur la qualité des sols mais aussi de les analyser au regard des pressions anthropiques et/ou de l'influence du contexte géochimique. Nous avons publié une méthodologie de gestion des sols de jardins en cas de contamination qui est innovante. En effet il ne s'agit pas seulement de traiter un problème de risque sanitaire lié à l'ingestion de légumes contaminés mais bien de faire reposer le choix de la gestion sur un trinôme ville-jardinier-chercheur après une phase d'appropriation par les techniciens et les jardiniers de l'origine de la contamination, dans une relation de confiance. Cette démarche de co-construction est maintenant mise en œuvre pour la prise en compte de la multifonctionnalité des sols urbains à destination des acteurs de l'aménagement des villes. Enfin, la recherche sur les sols urbains ne saurait dorénavant être dissociée des actions de recherche sur l'eau et la végétation en ville et l'expertise sur la typologie et la qualité des sols est mise en oeuvre dans les projets sur les solutions fondées sur la nature (Nature-Based Solutions).

L'ensemble des actions de la communauté scientifique locale sur les sols urbains (Nantes – Angers), sont maintenant bien intégrées dans un axe dédié créé à mon initiative au sein de l'IRSTV. Les activités ciblées sur la pollution des sols sont organisées en commun avec l'OSUNA, qui porte un projet sur la pollution dans le continuum terre-mer. Au niveau national, les actions que j'entreprends à la direction de l'IRSTV doivent conduire à un positionnement plus visible de la fédération au niveau local ; au niveau national, par l'accompagnement du montage d'un service national d'observation de l'environnement urbain (INSU) et par des liens à formaliser avec l'I Site Future/ Université Gustave Eiffel ; enfin au niveau européen, par l'implication des chercheurs de l'IRSTV dans des projets dédiés aux Nature-Based Solutions.

## **SOMMAIRE**

<b>RESUME.....</b>	<b>0</b>
<b>SOMMAIRE.....</b>	<b>2</b>
<b>ABREVIATIONS.....</b>	<b>14</b>
<b>INTRODUCTION GENERALE.....</b>	<b>16</b>
<b>Les transferts de polluants en milieu poreux : échelles d'étude et interface eau-sol.....</b>	<b>17</b>
<b>L'IFSTTAR et le Laboratoire Eau et Environnement au cœur des enjeux de recherche sur les environnements urbains.....</b>	<b>20</b>
<b>Présentation de la structure du manuscrit .....</b>	<b>21</b>
<b>CHAPITRE 1 – DU TRANSFERT DE COLLOÏDES EN MILIEU POREUX MODELE A L'INTERDISCIPLINARITE DE L'IRSTV – PARCOURS SCIENTIFIQUE COUPLE A L'ANIMATION ET LA STRUCTURATION DE LA RECHERCHE .....</b>	<b>23</b>
<b>Introduction .....</b>	<b>23</b>
<b>Appréhension naturaliste de l'environnement et méthodes du génie des procédés – Applications au stockage de déchets nucléaires et au transfert de polluants organiques (1991 – 2000) .....</b>	<b>24</b>
<b>Développement de la thématique du transfert réactif de métaux trace dans les les sols des environnements routiers et en gestion des eaux pluviales.....</b>	<b>25</b>
Historique de la recherche sur la pollution des eaux et des sols à la Division Eau du LCPC avant 2000 .....	25
Un projet de recherche sur le transfert réactif des métaux trace en environnement routier mais une nécessaire caractérisation plus approfondie des matrices eaux et sols .....	26
Prendre en compte le transfert colloïdal des métaux trace et HAP mais aussi l'hétérogénéité des sols dans la gestion des eaux pluviales .....	28
Renforcement des relations avec les équipes du Réseau Scientifique et Technique du MTES (ex MEDDE).....	30
<b>Création d'une communauté de recherche sur les sols urbains en région des Pays de Loire en 2007 .....</b>	<b>31</b>
Création de l'axe "Sols urbains" au sein de l'IRSTV .....	31

Implication de l'axe Sols urbains dans le projet "Pollution diffuse des sols" de l'OSUNA.....	32
Place du Laboratoire Eau et Environnement dans la structuration locale.....	32
<b>Montée en puissance de la communauté des sols urbains Nantes- Angers au niveau national et international.....</b>	<b>33</b>
Avant 2012 - Les participations individuelles ou par organisme à une communauté d'échange sur les sols urbains nationale et internationale.....	33
Le positionnement dans la communauté de recherche sur les sols dédiés à l'agriculture urbaine – Une entrée par les jardins associatifs.....	34
La caractérisation biophysicochimique des sols urbains pour une gestion optimisée dans le cadre d'un aménagement urbain durable.....	35
<b>L'IRSTV – Enjeux et stratégie de positionnement dans une métropole en mutation, aux côtés de l'I-Site FUTURE et du LABEX IMU .....</b>	<b>36</b>
Création de l'Institut de Recherche en Sciences et Techniques de la Ville (IRSTV).....	36
Présentation et missions de l'IRSTV .....	37
Les grandes orientations à conserver, une stratégie scientifique à réinventer .....	39
Les éléments de la stratégie scientifique en cours d'élaboration .....	42
Du réseau des observatoires en hydrologie urbaine (URBIS) à un Service National d'Observation des Environnements Urbains (SNO Observil) unique en France.....	44
<b>CHAPITRE 2 - CARACTERISATION DE MATRICES COMPLEXES EN GESTION DES EAUX PLUVIALES.....</b>	<b>47</b>
<b>Contexte scientifique – La gestion des eaux pluviales urbaines .....</b>	<b>47</b>
<b>Les questions scientifiques traitées dans le cadre de l'évaluation de la performance des ouvrages d'infiltration des eaux de ruissellement.....</b>	<b>50</b>
<b>Colloïdes et métaux trace dans les eaux de ruissellement routières et les poussières de chaussées..</b>	<b>54</b>
Etat des connaissances sur la caractérisation des particules des eaux de ruissellement et la spéciation particulaire des ETM .....	54
Techniques expérimentales de caractérisation des particules des eaux de ruissellement .....	56
Mesure de la taille des particules .....	56

Techniques de fractionnement des eaux de ruissellement .....	57
Imagerie et micro-analyses des particules.....	58
Apports des techniques mises en œuvre à la connaissance des particules colloïdales des eaux de ruissellement .....	59
Un pool de particules de taille colloïdale bien présentes mais une quantification en nombre difficile .....	59
Une proposition de typologie des particules des eaux de ruissellement de taille comprise entre quelques micromètres et quelques millimètres .....	62
Caractéristiques générales et spéciation colloïdale des métaux trace dans les eaux de ruissellement	66
Conclusions.....	70
<b>Apport de techniques couplées à la caractérisation des sédiments de l'assainissement pluvial .....</b>	<b>72</b>
Etat des connaissances et questions scientifiques traitées sur les sédiments de l'assainissement pluvial .....	72
Méthodes de désagrégation, d'extraction/séparation et d'observation qualitative couplées pour la caractérisation de la spéciation particulaire des ETM et HAP.....	74
Désagrégation par ultra-sons et sonification avant granulométrie laser.....	74
Caractérisation de la spéciation particulaire par fractionnements et extractions couplés à de l'imagerie et des micro-analyses.....	75
Les sédiments sont des assemblages de particules isolées et d'agrégats à signature anthropique spécifique.....	77
Les extractions chimiques renseignent uniquement sur la mobilité des métaux trace et sont peu comparables entre elles.....	80
Les fractionnements chimiques sont des protocoles fortement limités par la présence des agrégats mais l'observation est un soutien précis à l'interprétation .....	81
Le protocole MIBK ne permet pas de compléter le fractionnement IHSS de la matière organique ..	81
Les apports des fractionnements par densité et taille de particules après désagrégation des sédiments .....	81

Synthèse et proposition d'amélioration de la méthodologie pour l'étude des phases porteuses de la pollution mixte des sédiments de l'assainissement pluvial .....	83
<b>Perspectives – Micro- et nano-particules naturelles et anthropiques des eaux de ruissellement - Mobilité associée des métaux trace .....</b>	<b>84</b>
Les nanoparticules manufacturées dans les milieux urbains .....	84
Caractérisation de l'occurrence, de la nature et des propriétés des micro- et nanoparticules métalliques dans les eaux pluviales urbaines par couplage de méthodes de fractionnement et d'analyses .....	87
Quelles nanoparticules dans les eaux pluviales urbaines ? .....	87
Objectifs du sujet de recherche .....	92
Méthodologie expérimentale.....	92
Moyens humains et financiers et collaborations prévues.....	94
<b>CHAPITRE 3 – TRANSFERT DE POLLUANTS DANS LES SOLS DES ENVIRONNEMENTS ROUTIERS - EXPERIMENTATION EN LABORATOIRE ET MODELISATION .....</b>	<b>95</b>
<b>Contexte scientifique - Les risques de contamination des sols et des ressources en eau par la pollution routière.....</b>	<b>95</b>
Contamination des sols et mobilité des polluants .....	95
Modélisation des transferts réactifs .....	97
<b>Les acquis sur les transferts de polluants au LEE en 2000 et les questions traitées.....</b>	<b>99</b>
<b>Méthodologie générale de l'expérimentation en colonne de laboratoire et de l'approche de modélisation couplé géochimie-transport.....</b>	<b>100</b>
Expérimentation en colonne de laboratoire .....	100
Principes de la chromatographie réactive .....	101
Analyses des courbes de percée à l'aide d'une modélisation 1D couplant transfert d'eau et de polluant .....	102
<b>Modélisation du transfert de zinc et de plomb dans un milieu sableux modèle et un sol de bord de route.....</b>	<b>103</b>
Un sable quartzéux à réactivité de surface faible mais la nécessité d'introduire un modèle de complexation à deux sites.....	103



Modélisation par complexation de surface de la mobilisation du zinc et du plomb dans un sol de bord de route sous l'effet du pH et d'un complexant organique .....	104
Expérience et données de la littérature .....	104
Modélisation préliminaire d'injection de zinc dans un sol de bord de route .....	106
<b>Transfert de métabolites de HAP couplé aux métaux trace dans le sol de bord de route.....</b>	<b>108</b>
<b>Mobilisation des métaux trace sous forme colloïdale dans les sédiments de bassin d'infiltration en fonction des variations de salinité et de la vitesse d'infiltration de l'eau.....</b>	<b>110</b>
Devenir des métaux particuliers dans les bassins d'infiltration .....	110
Distribution des métaux trace et des majeurs dans les eaux de surface et les eaux de pore du bassin de Chevire.....	112
Mobilisation colloïdale des métaux trace de sédiments de l'assainissement pluvial sous l'effet de variations de salinité et de charge hydraulique .....	113
Influence d'une variation de salinité.....	114
Influence des variations d'arrêt-reprise de l'écoulement .....	116
Caractérisation des particules mobilisées à partir de sédiments de l'assainissement pluvial .....	117
Images MEB/MET et microanalyses de particules .....	118
<b>Transferts d'eau et de colloïdes dans des sols sableux hétérogènes : influence d'une macroporosité et d'une stratification par géotextile dans un système modèle .....</b>	<b>120</b>
Description et modélisation du transfert de colloïdes sous influence d'hétérogénéités structurales et de la non-saturation en eau .....	120
Système expérimental.....	122
Influence d'un géotextile sur la rétention de colloïdes dans un milieu poreux à double porosité .....	123
Influence des conditions hydriques sur la rétention de colloïdes dans un milieu poreux hétérogène .	125
<b>Synthèse.....</b>	<b>128</b>
<b>Perspectives de recherche sur le transfert des métaux dans les ouvrages de gestion des eaux pluviales.....</b>	<b>130</b>

Influence d'une hétérogénéité structurale sur le transport de nanoparticules modèles en milieu poreux .....	130
Questions scientifiques sur les processus de transfert d'eau et de NPs en milieu poreux hétérogène .....	130
Objectifs du sujet de recherche .....	132
Méthodologie générale.....	133
Moyens et collaborations prévus.....	134
Quelques contraintes de l'expérimentation en colonne de laboratoire.....	135
Proposition pour la modélisation des transferts de NPs.....	136
Indicateurs de performance des ouvrages : doit-on tenir compte de la complexité des transferts de polluants et comment ? .....	136
Analyse du transfert réactif des métaux dans les ouvrages d'infiltration par modélisation couplée hydrodynamique-géochimie .....	138
Questions scientifiques et besoins en modélisation du transfert réactif des métaux trace en milieu poreux .....	138
Objectifs du sujet de recherche .....	142
Méthodologie générale.....	142
Moyens et collaborations prévus.....	143
<b>CHAPITRE 4 – SOLS URBAINS ET TRANSITION VERS DES VILLES DURABLES.....</b>	<b>145</b>
<b>Problématique d'un sol urbain attendu dans une multifonctionnalité et des services écosystémiques encore trop souvent ignorés et méconnus.....</b>	<b>145</b>
Le sol, un enjeu de planification urbaine .....	145
Redonner au sol sa place dans l'écosystème urbain .....	147
Des relations pas si simples entre classification et fonctions des sols urbains à la base des services écosystémiques rendus.....	150
<b>Evaluation et gestion de la contamination de sols de jardins associatifs .....</b>	<b>153</b>
Facteurs d'hétérogénéité spatiale de la contamination métallique aux échelles parcelle, site et ville	155

Origine des contaminations des sols de jardins : influence croisée du fond géochimique et de l'usage des sols <sup>202</sup> .....	156
Elaboration d'une méthodologie de gestion différenciée de la contamination d'un sol de jardin.....	158
Participation à l'Action COST « Urban allotment garden in Europe » TU 1201 (2014- 2016) .....	160
L'Atelier 'Ville de Nantes' du projet JASSUR le 6 juin 2015 .....	160
Conclusions et perspectives .....	161
<b>Expertise Scientifique Collective (ESCO) sur l'artificialisation des sols (2016- 2017).....</b>	<b>162</b>
<b>Prise en compte de la multifonctionnalité des sols dans les solutions fondées sur la nature (NBS) et dans les documents d'urbanisme (perspective de recherche 1).....</b>	<b>164</b>
Qualité chimique des sols urbains, indicateurs pour l'évaluation ante/post des NBS et prise en compte des fonctions des sols en aménagement.....	164
Acquisition et bancarisation de données de qualité des sols et des eaux souterraines à l'échelle du bassin versant urbain pour l'observation à long terme des environnements urbains .....	164
Indicateurs ante/post des NBS .....	164
Développer une méthodologie en direction des opérationnels.....	165
<b>Croiser indicateurs de qualité et de productivité des sols et appréhension subjective du sol pour des aménagements plus durables (perspective de recherche 2). .....</b>	<b>167</b>
<b>CONCLUSION GENERALE .....</b>	<b>169</b>
<b>Résultats scientifiques et perspectives .....</b>	<b>169</b>
<b>Structuration de la recherche sur l'environnement urbain.....</b>	<b>170</b>

## TABLE DES ILLUSTRATIONS

Figure 1 Parcours professionnel du doctorat à la direction de FR.....	16
Figure 2 Sources de pollution diffuses et ponctuelles liées aux activités anthropiques (©Paul Mirocha design) .	17
Figure 3 Les transferts d'eau et de polluants dans les sols au sein de l'écosystème urbain, des processus à étudier de l'échelle du bassin versant à l'échelle de l'échantillon .....	18
Figure 4 Représentation schématique de l'écosystème urbain.....	37
Figure 5 Répartition en nombre des personnels entre les différents établissements de l'IRSTV (le CNRS n'est pas mentionné mais il est en co-tutelle de 12 équipes de recherche de l'IRSTV) .....	38
Figure 6 Intitulés des axes de recherche de l'IRSTV et structuration globale (extrait du projet scientifique).....	39
Figure 7 L'IRSTV et les ODD : 11- Villes et communautés durables, majeur pour l'IRSTV, 13- lutte contre le changement climatique, 6-eau, 15-vie terrestre .....	40
Figure 8 Panorama de la recherche sur la Ville en France – Etat des lieux de novembre 2015 – Bureau d'étude CMI.....	46
Figure 9 Exemples de techniques alternatives de gestion des eaux pluviales (crédit photos F. Rodriguez) .....	49
Figure 10 Schéma conceptuel du transfert de polluants dans les sols des ouvrages de traitement des eaux pluviales (projet EMMAUS.....	52
Figure 11 Matière en suspension, colloïdes et nanoparticules en milieu aqueux – La coupure opérationnelle entre « particulaire » et « dissous » est à 0,45µm ; les micro- et nanoparticules peuvent se présenter sous forme de suspensions colloïdales (mélange homogène de deux phases : ici particules et phase aqueuse) (adapté de Nielsen et al., 2015).....	54
Figure 12 Observation au MET d'une goutte d'eau de ruissellement de Cheviré (IRSN, projet EMMAUS) .....	56
Figure 13 Schéma de principe de la séparation par couplage flux-force suivi d'une mesure au MALS - Multi-angle laser light-scattering .....	57
Figure 14 Courbes granulométriques en volume et en nombre pour une eau de réseau séparatif (exutoire du quartier du Pin Sec Nantes) [stage F.Rehm] .....	60
Figure 15 Distribution de taille des particules en volume d'une eau de ruissellement d'un petit bassin routier [ACL25].....	60
Figure 16 Résultats de caractérisation en taille des particules présentes dans les eaux de ruissellement d'une toiture en zinc par microscopie optique et analyse d'image (site du CSTB Nantes, extrait du rapport de stage de J. Kassir dans le cadre de la thèse de A. Fardel) .....	61
Figure 17 Exemple de distribution de taille de particules dans des poussières de chaussées (bassin routier sur Le Perreux sur Marne (93), projet Trafipollu) .....	62
Figure 18 Agrégats observés en microscopie optique : a) macroagrégat et b) microagrégat .....	63
Figure 19 Distribution des éléments majeurs et trace et du carbone organique de l'eau de ruissellement du pont de Cheviré entre fraction dissoute et particulaire (coupure à 0,45 µm) – Valeurs moyennes sur 11 évènements pluvieux .....	68

Figure 20 – Exemple de distribution des éléments majeurs et trace entre les fractions particulaires, colloïdales et dissoutes de l'eau de Cheviré pour l'évènement pluvial du 16 mai 2006 [ACTI7] et variation de la distribution (%) pour 4 prélèvements. ....	70
Figure 21. Principe de l'attrition et comparaison avec un procédé de broyage (source : thèse de F. Pétavy, 2009) <sup>46</sup> .....	73
Figure 22 Méthodologie d'étude de la spéciation particulaire des polluants métalliques et organiques dans les sédiments de bassin de rétention-infiltration d'eaux de ruissellement urbaines (extrait de la thèse de A. El Mufleh) .....	75
Figure 23 Schéma du fractionnement chimique au MIBK (méthylisobutylcétone) (adapté de Rice et McCathy, 1989) – extrait de la thèse de A. El Mufleh, 2012 [ACL17]) .....	76
Figure 24 Exemple de courbes granulométriques obtenues sur le sédiment de Cheviré, sans traitement (courbe bleue) et avec sonification de 9 min sur matériau humide (courbe rouge) .....	78
Figure 25 Sédiment de Cheviré : a) et b) : observations en microscopie électronique à balayage a) d'une diatomée et b) de cendres volantes; c) observation en microscopie optique d'un macroagrégat organo-minéral ; d) observation en microscopie électronique à balayage d'un microagrégat organo-minéral .....	78
Figure 26 Sédiment de Cheviré a) répartition granulométrique en masse des différentes fractions ; b) proportion des ETM dans les fractions (somme des ETM) ; c) proportion des HAP dans les fractions (somme des HAP) .....	79
Figure 27 Particule métallique du sédiment du bassin de Lens (G08) en microscopie optique et son spectre EDX (mise en évidence d'une forte teneur en zinc et fer) .....	80
Figure 28 Extractions séquentielles et cinétiques pour a) le zinc et b) le chrome piégés dans les sédiments de Boisbonne (Nantes) (B), Cheviré (Nantes) (C) et G08 (Lens) (G), en pourcentage de leur concentration totale .....	81
Figure 29 Fractionnement densimétrique a) pellicule organique $d < 1,9$ ; b) agrégats organo-minéraux ( $1,9 < d < 2,6$ ) ; c) particules minérales ( $d < 2,8$ ) et d) particules denses (dont oxydes métalliques) ( $d > 2,8$ ) ....	82
Figure 30– Répartition des concentrations en chrome et en nickel entre les fractions obtenues par fractionnement densimétrique à partir des sédiments de Cheviré et G08 .....	82
Figure 31 - Nombre total de produits contenant des nanomatériaux mis sur le marché entre 2005 et 2010 (extrait de ) .....	85
Figure 32 - Nombre de produits contenant des nanoparticules par catégorie de produits (extrait de [81]) .....	86
Figure 33 – Catégories de nanomatériaux manufacturés (ENM) : ENM initiales (P-ENM; telles que fabriquées), ENM modifiées (PM-ENM; par incorporation dans le produit), ENM modifiée (PW-ENM; dans le produit et pendant son usage), and ENM transformée dans l'environnement (ET-ENM) .....	86
Figure 34 Schéma opérationnel de préparation d'un échantillon pour la caractérisation de nanoparticules (Weinberg et al. (2011)) .....	89
Figure 35 Méthodes les plus fréquentes de fractionnement physique et de caractérisation de particules (extrait de Lead and Wilkinson, Environmental particles, 2006) .....	90
Figure 36 Montage expérimental d'une expérimentation a) en conditions saturées sur colonne de chromatographie [ACL2]; b) en conditions de percolation descendante sur sédiment .....	101

Figure 37 Créneaux d'injection et courbes de percée en sortie de colonne [ACLN4] .....	101
Figure 38 Système modèle de sable de Fontainebleau - Simulation des courbes de percée expérimentales (figurés) et simulées (traits) du calcium, du pH et des métaux (plomb, zinc) en fonction du volume élué par un modèle de complexation de surface à deux sites ( $\log K_{Ca(w)} = -3,6$ et $\log K_{Ca(s)} = -2,6$ ; $\log K_{Zn(w)} = -2,8$ et $\log K_{Zn(s)} = -2,1$ ; $\log K_{Pb(w)} = -1,8$ et $\log K_{Pb(s)} = -1,0$ ). Dans la colonne saturée en Ca, une injection compétitive de Zn et Pb est réalisée suivie d'une désorption par injection de CaBr <sub>2</sub> . .....	104
Figure 39 Image MEB du sol de bord de route .....	104
Figure 40 Comparaison des courbes expérimentales et simulées de désorption de plomb et zinc dans un sol de bord de route sous l'effet d'une variation de pH et de l'injection d'un complexant organique .....	106
Figure 41 Sol de bord de route de Houdan (RP) a) schéma d'extraction séquentielle appliqué au sol avant expérience en colonne ; b) schéma d'extraction séquentielle appliqué au sol après expérience en colonne (th. C. Delmas).....	107
Figure 42 a) Système réactionnel pour modéliser le transfert de zinc en conditions dynamiques (en rouge les variables d'ajustement); b) Courbes de percée du zinc et des cations majeurs et évolution du pH en réponse à une injection échelon de zinc dans de l'eau d'Evian ( $C_0 = 870$ mg/L) dans un sol de bord de route .....	108
Figure 43 a) Isothermes d'adsorption de NA, HNA et SA sur le sol (exp. et simulations) ( $pH 7 \pm 0,2$ ; NaCl 10 mM comme solution de conditionnement) ; b) Points expérimentaux et simulation du transfert de l'acide salicylique dans le sol de bord de route avec les différents modèles à l'équilibre et hors équilibre .....	109
Figure 44 Courbes de percée de trois métaux trace (Pb, Zn, Cu) lors de l'injection d'acide salicylique dans une colonne de sol de bord de route (concentrations totales) $Q = 1 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$ .....	109
Figure 45 Schéma d'implantation du tube piézométrique.....	112
Figure 46 Répartition des métaux trace et des éléments majeurs entre les fractions dissoutes, colloïdales et particulières d'une eau porale prélevée le 13 août 2004 sur le bassin de Chevire .....	113
Figure 47 Protocole des expérimentations en colonne a) créneau de salinité décroissant indiqué par la courbe de conductivité ; b) arrêt-reprise du débit avec arrêt de durée constant et arrêt de durée variable .....	114
Figure 48 Variation de l'absorbance et de la concentration en éléments majeurs et métaux en sortie de colonne de sédiment sous l'effet d'un changement de salinité (NaCl $8 \cdot 10^{-2}$ M à $10^{-4}$ M) ; $Q = 0,8$ mL/mn ; volume poreux ( $V_p = 30 \text{ cm}^3$ - L'évolution de la teneur en carbone organique suit celle de l'absorbance ( $R^2 = 0,96$ ).....	115
Figure 49 Spéciation physique du Zn, Cu et Fe (axe de gauche) et Pb, Al (axe de droite) dans un éluat de colonne de sédiment recueilli lors d'un créneau de salinité décroissant .....	116
Figure 50 Variations de la densité optique, des concentrations en éléments majeurs et traces et en carbone organique total dans les éluats de colonne de sédiment soumise à des arrêts-reprises de l'écoulement à pas de temps constant ( $V_p = 200$ mL).....	117
Figure 51 a) Observation au MEB de particules de lixiviat de sédiment recueillies par filtration sur une membrane de diamètre de pore de $8 \mu\text{m}$ ; b) Observation au MET et spectre EDX d'un agrégat présent dans la fraction $< 1,2 \mu\text{m}$ ; c) Observation au MET et spectre EDX d'un agrégat présent dans la fraction $< 30$ kDa .....	118

Figure 52 Analyse ICP-MS après fractionnement par FFF des éléments majeurs et trace d'un éluat brut (filtré à 10 µm) de colonne de sédiment – Mode haute résolution : flux principal de 0,5 mL.min <sup>-1</sup> et perpendiculaire de 3 mL.min <sup>-1</sup> , fluide porteur NH <sub>4</sub> Cl 15 mM à pH 8 .....	119
Figure 53 Schéma extrait de DeNovio et al (2004) <sup>144</sup> présentant l'ensemble des mécanismes qui agissent sur les particules colloïdales lors de leur transfert dans un milieu poreux non saturé (processus d'attachement et de détachement).....	121
Figure 54 Schéma des colonnes et du protocole d'injection du traceur et des colloïdes .....	122
Figure 55 Courbes moyennes d'élution des colloïdes en milieu granulaire avec et sans strate en conditions saturées (à gauche) et non saturées (à droite) avec les écarts types entre 2 répliquats.....	124
Figure 56 Courbes de percée moyennes des particules de latex injectées dans le sable et le gravier sous: a) conditions saturées et b) conditions de saturation partielle.....	125
Figure 57 Modélisation du transfert de colloïdes dans les colonnes de sable et gravier et pour les deux conditions hydriques .....	127
Figure 58 Rétention de particules de latex de 0,79 µm dans un sable quartzueux (image MEB, thèse B. Harmand) .....	133
Figure 59 Répartition des lithofaciès sur un profil de sol en 2 dimensions et profil de teneur en matière organique et en cuivre total le long de la tranchée réalisée sur le bassin de Django Rheinart (Lyon) (Winiarski et al. (2014)) .....	137
Figure 60 Processus de transfert de substances sous forme de soluté et particulaire dans le système eau-sol-plante en infiltration des eaux pluviales (source Tedoldi et al. 2016) .....	139
Figure 61 Influence du temps de séchage sur la mobilisation des colloïdes du sol en fonction de la macroporosité .....	141
Figure 62 Relargage du cuivre en fonction du pH, Expérimental : croix, modélisation : ligne (figure extraite de « Méthodologie d'évaluation du relargage du cuivre piégé dans des sédiments de l'assainissement urbain » Drapeau C, Laurent Lassabatère L, Blanc D, Delolme C, actes de la conférence Novatech, Lyon.....	141
Figure 63 Schéma conceptuel de la mobilisation de colloïdes de fer sous l'effet d'un extractant organique (extrait de Hofmann et Liang, 2007) <sup>185</sup> .....	142
Figure 64 Exemple de calcul de spéciation multimétallique avec le code de calcul géochimique CHESS .....	143
Figure 65 Sol urbain : des spécificités modifiant les fonctions et les services écosystémiques rendus (illustration M. Balmes) .....	147
Figure 66 Variation des stocks de carbone organique selon l'affectation des sols en France (extrait de la brochure ADEME « Carbone organique des sols » 2016) .....	150
Figure 67 Propriétés, fonctions et services écosystémiques rendus par les sols à l'humanité (extrait de Adhikari K, Hartemink AE, 2016).....	151
Figure 68 Proposition de croisement entre usages des sols et type de sol caractérisé par ses paramètres physico-chimiques (extrait de l'ESCO Artificialisation des sols – Chapitre 2 Partie 3 Delolme et al.).....	152
Figure 69 Les sujets de recherche traités dans le projet Jassur et la cartographie des villes partenaires (source site Web Jassur).....	154

Figure 70 Teneurs en zinc dans les 6 jardins de Nantes et de Lisbonne (valeur moyenne et écart type, valeurs extrêmes) .....	156
Figure 71 Parc potager de la Crapaudine (Nantes) a) Cartographie des teneurs en plomb sur la zone de jardin associatif; b) photo aérienne de 1972 montrant la localisation de la serre sur l'exploitation maraîchère (contour de l'exploitation en rouge, emprise du jardin actuel en jaune) .....	157
Figure 72 Teneurs en plomb mesurées par fluorescence X portable dans a) le sol du parc des Oblates, avec la teneur dans le granite constituant le matériau parent (origine industrielle) ; b) le sol du jardin des Eglantiers dans plusieurs parcelles (origine géogénique) .....	158
Figure 73 Schéma méthodologique appliqué pour gérer les cas de contamination des sols des jardins associatifs nantais .....	159
Figure 74 Carte de gestion différenciée des sols du jardin associatif des Eglantiers. Les seuils de maintien de l'arrêté préfectoral de culture de certains légumes sont de 50 mg/kg de sol pour l'arsenic et de 100 mg/kg de sol pour le plomb. La parcelle expérimentale permet à l'université de Nantes en collaboration avec l'Ifsttar LEE et le BRGM de mener une expérimentation participative de culture de légumes non accumulateurs de plomb et de plantes dépolluantes .....	160
Figure 75 Affiche de la manifestation au jardin des Eglantiers le 6 juin 2015 préparée par la Ville de Nantes .	161
Figure 76 Schéma de la démarche d'évaluation environnementale adaptée aux enjeux « sols » dans le projet MUSE .....	<b>166</b>



## ABREVIATIONS

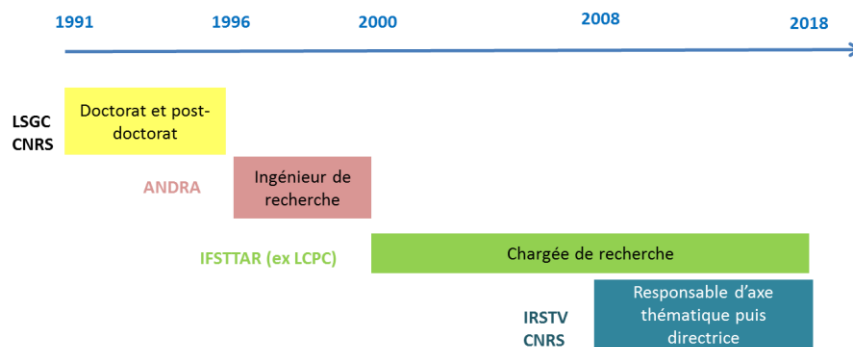
AME	Département Aménagement, Mobilités et Environnement IFSTTAR
ANDRA	Agence Nationale pour la gestion des Déchets Radioactifs
BCR	Bureau Communautaire de Référence
CEC	Capacité d'Echange Cationique
CEREMA	Centre d'études et d'expertise sur les risques, l'environnement, la mobilité et l'aménagement - Etablissement Public Administratif créé au 1 <sup>er</sup> janvier 2014 par le regroupement des structures techniques du MEDDE dont la mission porte sur la ville et l'aménagement du territoire (CETE, SETRA, VNF, CERTU)
CETE	Centre d'Etudes Techniques de l'Equipement fusion des CETE, du SETRA, de VNF pour former le CEREMA
CSTB	Centre Scientifique et Technique du Bâtiment (centre de Nantes)
ETM	Eléments trace métalliques
FEWMETER	Projet AAP SUGI (ERA-NET Cofund Sustainable Urbanisation – Global Initiative, Belmont Forum/JPI Urban Europe) - An integrative model to measure and improve urban agriculture towards circular urban metabolism
GERS	Département Géologie Environnement Risques et Sciences du Sol IFSTTAR
HAP	Hydrocarbures aromatiques polycycliques
LCPC	Laboratoire Central des Ponts et Chaussées (1831-2010) fusionné en janvier 2011 avec l'INRETS (Institut National des Réseaux et de la Sécurité des Transports) pour former l'IFSTTAR
LEE	Laboratoire Eau et Environnement
LSGC	Laboratoire de Génie des Procédés – CNRS ENSIC devenu LRPG
IFSTTAR	Institut Français des Sciences et Technologies des Transports, de l'Aménagement et des Réseaux créé le 1 <sup>er</sup> janvier 2011 par la fusion du LCPC et de l'INRETS
IHSS	International Humic Substances Society
IRM	Imagerie à Résonance Magnétique

IUSS	International Union of Soil Sciences
IRSTV	Institut de Recherche sur les Sciences et Techniques de la Ville – FR CNRS 2488
JASSUR	Projet de recherche « Jardins Associatifs Urbains et villes durables :pratiques, fonctions et risques » (2013-2015) en réponse à l’AAP de l’ANR Villes et Bâtiments Durables
MET	Microscopie électronique à transmission
MIOM	Mâchefers d’Incinération d’Ordures Ménagères
MUSE	Projet AAP MODEVAL URBA ADEME 2017 - Intégrer la multifonctionnalité des sols dans les documents d'urbanisme
NPs	Nanoparticules
ONEVU	Observatoire Nantais des Environnements Urbains porté par l’IRSTV
OSUNA	Observatoire des Sciences de l’Univers Nantais (OSU INSU-CNRS)
POLESUR	Projet de recherche « POLLution des Eaux et des Sols en milieu Urbain » (2008-2011) co-financé par la Région des Pays de Loire
POLLUSOLS	Projet de recherche porté par l’OSUNA et financé par la Région des Pays de Loire « Pollution diffuse des sols » (2015-2020)
RNEST	Réseau National d’Expertise sur les Sols
RS2E	Projet porté par l’OSUNA et financé par la Région des Pays de la Loire « Réseau de Suivi et de Surveillance Environnemental de l’Observatoire des Sciences de l’Univers Nantes Angers » (2012-2015)
URBINAT	Projet H2020-SCC-2016-2017 (Smart and Sustainable Cities) - Healthy corridors as drivers of social housing neighbourhoods for the co-creation of social, environmental and marketable NBS
URBIS	Réseau des trois observatoires français en hydrologie urbaine : ONEVU (Nantes), OPUR (Paris), OTHU (Lyon)

## INTRODUCTION GENERALE

La première constatation qui pourra être faite à réception de ce manuscrit est que le temps de mon doctorat est bien loin (plus de 20 ans...) au regard de la dizaine d'années habituellement rencontrée pour la plupart des chercheurs entre leur thèse et l'HDR. Mon chemin dans la sphère scientifique n'a pas été aussi linéaire que celui d'autres chercheurs en terme de champs d'application, mais il est riche dans la diversité des travaux que j'ai pu mener et dans les collaborations/rencontres que j'ai eues dans de nombreuses communautés scientifiques.

Aujourd'hui, mon parcours scientifique et d'animation de la recherche pourrait se résumer autour du fil conducteur des transferts de polluants, d'une spécialisation en génie des procédés appliqués aux milieux naturels à la pollution des sols urbains dans un contexte de recherche intégrée, sur les enjeux environnementaux urbains au sein d'une fédération de recherche CNRS sur la Ville (IRSTV<sup>1</sup>) dont j'assume la direction. Ce parcours se résume en deux grandes phases qui seront détaillées dans le chapitre 1 de ce manuscrit (**Figure 1**): 1) activités de recherche dans le domaine du stockage de déchets radioactifs et des sites et sols pollués (LSGC et ANDRA)<sup>2</sup>; 2) activités de recherche et d'animation de la recherche dans le domaine de l'assainissement pluvial urbain et de la pollution des sols urbains, mon implication forte dans l'IRSTV depuis 2008 me donnant l'opportunité de collaborations particulièrement fructueuses et ouvrant le champ des possibles pour emmener les chercheurs de l'IRSTV vers un horizon plus large en tant que directrice de cet institut.



**Figure 1** Parcours professionnel du doctorat à la direction de FR

La suite de ce chapitre a pour objectif d'expliquer comment la thématique du transfert de polluants dans

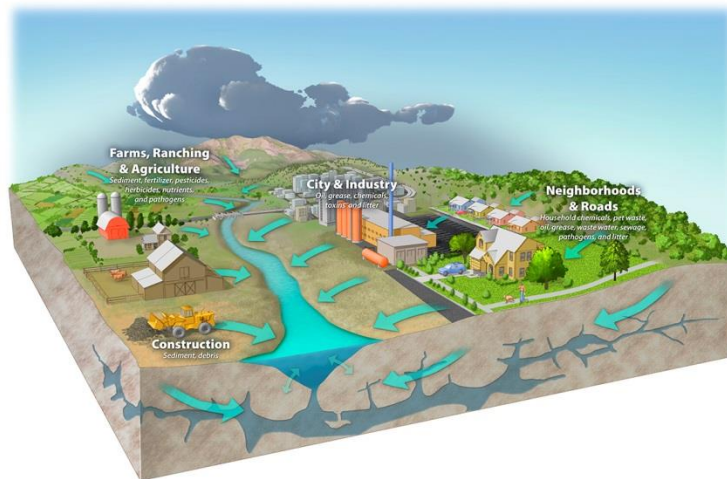
les milieux poreux, que j'ai d'abord étudié sur systèmes modèles au laboratoire, trouve sa place dans l'écosystème urbain, puis je donnerai quelques éléments de situation de mon laboratoire d'accueil, Eau et Environnement - département GERS (Géologie Environnement Risques et Sciences du Sol) dans la recherche sur l'eau et les sols en milieu urbain, tout en le remplaçant dans l'IFSTTAR, établissement particulièrement propice à la recherche urbaine car membre de l'I Site FUTURE et de la future Université Gustave Eiffel sur la Ville et les Transports.

<sup>1</sup> Institut de Recherche sur les Sciences et Techniques de la Ville – FR CNRS 2488

<sup>2</sup> Laboratoire de Génie des Procédés Nancy-Agence nationale de gestion des déchets radioactifs

## Les transferts de polluants en milieu poreux : échelles d'étude et interface eau-sol

La prédiction du devenir des polluants dans des milieux complexes tels que le système eau-sol nécessite d'appréhender une grande partie de la chaîne de dispersion de la pollution émise par des sources très variées localisées : activités industrielles, stockage de déchets ménagers/industriels/radioactifs...ou diffuses : activités de transport, chauffage, activités agricoles...(Figure 2)



**Figure 2** Sources de pollution diffuses et ponctuelles liées aux activités anthropiques (©Paul Mirocha design)

La méthodologie complète pour étudier le devenir des polluants dans l'environnement devrait comporter les phases suivantes (source BRGM) :

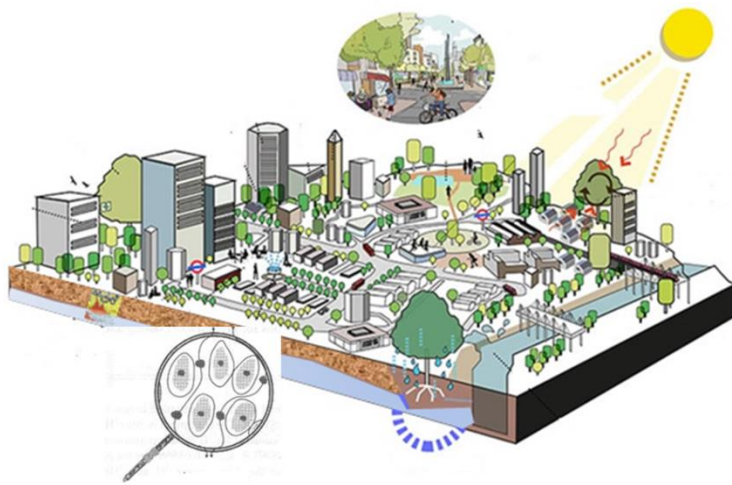
1. Caractériser la pollution c'est-à-dire déterminer l'origine et la nature des polluants, leurs concentrations, l'étendue de la pollution et la cartographier, ainsi que déterminer la spéciation des substances polluantes (physique et/ou chimique selon les moyens d'investigation à disposition);
2. Caractériser le milieu pour déterminer la nature des sols et sous-sols, leur composition, leurs propriétés physico-chimiques, ainsi que les conditions hydrologiques et météorologiques locales ;
3. Etudier la dynamique des polluants afin d'estimer leur mobilité et prévoir leur migration dans le milieu, c'est-à-dire caractériser les processus hydrodynamiques et d'interaction liquide/solide qui vont régir leur transfert ;
4. Modéliser les transferts des polluants pour simuler leur migration à l'échelle de l'ouvrage ou du bassin versant afin d'évaluer l'atteinte des écosystèmes
5. Evaluer l'écotoxicité des substances et le risque pour la santé humaine ;
6. Gérer la pollution pour limiter les impacts immédiats ou futurs.

Dans les domaines d'activité tels que l'alimentation en eau potable, la gestion des sites et sols pollués (au sens de l'ADEME c.à.d sites industriels), le stockage des déchets radioactifs ou l'extraction pétrolière, ont été développés, depuis les années 70, de nombreux modèles pour décrire les écoulements d'eau et les transferts de substances chimiques ou d'éléments naturels. Les phases 1 à 4 sont alors bien couvertes, les phases 5 à 6 touchant au biotique étant généralement mal appréhendées. Les processus de transfert ont été

étudiés de l'échelle du laboratoire sur système modèle à l'échelle du bassin versant, l'hétérogénéité des sols et sous-sols étant approchée par les variations de la lithologie à l'échelle de la formation géologique et par la prise en compte du système hydrogéologique.

Le domaine du milieu urbain est nettement moins couvert sur la thématique des transferts de polluants en surface et dans les sols, même si l'hydrologie urbaine permet d'appréhender les spécificités du cycle hydrologique en milieu urbain pour tenir compte, notamment de l'imperméabilisation des surfaces et de la présence des réseaux artificiels de surface et souterrains (**Figure 3**). Les sites et sols pollués caractérisés par des pollutions fortes sont bien ciblés par les projets de recherche et les opérations de gestion localisée, alors que la pollution diffuse, présente dans les différents compartiments de l'écosystème urbain, concentre beaucoup moins de moyens de recherche et de développement de solutions.

Les Villes, mégapole, métropole mais aussi villes de taille moyenne, sont les lieux de vie de 70% de la population mondiale. Elles font l'objet d'enjeux majeurs environnementaux, sociétaux et économiques dans un contexte de changements globaux. La pollution des eaux et des sols urbains est clairement identifiée, depuis longtemps, comme un facteur de forçage anthropique majeur, dans un contexte de raréfaction et de dégradation des ressources.



**Figure 3** Les transferts d'eau et de polluants dans les sols au sein de l'écosystème urbain, des processus à étudier de l'échelle du bassin versant à l'échelle de l'échantillon (modifié)

Les acteurs politiques et techniques des Villes se sont aujourd'hui approprié le concept de cycle de l'eau en milieu urbain. La gestion des eaux usées s'est mise en place

dans un premier temps, puis des opérations réussies de gestion des eaux pluviales ont vu le jour depuis une trentaine d'années. Mais, avec l'émergence de nouveaux polluants (polluants organiques persistents, nanoparticules...), les modifications des régimes hydriques et des températures, la gestion des eaux pluviales doit être repensée de façon plus intégrée, dans un contexte d'urbanisation croissant<sup>3</sup>.

En ce qui concerne les sols urbains, l'entrée reste majoritairement la réglementation des sites et sols pollués, en l'absence d'autres réglementations sur leur qualité. Cependant, l'essor de l'agriculture urbaine

<sup>3</sup> Expertise Scientifique Collective - **Béchet B** (coord.), Le Bissonnais Y (coord.), Ruas A (coord.) et al. (2017). *Sols artificialisés et processus d'artificialisation des sols, Déterminants, impacts et leviers d'action*. INRA (France), 609 pages.

et péri-urbaine commence à faire bouger les lignes sous l'impulsion de collectivités et de citoyens attentifs à la qualité des produits qu'ils consomment. La prise en compte de la multifonctionnalité des sols et des services écosystémiques qu'ils rendent dans les documents d'urbanisme et de planification territoriale semblent aujourd'hui en France la voie à privilégier pour préserver les sols urbains et optimiser leur gestion.

Rappelons que la prise de conscience du sol dans son ensemble, comme ressource à protéger, au même titre



que l'eau, est récente car elle n'a vraiment été mise à l'agenda des politiques qu'à partir de la parution du document « Millenium Ecosystems Assessment » en 2001, suivi de ses déclinaisons étatiques. Il faut attendre 2015 « Année internationale des sols » pour

une prise de conscience des citoyens, à l'image de l'action « People4Soil » en 2016 au niveau européen. Le sol est intégré dans les Objectifs de Développement Durable par le biais de l'objectif sur l'accès à une alimentation saine et abondante essentiellement, même s'il est une composante de nombreux objectifs. L'action 4 pour 1000 pour favoriser le stockage du carbone dans les sols est aujourd'hui l'action la plus emblématique au niveau international.

Enfin, la recherche sur les sols urbains ne saurait dorénavant être dissociée des actions de recherche sur l'eau et la végétation en ville, et plus largement sur l'environnement urbain, dans un souci d'aider les collectivités et l'Etat à mettre en œuvre les nécessaires et urgentes adaptations intégrées pour faire face aux enjeux du changement climatique.

Parmi les solutions proposées, les solutions fondées sur la nature (Nature-Based Solutions) sont prometteuses car elles visent à ramener le fonctionnement de l'écosystème urbain vers un fonctionnement plus respectueux de la nature. Les techniques dédiées à l'infiltration de l'eau en font partie. Ce sont en effet des surfaces perméables, bien souvent végétalisées, dont la fonction d'infiltration de l'eau dans le sol, ainsi que la fonction de filtration du sol qui vont être mises à profit pour réduire les volumes d'eau rejetés au milieu naturel et épurer les eaux. **Les sols urbains contribuent ainsi à la régulation du cycle de l'eau (cf. zones de recharge des eaux souterraines<sup>4</sup>), à la protection contre les crues et à l'adaptation au changement climatique, en tant que interface entre le compartiment atmosphérique, les surfaces et les sous-sols.** Les bassins et fossés d'infiltration sont parmi les 'écotechnologies' <sup>5</sup> les plus usitées pour réduire les impacts des eaux pluviales dans les zones urbaines, en infiltrant les eaux de ruissellement à la source.

---

<sup>4</sup> Lobo Ferreira JP, & Leitão TE (2014) Demonstrating managed aquifer recharge as a solution for climate change adaptation: results from Gabardine project and asemwaterNet coordination action in the Algarve region (Portugal). *Acque Sotteranee - Italian Journal of Groundwater*, 3(3). <https://doi.org/10.7343/as-080-14-0106>.

<sup>5</sup> O'Reilly, A.M., Wanielista, M.P., Chang, N.-B., Xuan, Z. and Harris, W.G. (2012). Nutrient removal using biosorption activated media: preliminary biogeochemical assessment of an innovative stormwater infiltration basin, *Science of the Total Environment*. 432, 227–242.

## **L'IFSTTAR et le Laboratoire Eau et Environnement au cœur des enjeux de recherche sur les environnements urbains**

Le Laboratoire Central des Ponts et Chaussées, fondé en 1831, en tant que laboratoire de recherche dans les travaux publics et de formation pour les ingénieurs de l'École des Ponts et Chaussées (dont elle s'est séparée en 1949), a étendu ses activités dans les années 1960 à d'autres domaines que la route et les ouvrages, poussé en cela par le rattachement du laboratoire à des ministères à spectre d'activité large (Ministère de l'Environnement et du Cadre de Vie puis celui de l'Urbanisme et Logement), et par son implantation sur le site de Nantes. Les nouvelles orientations vers des problématiques plus «environnementales» ont été suscitées aussi par des incidents majeurs de contamination dans le domaine du génie civil comme par exemple, en ce qui concerne la pollution de l'air, par les retombées de poussières provenant de centrales d'enrobage sur des pêcheurs, au moment des grands travaux autoroutiers, en Vallée du Rhône dans les années 1960<sup>6</sup>.

Des thématiques d'études et recherche alors voient le jour au LCPC sur le bruit, l'eau, la valorisation de sous-produits et déchets, les techniques off-shore, les techniques de télédétection, les séismes...en s'appuyant sur le réseau des Laboratoires Régionaux et des organismes régionaux— Centres d'Essais, Centres d'Études de Prototypes de Matériels.

Dans le contexte très général de la pollution des sols, la contribution du laboratoire Eau et Environnement de l'IFSTTAR se situe historiquement au niveau de l'impact environnemental des activités de transport et des infrastructures, et de l'utilisation de déchets et sous-produits en génie civil pour la construction des infrastructures dans une configuration de pollution diffuse. Initialement limitées à l'environnement routier, les activités de l'équipe, par l'impulsion que j'ai donné et le développement que j'ai assuré, se sont tournées peu à peu vers le milieu urbain et s'inscrivent maintenant dans les actions de recherche et développement de préservation des ressources naturelles (eau et sol) par la connaissance, l'évaluation et la restauration de l'écosystème urbain, dans les domaines suivants: 1) la gestion durable des eaux pluviales urbaines, 2) la gestion des sols urbains : reconstruction de sols, agriculture urbaine (jardins associatifs, fermes urbaines), site d'enfouissement de déchets urbains (les deux derniers domaines d'activité ayant été apportés à l'équipe par mes activités de recherche). A noter le rôle moteur qu'a joué le Laboratoire Eau et Environnement (Ruban, C. Joannis, F. Rodriguez) dans la structuration du réseau des Observatoires en Hydrologie Urbaine (URBIS) et le projet de Service National des Observatoires Urbains en cours de montage (CNRS INSU).

Le département GERS de l'IFSTTAR a, pour sa part, pour cœur d'activité les géosciences appliquées au génie civil et à l'aménagement. Les principaux champs d'application des recherches et expertises développées au sein du département concernent la conception, la construction d'infrastructures durables,

---

<sup>6</sup> Le cent-cinquantième du Laboratoire Central des Ponts et Chaussées, G. BRUNSCHWIG PCM mai 1982

leur surveillance et auscultation, la maîtrise des risques naturels et des pollutions et la gestion de l'eau en ville. Les compétences mobilisées au sein du département GERS sont multiples : géotechnique, géologie, hydrologie, chimie environnementale, géophysique et auscultation. Dans ces domaines, les travaux de recherche menés dans le département associent la modélisation numérique et physique, les développements méthodologiques et matériels et les expérimentations in-situ.

En étant recrutée à l'IFSTTAR (ex LCPC), les conditions institutionnelles étaient donc réunies dès 2000 pour un développement possible de travaux sur les sols urbains croisant expérimentation et modélisation.

## **Présentation de la structure du manuscrit**

Mon manuscrit se présente en 4 chapitres qui regroupent à la fois la partie 'Bilan' de mon activité et la partie 'Perspectives de recherche', après une introduction sur la contextualisation et un état de l'art. Le premier chapitre concerne le volet « administration » de la recherche, les autres chapitres sont plus scientifiques. J'attire l'attention sur le fait que j'ai effectué des choix dans la présentation de mes travaux, en ne conservant que les résultats portant sur l'assainissement pluvial et sur la caractérisation des sols urbains et leur prise en compte dans l'aménagement durable. Mes travaux dans le domaine de la réutilisation de sous-produits en structure routière (projets CREED, ECLAIR), sur l'impact environnemental d'une ancienne décharge municipale sur Nantes, sur les eaux usées (collaboration avec F. Larrarte LEE) et sur le cuivre dans les sols viticoles (projets RS2E et POLLUSOLS)<sup>7</sup> ne sont pas présentés dans les chapitres de ce manuscrit mais les productions correspondantes figurent dans les annexes.

Les chapitres de ce manuscrit se déclinent de la façon suivante :

- Chapitre 1 - Du transfert de colloïdes en milieu poreux modèle à l'interdisciplinarité de l'IRSTV – Parcours scientifique couplé à l'animation et la structuration de la recherche : j'y retrace mon parcours scientifique et je présente mes activités de structuration et d'animation de la recherche, auxquelles je me suis largement consacrée ces 10 dernières années, face aux besoins avérés au niveau du LEE et dans la communauté universitaire régionale (Pays de Loire), et dernièrement par le co-pilotage d'une mission d'expertise nationale sur les sols ;
- Chapitre 2 - Caractérisation de matrices complexes en gestion des eaux pluviales : cette partie fait le point sur les connaissances nouvelles que j'ai acquises sur la caractérisation des matrices complexes (eau de ruissellement/sédiment de l'assainissement/sol urbain) et explicite mes perspectives de recherche sur les nanoparticules en assainissement pluvial ;

---

<sup>7</sup> RS2E Projet Réseau de Suivi et de Surveillance Environnemental de l'Observatoire des Sciences de l'Univers Nantes Angers – POLLUSOLS Projet Pollution diffuse des sols



- Chapitre 3 - Transfert de polluants dans les sols des environnements routiers - Expérimentation en laboratoire et modélisation : je reviens dans ce chapitre sur les résultats principaux que j'ai acquis sur la compréhension et la modélisation des transferts de polluants dans les environnements routiers et urbains, avec un focus particulier sur le transfert colloïdal et la prise en compte des hétérogénéités structurales ; mes perspectives portent sur la modélisation des transferts réactifs et le transfert de nanoparticules en milieu poreux hétérogène ;
- Chapitre 4 - Sols urbains et transition vers des Villes durables : ce chapitre porte sur mes activités d'ouverture des dernières années qui s'ancrent dans l'IRSTV. Elles sont en cours et un sujet prospectif sur la perception des sols par les habitants dans les projets urbains est présenté.

Pour finir, j'avais eu l'opportunité en 1993 de rencontrer le Professeur de biologie Claude VILLENEUVE de l'Université de Chicoutimi, dans le cadre d'une Ecole d'été sur la protection de l'environnement et le développement durable, organisé par l'Office Franco-Québécois pour la Jeunesse. Cette personnalité pionnière et atypique sur l'enseignement et la recherche sur le Développement Durable m'a assurément marqué dans mon parcours. Dans ses propos il n'oublie jamais l'équilibre à trouver entre les trois piliers du DD. Claude Villeneuve rappelle que «La raison d'être du développement durable est d'abord de répondre aux besoins humains. Tant que tu n'auras pas satisfait ces besoins de base, le reste ne peut pas se faire. Mais ces besoins sont par définition infinis, ce qui oblige l'adoption d'un cadre éthique pour répondre aux besoins dans le respect des capacités de support des écosystèmes et de la façon la plus juste et équitable possible. Dans ce cadre, l'économie continue d'occuper une place centrale, pas en tant qu'objectif, mais en tant qu'outil». Il a développé dernièrement des outils mis à la disposition des pays pour accélérer la mise en oeuvre du programme 2030 des Objectifs de développement durable (ODD) : une fiche de gouvernance de développement durable et une grille d'analyse.

# CHAPITRE 1 – DU TRANSFERT DE COLLOÏDES EN MILIEU POREUX MODELE A L'INTERDISCIPLINARITE DE L'IRSTV – PARCOURS SCIENTIFIQUE COUPLE A L'ANIMATION ET LA STRUCTURATION DE LA RECHERCHE

## Introduction

Mes activités de recherche se situent dans le domaine des géosciences, au croisement de la géochimie environnementale (caractérisation des eaux, des sols, des matériaux), de la physico-chimie des surfaces (observation des surfaces et processus aux interfaces) et des transferts réactifs dans les milieux poreux (méthodes et outils du génie des procédés). Mon parcours de recherche, initié en 1990, m'a permis un approfondissement scientifique sur la thématique des transferts réactifs appliqués à une diversité de milieux anthropisés, au sein d'une communauté scientifique intégrant depuis quelques années des chercheurs en SHS. Ce parcours est marqué par une mobilité thématique et institutionnelle forte en 2000 lors de mon recrutement à l'IFSTTAR (ex-LCPC) à la Division Eau et Environnement, ce recrutement me faisant passer du domaine du stockage des déchets radioactifs à celui de l'environnement routier.

Après quelques années de développement de sujets nouveaux dans mon équipe d'accueil et d'implication active dans le réseau scientifique et technique du Ministère de l'Équipement (intégré dans le Ministère de la Transition Ecologique et Solidaire), j'ai pris l'initiative de constituer un groupe de recherche sur les sols urbains au sein de l'IRSTV. Cette action a été le point de départ pour élargir, aux sols urbains les activités de mon équipe d'accueil, jusque là cantonnées au domaine routier, répondant en cela à des besoins émergents de recherche liés à des questions opérationnelles en aménagement.

Dans un contexte institutionnel mouvant et évolutif, j'ai ensuite contribué aux actions de structuration de la recherche sur les sols au niveau régional. Un consortium sur la pollution diffuse des sols a été constitué autour du projet Pollusols (coordination Observatoire des Sciences de l'Univers Nantais OSUNA – T. Lebeau). Il a maintenant la volonté d'apporter son dynamisme et son expertise sur le continuum terre-mer de façon complémentaire à la communauté nationale des sols urbains. Des liens deux à deux solides, et souvent anciens, existent entre certaines équipes nationales spécialisées sur les sols urbains (ex. EPhor Angers- L.S.E Nancy), mais nous devons maintenant travailler, avec l'appui d'organismes, tel que l'ADEME, et du Réseau National d'Expertise sur les Sols (RNEST), à mieux structurer notre communauté.

Parallèlement, la recherche sur les sols urbains ne saurait aujourd'hui être dissociée des actions de recherche sur l'eau et la végétation en ville, et plus largement sur l'environnement urbain, afin d'aider les collectivités et l'Etat à mettre en œuvre les nécessaires et urgentes adaptations pour faire face aux enjeux du changement climatique. Dans cet objectif, je m'emploie actuellement à la direction de l'IRSTV, avec l'aide du Directoire, à renforcer cette fédération de recherche du CNRS pour en faire un point d'ancrage de la recherche interdisciplinaire sur les environnements urbains. La proximité très forte de l'IRSTV avec l'OSUNA contribue et contribuera à l'avenir à cet objectif.

Ces différentes étapes de ma contribution à l'animation et à la structuration de la recherche sur les sols urbains, en tant que coordinatrice ou participante au pilotage sont présentées dans la suite de ce chapitre d'une façon chronologique, qui va de pair avec l'élargissement du cercle de mes collaborations, du niveau de l'organisme (Laboratoire Centrale des Ponts et Chaussées (LCPC) et Réseau Scientifique et Technique (RST) du Ministère de l'Équipement avant 2011 (IFSTTAR – CEREMA (Centre d'études et d'expertise sur les risques, l'environnement, la mobilité et l'aménagement) aujourd'hui) au niveau international.

Des renvois sont proposés vers des chapitres scientifiques sur une sélection de sujets de recherche qui constituent le cœur de mon activité. Bilan et perspectives sont traités conjointement.

### **Appréhension naturaliste de l'environnement et méthodes du génie des procédés – Applications au stockage de déchets nucléaires et au transfert de polluants organiques (1991 – 2000)**

Mes travaux de recherche (doctorat, post-doctorat) et de R&D à l'ANDRA<sup>8</sup> (1991-2000) ont porté sur les **processus de transfert de polluants dans les milieux poreux et leur modélisation**, avec une application au stockage des déchets radioactifs (**colloïdes, radioéléments**) (programme européen MIRAGE (projet sur le développement d'un modèle conceptuel de propagation de radiocolloïdes dans la géosphère), sites de stockage de Bures/Marcoule) [RAPP5, ACTI1, RAPP8] et aux sites et sols pollués (projet européen sur la mesure et la modélisation de la mobilité des **composés organiques volatils (COV)** dans les sols et les eaux souterraines en vue d'une évaluation des risques dans le contexte des friches industrielles) [RAPP6 et 7]. Ces activités ont eu pour cadre le LSGC ((UPR 6811 CNRS-ENSIC devenu LRPG)<sup>9</sup> et l'ANDRA et m'ont permis de m'insérer dans la communauté nationale en génie des procédés (GFGP), puis dans la communauté nationale et européenne de la gestion des déchets radioactifs (CEA, IRSN, ANDRA).

La période de 5 ans que j'ai passée au LSGC (1991-1996) m'a permis d'acquérir des compétences en génie des procédés : expérimentation sur colonne chromatographique de laboratoire, physicochimie des matériaux, caractérisation des suspensions colloïdales, analyse de solutions aqueuses et de composés organiques volatils (COV), modélisation des transferts réactifs de particules et de COV. Pendant mes missions à l'ANDRA pendant 3 ans ½, j'ai produit plusieurs rapports de recherche sur le transfert de radioéléments : modélisation d'isothermes d'adsorption à l'aide d'une approche multisite d'échange d'ions, validation d'un modèle de diffusion de solutés dans une formation argileuse, état de l'art sur les codes couplés hydrodynamique et géochimie, simulation à long terme du stockage de déchets radioactifs par

---

<sup>8</sup> Période à l'ANDRA (1996-2000) au sein des équipes « matériaux » et « hydrogéologie-géochimie », et en lien avec le service de gestion des codes de calcul, sous la direction de Scott Altmann, en collaboration avec Etienne Tevissen, sur le stockage en couche géologique profonde de déchets nucléaires à longue vie radioactive

<sup>9</sup> Groupe « Génie des séparations en milieu poreux » du LSGC, dirigé par Michel Sardin et en collaboration avec Marie-Odile Simmonot

modèle diffusif [ACTI1]. J'ai également assuré la coordination d'un projet de recherche ANDRA - CEA Grenoble et celle du montage d'un projet européen dans le cadre du FP7.

## **Développement de la thématique du transfert réactif de métaux trace dans les sols des environnements routiers et en gestion des eaux pluviales**

### **Historique de la recherche sur la pollution des eaux et des sols à la Division Eau du LCPC avant 2000**

L'eau est une ressource naturelle qui n'a jamais été négligée par les Laboratoires des Ponts et Chaussées, tant d'un point de vue qualitatif que quantitatif. La création en 1971 d'un inventaire national du degré de pollution des eaux superficielles conduit le LCPC en 1973 à lancer des études sur la qualité des eaux des canaux (exemple de référence : Marchandise P., Robbe D., Qualité des eaux superficielles : l'eau, les matières en suspension, les sédiments, BLPC n°96, 1978, pp.49-61). La division Eau du LCPC conduit ensuite des études sur les eaux urbaines (équipe de M. Lagret), avec une attention particulière sur les eaux résiduaires (eaux en STEP, eaux des réseaux unitaires et séparatifs) et les eaux superficielles impactées par les activités humaines (eaux de ruissellement sur les infrastructures, cours d'eau, plans d'eau, ouvrages de gestion des eaux pluviales). La caractérisation des eaux a été progressivement associée à celle des sédiments présents dans les réseaux et ouvrages de traitement des eaux pluviales puis à la caractérisation de la mobilité des polluants et la quantification des transferts.

Entre 1970 et 2000, différents axes de recherche sont développés. Le premier portait sur le développement de méthodes analytiques pour doser les éléments trace métalliques (ETM) et le carbone organique total dans les eaux, les boues et les sédiments des réseaux hydrologiques (naturels ou anthropiques) et les ouvrages de gestion des eaux pluviales<sup>10</sup>. Deux productions remarquables peuvent être citées : une grande campagne, unique en son genre, de caractérisation de la qualité des eaux de ruissellement des aéroports français (1995-1998) et la parution d'un ouvrage de synthèse en 2000, intégrant les travaux de thèse de C. Pagotto<sup>11</sup> (1998). Les premières études sur les déchets et sous-produits industriels ont démarré en 1986, d'abord sur des boues d'épandage (avec l'INRA), puis sur des déchets de décharges d'ordures ménagères et des MIOM et laitiers (2000). L'étude de la mobilité des éléments trace démarre au milieu des années 80 sur les sédiments urbains à l'aide de tests normalisés de lixiviation et percolation et par extractions simples ou séquentielles. Une étude sur la complexation des métaux par la matière organique dans les boues de STEP est également menée (1989). La mobilité des métaux dans les sols de bord de route et sédiments de

---

<sup>10</sup> Le développement de méthodes d'analyses se poursuit aujourd'hui par la mise au point des techniques pour l'analyse des platinoïdes et des nanoparticules en ICP-MS (mode Single Particle pour les NPs)

<sup>11</sup> Thèse de Christelle Pagotto soutenue en 1999 - Etude sur l'émission et le transfert dans les eaux et les sols des éléments traces métalliques et des hydrocarbures en domaine routier

l'assainissement pluvial est par la suite étudiée à l'aide d'isothermes d'adsorption en batch et en colonne de laboratoire (thèses de C. Pagotto, C. Delmas<sup>12</sup>).

Pour aller vers une évaluation plus pertinente des impacts environnementaux des matériaux contaminés ou évaluer l'écocompatibilité de l'usage de sous-produits en structure routière, il est apparu alors nécessaire de développer des travaux sur les transferts réactifs, couplant processus hydrodynamiques et d'interaction polluants/surfaces solides. A partir de 1995, l'utilisation de certains codes (LEACHM, Hydrogeochem)<sup>13</sup> par rapport au contexte routier, est évalué puis deux thèses sont conduites (1997 – 2001)<sup>14</sup>., avec une modélisation d'expériences sur système modèle réalisée à l'aide du code de calcul Impact développé au LSGC et utilisé lors de mes travaux à l'ANDRA.

Au sein du réseau des LPC, l'équipe avait développé des relations fortes avec les équipes de Clermont Ferrand, pour la partie «chimie des eaux», et avec le Laboratoire des Sciences de l'Environnement de l'ENTPE pour la caractérisation et le début des travaux sur les transferts. Très peu de collaborations existaient avec le milieu universitaire local ou national ou de façon très sporadique sur projet. En effet, en tant qu'institut rattaché au Ministère de l'Equipement et tête de réseau des Centres d'Etudes Techniques de l'Equipement (CETE devenu CEREMA), le LCPC bénéficiait encore en 2000 de financements internes conséquents permettant aux chercheurs de travailler dans le cercle des équipes de recherche du réseau scientifique et technique de l'équipement (RST), ces équipes possédant une expertise spécifique et unique au niveau national sur les environnements routiers.

Au niveau européen, des collaborations étaient en cours en 2000 sur le projet POLMIT<sup>15</sup> (Pollution des eaux en milieu routier) et sur la gestion du phosphore. Un projet sur un outil de gestion multi-critères sur les eaux pluviales a suivi puis malgré plusieurs tentatives, l'équipe sur les sols n'a pu participer à des projets européens avant que je ne participe à une action COST en 2015.

### **Un projet de recherche sur le transfert réactif des métaux trace en environnement routier mais une nécessaire caractérisation plus approfondie des matrices eaux et sols**

C'est dans ce contexte que j'ai été recrutée fin 2000 comme chargée de recherche du ministère de l'équipement pour développer des activités sur les **transferts de polluants dans les sols des environnements routiers**, dans le contexte de l'évaluation des impacts environnementaux liés aux infrastructures routières, incluant les ouvrages d'assainissement des eaux de ruissellement. J'ai intégré la

---

<sup>12</sup> Thèse de C. Delmas-Gadras soutenue en 2000 - Influence des conditions physico-chimiques sur la mobilité du plomb et du zinc dans un sol et un sédiment en domaine routier

<sup>14</sup> Thèse de L. Marcos soutenue en 2001 - Etude expérimentale et modélisation du transfert du zinc et du plomb dans des milieux sableux modèles

<sup>15</sup> POLMIT Pollution of Groundwater and soil by Road and Traffic sources: dispersal mechanisms, pathways and mitigation measures (1997 à 1999)

division Eau du LCPC (devenue laboratoire Eau et Environnement (LEE) de l'IFSTTAR en 2011)<sup>16</sup>, dans la section « Caractérisation et transfert de polluants » dirigée par Michel Legret.

Cette deuxième phase de mon parcours m'a donc conduit à reprendre la thématique initiée par Michel Legret en mettant en œuvre les méthodologies et l'approche de modélisation issues du génie des procédés que je maîtrisais, mais sur des systèmes complexes nouveaux pour moi : eaux de ruissellement urbaines, sols de bord de route, sédiments d'ouvrage de gestion des eaux pluviales, sous-produits industriels. Ce faisant je me suis formée sur la chimie et la réactivité des **éléments trace métalliques** dans les matrices environnementales, et dans une moindre mesure, sur les **hydrocarbures aromatiques polycycliques** (HAP). Il m'est cependant rapidement apparu que l'accès à la représentation de ces systèmes complexes pour envisager de les modéliser ne pouvait se faire sans acquérir plus de connaissances que celles que nous avions sur les ETM dans les eaux et les sols des environnements routiers et sur leur spéciation par fractionnement opérationnel. En effet, comment modéliser la composition chimique des eaux de ruissellement sans avoir de données sur les éléments majeurs dans les eaux ? Que représentait la coupure opérationnelle à 0,45µm par rapport aux particules présentes dans les eaux et à la spéciation des métaux trace ? Comment représenter l'assemblage des phases solides (minérales et organiques) dans les modèles de transfert réactif ? Ces questionnements ont donc guidé les investigations que j'ai menées par la suite en collaboration avec mes collègues du LEE et du RST de l'Equipement.

Vis-à-vis de ces questions, j'ai tout d'abord apporté un **regard nouveau sur la spéciation physique des ETM** dans les eaux de ruissellement. En effet, la pratique opérationnelle de fractionnement physique des substances présentes dans les eaux reposait sur une seule coupure à 0,45 µm afin de quantifier une fraction dissoute et une fraction particulaire des ETM. Sur la base de mes travaux antérieurs sur les substances colloïdales et leur devenir, j'ai introduit la **notion de colloïdes et de continuum particulaire dans les eaux de ruissellement urbaines**, de la particule à vitesse de sédimentation rapide à la nanoparticule. Les travaux sur ce sujet étant rares en 2000<sup>17</sup>, et toujours actuellement d'ailleurs (3 références en 2018 sur les nanoparticules dans les eaux de ruissellement), j'ai développé différents travaux sur la fraction colloïdale dans les eaux de ruissellement en testant plusieurs méthodes de fractionnement et de caractérisation en imagerie et microanalyses.

Dans le RST, quelques chercheurs du Laboratoire des Sciences de l'Environnement (ENTPE) (devenu LEHNA) (Cécile Delolme, Claude Durrieu) étaient particulièrement sensibles également à cette question des particules dans les eaux urbaines et à leur transfert, leurs travaux portant sur les transferts facilités par les bactéries. Je me suis donc rapprochée de cette équipe, qui avait des collaborations historiques avec le

---

<sup>16</sup> L'équipe a été dirigée par Georges Raimbault jusqu'en 2003 puis par Hervé Andrieu de 2003 à 2009, Eric Gaume (2010), Claude Joannis (2011-2016) et enfin Véronique Ruban à partir de 2016.

<sup>17</sup> Grout H, Wiesner MR and Bottero JY (1999). Analysis of colloidal phases in urban stormwater runoff. *Environmental Science and Technology*, 33(6), 831-839.

LEE et nous avons entretenu des échanges réguliers au travers de suivi/jury de thèse, projets et publications communes.

Ces échanges ont été particulièrement productifs sur la caractérisation des sédiments de l'assainissement pluvial (nature des phases minérales et organiques, texture, spéciation des métaux trace et des HAP...). Les thèses de Anne-Laure Badin (ENTPE) et la thèse de Amelène El Mufleh (dirigée par Véronique Ruban et que j'ai co-encadrée) ont apporté des éléments majeurs dans notre connaissance des systèmes d'assainissement pluvial, tout en nous permettant de tester de nouvelles méthodologies en collaboration avec des équipes universitaires (Univ. Aix Marseille, Poitiers).

Je renvoie le lecteur au **Chapitre 2** de ce manuscrit sur la « **Caractérisation des matrices complexes en gestion des eaux pluviales** », dans lequel les principaux résultats acquis et les perspectives sont présentés en deux parties : 1. **Colloïdes et métaux trace dans les eaux de ruissellement routières et les poussières de chaussée** ; 2. **Apport des techniques couplées pour la caractérisation des sédiments de l'assainissement pluvial.**

### **Prendre en compte le transfert colloïdal des métaux trace et HAP mais aussi l'hétérogénéité des sols dans la gestion des eaux pluviales**

Au regard des caractéristiques des eaux de ruissellement et des matrices de l'environnement routier, c'est également ma compétence sur les colloïdes et leur transfert que j'ai exploitée pour aller vers une meilleure caractérisation des **processus de mobilisation/rétention des métaux trace issus du trafic routier facilités par la fraction particulaire colloïdale**. L'approche utilisée repose sur une expérimentation en laboratoire couplée à une analyse des processus et la mise en œuvre d'une modélisation de transfert réactif ou par isothermes. J'ai d'abord travaillé sur milieu poreux homogène (sols de bord de route et sédiments tamisés et mis en place en colonne de laboratoire de type chromatographie linéaire) avec le concours de B. Durin et de K. Hanna (Annexe C.2). Les projets menés sur la thématique du transfert m'ont permis de développer des collaborations ponctuelles avec quelques laboratoires du CNRS sur Nancy et Bordeaux (LIEC, EA Géoenvironnement et ressources).

Mes travaux se sont orientés vers la prise en compte de l'hétérogénéité des sols sur les transferts de solutés et de colloïdes sur système modèle, avec l'arrivée en 2002 dans l'équipe de Laurent Lassabatere, spécialisé sur les écoulements en milieu poreux hétérogène. En effet, les matériaux des environnements routiers présentent non seulement une hétérogénéité forte en termes de nature de phases porteuses mais également en terme de structure (macroporosité, double porosité...).

En matière d'outils de simulation des transferts de polluants non réactifs et réactifs, la division Eau disposait d'une version du code de calcul IMPACT utilisé dans le cadre de la thèse de L. Marcos. Cet outil était performant pour interpréter les expériences réalisées sur des systèmes modèles ou des systèmes

complexes simplifiés. Mais la nécessité de devoir décrire des systèmes plus complexes (pollution multi-métalliques, assemblages minéralogiques complexes associés à des phases organiques) m'a conduit à utiliser des outils plus adaptés à la prise en compte d'assemblages minéralogiques et à leur réactivité (et aussi interfacés) : le code de géochimie CHESS, développé à l'Ecole des Mines de Paris-CIG et le code PHREEQC, développé par Parkhurst (USA) et Appelo (Pays-Bas) couplant le transport unidirectionnel et la géochimie.

Le code Hydrus<sup>18</sup> a ensuite été largement utilisé dans l'équipe, sous la houlette de Laurent Lassabatere, pour modéliser les transferts d'eau en milieu poreux homogène et hétérogène (milieu à double porosité, introduction d'une stratification, d'un macropore). Les interactions entre solutés réactifs ou particules avec la matrice solide étant alors décrits à l'aide d'isothermes de type Langmuir/Freundlich ou de cinétiques d'adsorption. Les travaux sur les écoulements d'eau et le transfert de colloïdes dans les milieux hétérogènes (hétérogénéité structurale par la présence de macropore ou de strate) ont commencé à être développés dans l'équipe lors de la thèse de E. Lamy<sup>19</sup>, se sont poursuivis dans le cadre des travaux de thèse de S. Batany<sup>20</sup> (auxquels j'ai été associée pour l'expérimentation) et depuis l'été 2017, avec la thèse de J. Raimbault (cf. Chapitres 2 et 3 Perspectives de recherche).

J'ai également eu l'opportunité de me confronter à la modélisation des transferts d'eau et de solutés à une échelle proche de celle d'un petit bassin versant urbain dans le cadre de la thèse de Y. Lotram<sup>21</sup>. A l'échelle d'une ancienne décharge nantaise, le code MT3DMS interfacé avec Modflow 2000 sous Visual Modflow 4.2 (Schlumberger Water Services, 2002) a permis de simuler l'évolution du niveau de la nappe alluviale sous la décharge et de développer une première approche pour simuler le panache de chlorures de la décharge jusqu'à la Loire [ACLN6 et 5, COM15].

La dynamique de recherche sur la thématique des transferts couplés eau-polluants est bien installée maintenant, avec deux chercheurs, Pierre-Emmanuel Peyneau formé à l'ENPC et arrivé en 2010 au LEE et moi-même. Un troisième chercheur spécialisé en Imagerie à Résonance Magnétique arrivera à l'automne dans l'équipe. Nous travaillons de façon très rapprochée sur des encadrements de thèse et des projets, avec L. Lassabatere, reparti en 2010 dans son laboratoire d'origine (LEHNA-ENTPE). Nous continuons à développer une expérimentation fine sur milieu hétérogène en colonne de laboratoire, du suivi des écoulements et de transfert de solutés et de polluants sur pilote (thèse CSTB de A. Fardel<sup>22</sup>), les données

---

<sup>18</sup> Šimůnek J, van Genuchten MT, Šejna M (2006) The HYDRUS Software Package for Simulating Two- and Three-Dimensional Movement of Water, Heat, and Multiple Solutes in Variably-Saturated Media, Technical Manual. Version 1.0. PC Progress, Prague, Czech Republic.

<sup>19</sup> Thèse de E. Lamy (2008) - Influence de la stratification sur l'écoulement et le transfert colloïdal en milieu poreux modèle représentatif des sols urbains

<sup>20</sup> Thèse de S. Batany (2016) - Influence d'un macropore sur l'écoulement et le transport de solutés en milieu poreux : expérimentations sur sol modèle macroporé et simulations numériques + [ACL24]

<sup>21</sup> Thèse de Y. Lotram (2009-2012) Développement d'une méthodologie d'étude du fonctionnement hydrogéochimique d'une ancienne décharge d'ordures ménagères – ED SPIGA Nantes

<sup>22</sup> Comité de suivi de thèse Alexandre Fardel (CSTB) (2015 – 2018) Fonctionnement hydraulique et propriétés épuratoires de techniques alternatives de gestion des eaux pluviales – Cas des noues



expérimentales acquises servant de base à la validation de modèles numériques de transfert d'eau et de solutés. Dans les projets et thèses sur la thématique « Transferts réactifs » du LEE, j'assure le pilotage scientifique et l'encadrement du volet « réactivité des polluants avec les phases solides » (expérimentation en laboratoire, spéciation des polluants, modèles d'interactions).

Le lecteur trouvera dans le **Chapitre 3 « Transferts de polluants dans les sols des environnements routiers – Expérimentation en laboratoire et modélisation »** quelques illustrations des travaux réalisés sur la mobilisation en conditions dynamiques de métaux trace et hydrocarbures aromatiques polycycliques à partir de sols et sédiments des environnements anthropisés urbains. Une attention particulière est portée au transfert facilité par les colloïdes. Des exemples de modélisation sont présentés ainsi que leurs limites actuelles.

### **Renforcement des relations avec les équipes du Réseau Scientifique et Technique du MTES (ex MEDDE)**

J'ai développé la thématique des transferts réactifs entre 2003 et 2013 en m'appuyant sur des financements obtenus 1) sur des financements internes du LCPC en collaboration avec des chercheurs du CEREMA (ex-CETE) spécialistes des sols (Philippe Branchu, Laurent Eisenlohr, Catherine Neel, Céline Hébrard) et 2) sur des financements externes (projet EMMAUS EC2CO, projet « Filtres plantés » Agence de l'Eau, projet Polesur<sup>23</sup> Région des Pays de Loire cf annexe F).

Afin de rapprocher les 4 équipes du RST aux actions plus spécifiquement dédiées aux sols anthropisés, j'ai proposé et coordonné avec Philippe Branchu un **projet de recherche LCPC entre 2008 et 2012**, intitulé « **Préservation des sols en milieu urbain et routier : sources, infiltration et transfert de polluants** » s'appuyant sur le projet POLESUR et la thèse de Y. Lotram financée par le LCPC en complément.

Cette action s'est inscrite dans la même temporalité que la création de différents groupes de travail sur l'environnement urbain entre les établissements du Ministère de l'Ecologie et du Développement Durable (CETE, SETRA, CERTU, ENTPE, IFSTTAR), auxquels j'ai participé: RST Eau, RST Déchets, RST Sols. Animé par Anne-Laure Badin, ingénieur et docteur de l'ENTPE, le groupe « Sols » a fonctionné de 2011 à 2014, avec une dernière journée d'échange sur un thème précurseur de l'orientation actuelle d'une partie de mes travaux (cf. projet MUSE Chapitre 4), « **Quels besoins, quelles connaissances nécessaires sur la qualité des sols en matière d'urbanisme et d'évaluation environnementale, quels enjeux scientifiques?** ».

---

<sup>23</sup> POLESUR Pollution des eaux et des sols en milieu urbain

## **Création d'une communauté de recherche sur les sols urbains en région des Pays de Loire en 2007**

### **Création de l'axe "Sols urbains" au sein de l'IRSTV**

Les années 2000, grâce notamment au Sommet de Johannesburg, marquent une montée exponentielle des préoccupations liées au changement climatique, à ses conséquences (ex. crise de la biodiversité) et à la capacité des villes à s'adapter aux changements globaux attendus. Localement, sur Nantes, la création de la FR 'Physique et image de la Ville' par Gérard Hégron en 2002 (devenue IRSTV en 2006), dans lequel le LCPC est membre fondateur, met la Ville au cœur des sujets de recherche des chercheurs en hydrologie du LEE. Parallèlement, le monde de la recherche entrait dans une mutation profonde avec la diminution nette des moyens propres d'organismes, tel que le LCPC à partir de 2003.

L'évolution des problématiques sociétales et les modifications profondes du monde de la recherche m'ont conduit à élargir le champ d'application de mes recherches, du domaine routier au domaine urbain, et à établir des collaborations locales, qui n'existaient pas alors de façon structurée pour aller rapidement vers une proposition de structuration de la communauté universitaire locale travaillant sur les sols urbains.

L'IRSTV offrait un cadre structurant, local et interdisciplinaire, pour accueillir une thématique en émergence sur les sols urbains. Cet objectif a guidé la proposition de **projet sur la pollution des sols, POLESUR**, que j'ai faite en réponse à l'appel à projet « Paris scientifiques » de la Région des Pays de Loire en **2007**. Un consortium de 7 équipes sur Nantes et Angers a été constitué (LEE, GeM - Ecole Centrale, Service Régional BRGM, GEPEA IMT A, CSTB, EPhor, LPGN). La dynamique établie et le bon niveau de production ont permis de créer en **2011 l'axe 'Sols urbains'** à l'IRSTV, assurant ainsi une pérennité aux actions du consortium Polesur. J'ai assuré l'**animation de l'axe de 2011 à 2016**, avec C. Le Guern du BRGM. Cet axe regroupe une dizaine de chercheurs et jusque 8 doctorants. Depuis janvier 2017, Patrice Cannavo (AgroCampusOuest - EPhor) a repris la co-animation de l'axe.

Les thèmes de recherche de l'axe 'Sols urbains' sont les suivants : 1) la caractérisation physico-chimique des sols urbains et de leur pollution ; 2) les transferts de polluants dans le système eau-sol-plantes ; 3) la gestion des sols urbains, avec des applications initialement sur la gestion des eaux pluviales et le suivi environnemental de l'ancienne décharge de la Prairie de Mauves (projet Polesur), étendus par la suite à la gestion des sols viticoles (projet RS2E) et des sols de jardins associatifs (projet JASSUR<sup>24</sup>) et à la reconstruction de sols fertiles (projet SITERRE).

Les sites expérimentaux de l'axe Sols urbains (décharge municipale nantaise de la Prairie de Mauves, bassin de rétention-infiltration des eaux de ruissellement du pont de Cheviré sur Nantes, jardin associatif des

---

<sup>24</sup> JASSUR Projet de recherche « Jardins Associatifs Urbains et villes durables : pratiques, fonctions et risques » (2013-2015) en réponse à l'AAP de l'ANR Villes et Bâtiments Durables

Eglantiers) ont un intérêt fort en terme de **suivi sur le long terme de l'impact des pollutions anthropiques et géogènes (résidus médicamenteux, pesticides, plomb, cuivre)**. Ils sont rattachés d'une part à l'ONEVU (Observatoire Nantais des Environnements Urbains), créé au sein de l'IRSTV par V. Ruban et au réseau SAFIR (site atelier français pour l'innovation et la recherche pour la gestion des sols mis en place par l'ADEME).

### **Implication de l'axe Sols urbains dans le projet "Pollution diffuse des sols" de l'OSUNA**

En 2011, le directeur de l'OSUNA (Patrick Launeau) propose un axe intitulé « Etat de pollution des sols des bassins versants proches de la Loire » dans le projet RS2E (2012-2016)<sup>25</sup>, soutenu par la Région des Pays de Loire. Afin de rattacher les activités sur la pollution des sols urbains à un ensemble plus large, j'ai proposé, avec C. Le Guern, d'intégrer le site de la Prairie de Mauves et la problématique de transfert des substances émergentes dans le projet RS2. J'ai aussi introduit un sujet sur le transfert du cuivre dans les sols viticoles des bassins versants proches de la Loire (collaboration avec C. Le Guern et T. Lebeau).

J'ai ensuite participé au groupe de travail qui a monté le projet [POLLUSOLS](#) (2015-2020) sur la pollution diffuse des sols, actuellement soutenu par la Région des Pays de Loire. L'ambition que nous avons affichée est la constitution d'un pôle de référence régional sur cette thématique, basé sur les spécificités du territoire : pollution diffuse et continuum terre-mer. Le projet est porté par l'OSUNA, sous la coordination de Thierry Lebeau (Université de Nantes). Les chercheurs de l'axe Sols urbains de l'IRSTV travaillant sur la pollution des sols sont partie prenante de ce projet structurant. Il intègre aussi la communauté travaillant sur la pollution des sols miniers (IMT Atlantique Subatech et LEMNA), des sols viticoles (LPG) et les sédiments estuariens (IFREMER, LPG Angers), sols que l'on rencontre tout le long du continuum terre-mer, de la région des Pays de Loire. Une des spécificités du projet est de soutenir le rapprochement entre sciences du sol et sciences humaines et sociales, à l'image de ce qui avait été fait dans le projet JASSUR (projet IRSTV).

### **Place du Laboratoire Eau et Environnement dans la structuration locale**

En ce qui concerne le Laboratoire Eau et Environnement de l'IFSTTAR, parallèlement à l'animation de l'axe 'sols urbains' à l'IRSTV, j'ai repris à la suite de Michel Legret l'animation de l'axe «Sols urbains et matériaux recyclés» du LEE de 2013 à 2017, avec une co-animation assurée par mon collègue Pierre-Emmanuel Peyneau. Il était important pour l'avenir de nos activités de les insérer dans le tissu académique local et nous pouvons considérer aujourd'hui que, hormis les activités portant sur des objets très spécifiques à l'IFSTTAR tels que l'environnement routier ou des activités de modélisation sur systèmes modèles, les activités sur les sols urbains du LEE sont intégrés dans la dynamique de l'axe 'Sols urbains' de l'IRSTV, é.

---

<sup>25</sup>: Projet RS2E OSUNA (Pays de la Loire) 2012-2016 « Réseau de Suivi et de Surveillance Environnemental de l'Observatoire des Sciences de l'Univers Nantes Angers »

Cinq chercheurs, 1 ingénieur de recherche et 7 techniciens participent aux activités de l'axe « Sols urbains et matériaux recyclés » du LEE qui comporte deux grandes thématiques : la caractérisation des sols & matériaux et les transferts d'eau et de polluants dans les sols hétérogènes. Nous avons pu développer nos participations aux projets régionaux et nationaux sur la pollution des sols grâce à la petite équipe 'terrain' du LEE rompue aux pratiques d'échantillonnage et aux mesures in-situ (paramètres physico-chimiques, quantification des métaux trace par fluorescence X portable), et à l'appui de notre plate-forme d'analyses environnementales.

En 2015, j'ai commencé à travailler avec P. Cannavo sur la possibilité de créer une équipe de recherche commune (ERC) entre EPHor (Environnement Physique de la plante Horticole - AgroCampus Ouest) et le LEE, les collaborations au sein de l'IRSTV ayant mis en évidence des complémentarités fortes en hydrologie, microclimatologie et sciences des sols entre les 2 équipes. L'intérêt des collègues a été fort et soutenu par nos directions respectives, nous avons abouti en 2017 à la création de l'**ERC VESPA 'Ville Eau Sol Plante Atmosphère'**. Dans cette ERC, un axe thématique est consacré au couplage entre processus de transfert d'eau et de réactivité des contaminants.

## **Montée en puissance de la communauté des sols urbains Nantes- Angers au niveau national et international**

### **Avant 2012 - Les participations individuelles ou par organisme à une communauté d'échange sur les sols urbains nationale et internationale**

En France, l'initiative de la création d'une communauté d'échange pluridisciplinaire sur les sols urbains revient à André Guillaume (Pr. Emérite CNAM). En 1990, il s'initie à l'urbanisme souterrain avec Sabine Barles, ce qui le conduit à organiser et à diriger un GDR puis un GIS-CNRS sur le sol urbain, associant des laboratoires de Génie civil urbain (dont le LCPC), d'archéologie, de pédologie, de mécanique des sols, d'histoire, de 1993 à 2001)<sup>26</sup>. Un ouvrage de synthèse des travaux est édité en 1999 <sup>27</sup>, auquel Michel Legret et Georges Raimbault (LCP) participent.

L'association ECRIN (Echange et Coordination Recherche – Industrie) – et plus particulièrement son club Environnement & Société - organise par la suite une Journée ECRIN de l'Environnement consacrée aux enjeux de l'utilisation des sols (6 février 2003) qui permet de mettre l'accent sur l'importance de leur qualité dans les actions d'aménagement du territoire. Cette manifestation initie la création d'un groupe de travail « Sols urbains et péri-urbains », coordonné par Michel Robert (MEDD, pionnier de la défense des sols, auteur de « Le sol, interface dans l'environnement, ressource pour le développement » en 1996). Un

---

<sup>26</sup> Mathieu Fernandez et André Guillaume, « Entretien avec André Guillaume », e-Phaistos [En ligne], V-1 2016 | 2018, mis en ligne le 21 janvier 2018. URL : <http://journals.openedition.org/ephaistos/1160> ; DOI : 10.4000/ephaistos.1160

<sup>27</sup> Barles S, Breyse D, Guillaume A, Leyval C (dir.), Le Sol urbain, Paris, Economica, 1999

colloque le 7 juin 2005 clôture les travaux du groupe, en partenariat entre le MEDD, l'AFES (M. Robert), SUTMA (W. Burghardt), le GIS Sols Urbains (A. Guillerme) et le GISFI (J.L. Morel). Un ouvrage donnant une vision pluridisciplinaire de la problématique des sols urbains et péri-urbains est produit<sup>28</sup>. Le GT visait aussi à publier un texte de recommandations pour définir la position de la France dans la problématique des sols urbains dans le cadre de la future Directive Cadre sur les sols (en préparation à cette époque et refusée en 2006 par les membres de l'UE). Le manque de financements pour le réseau et le 'coup d'arrêt' sur la Directive relâchent quelque peu les échanges nationaux pluridisciplinaires.

Suite à l'appel à intention EC2CO CNRS « Environnement urbain » de 2009 (coordination H. Andrieu), Jean-Louis Morel organise en septembre 2010 un atelier de rencontre entre 11 équipes de recherche/BE travaillant sur les sols urbains, pour mobiliser la communauté autour d'un ensemble de sujets définis ensemble. Mais cette belle initiative ne connaît pas de suite en tant que telle. Le constat est fait aujourd'hui qu'elle arrivait trop tôt, non pas pour la communauté scientifique et les BE très spécialisés sur le végétal urbain par exemple, mais pour les organismes/collectivités financeurs qui étaient encore trop mobilisés sur des financements thématiques et non pluridisciplinaires. L'urgence climatique et l'émergence de la notion de services systémiques des sols facilement appropriable par les acteurs de terrain depuis quelques années a orienté sensiblement les appels à projets vers l'environnement urbain.

Parallèlement, au niveau international, le groupe de travail SUTMA dédié aux 'Soils of Urban, Industrial, Transport, Mining and Military Areas' de la division 3 (Soil use and management) de l'IUSS – International Union of Soil Sciences- contribue depuis 1998 à rassembler la communauté scientifique internationale sur les sols urbains (organisation d'une conférence tous les 2 ans rassemblant 150 personnes) pour développer toutes les connaissances nécessaires et assurer le retour d'expérience afin de rendre possible une gestion optimisée des sols urbains.

## **Le positionnement dans la communauté de recherche sur les sols dédiés à l'agriculture urbaine – Une entrée par les jardins associatifs**

En 2011, à l'initiative de Christine Aubry, soutenu par Philippe Branchu notamment, ont commencé les premiers échanges au niveau national pour constituer un consortium de recherche sur la thématique des jardins associatifs et présenter un dossier de financement à l'ANR 'Villes et bâtiments durables'. J'ai été invité par P. Branchu à participer aux discussions. Cette initiative a été une précieuse opportunité car dans le même temps, l'axe Sols urbains de l'IRSTV était sollicité, par la Ville de Nantes, par l'intermédiaire de T. Lebeau, sur la question de la contamination de sols de jardins associatifs. **J'ai pu donc proposer que l'IRSTV soit partenaire, avec la Ville de Nantes, du projet JASSUR (ANR 2013-2016), coordonné par Christophe Schwarz (Univ. Lorraine) et Jean-Noël Gonzalez (Univ. Aix Marseille).** Cinq équipes de l'axe

---

<sup>28</sup> *Sous les Pavés, la Terre*, 2009, C. Cheverry et C. Gascuel, Omniscience, 207 p. Chapitre 'Fonctionnement hydrologique des sols urbains' Rodriguez F., **Béchet B.**, Raimbault G., [OS2]

Sols urbains ont été associées à ce projet, dont j'ai assuré la coordination locale. Il a été un **tremplin pour le développement de nos activités sur la pollution des sols en lien avec le jardinage urbain, et plus récemment l'agriculture urbaine** et a contribué à la reconnaissance nationale du consortium Sols nantais.

Ma participation entre 2014 et 2016 à l'action COST « Urban allotment garden in Europe » (TU 1201) m'a permis de valoriser mon expertise sur les sols de jardin et les travaux nantais. Grâce à mon implication dans le réseau européen créé par l'action COST, j'ai été contactée pour participer au **projet de recherche 'FewMeter'** sur le métabolisme des jardins associatifs, dans le cadre de l'appel à projets **SUGI co-financé par le Belmont Forum et le JPI Urban Europe**. L'IRSTV est le partenaire et j'ai entraîné 2 autres collègues dans le projet.

L'expertise que j'ai acquise au cours du projet Jassur et la collaboration réussie avec la Ville de Nantes me place, avec T. Lebeau et C. Le Guern, en position d'interlocuteur scientifique privilégié sur la qualité des sols à Nantes (conseil sur les projets d'aménagement, accès à des terrains pour de l'expérimentation). Ces actions sont réalisées conjointement dans le cadre de l'IRSTV et de l'OSUNA.

### **La caractérisation biophysicochimique des sols urbains pour une gestion optimisée dans le cadre d'un aménagement urbain durable**

Les Ministères de l'agriculture et de la transition écologique, l'ADEME, l'INRA, le CIRAD sont particulièrement engagés dans les actions en faveur de la gestion durable des sols. L'IFSTTAR n'est pas en reste dans son domaine d'expertise sur les recherches sur les sols urbains. La stratégie scientifique à 10 ans de l'IFSTTAR, élaborée en 2012, porte dans les pages consacrées à son défi 3 « Maîtriser les risques naturels et nos impacts environnementaux » une attention particulière aux [sols urbains](#) en pointant l'enjeu de spécifier les fonctions des sols, de les restituer si possible et, à défaut, de proposer des usages selon leur qualité (habitations, espaces publics, jardins, etc.). Par la suite, la démarche de priorisation des thématiques scientifiques menée au sein de l'Ifsttar de 2014 à 2016, souligne à nouveau dans les défis 3 et 4<sup>29</sup> la nécessité de l'acquisition de données sur les pollutions des sols par l'observation et la détection de phénomènes de propagations multi-échelles, pour aller vers un usage des sols raisonné dans la Ville de demain. Les éléments de contexte listés ci-dessus soulignent la nécessité, pour appréhender la prise en compte des sols dans le développement durable des villes de travailler à différentes échelles. L'analyse des sols urbains, la connaissance de leur pédogénèse et la compréhension des processus biogéochimiques et de transfert de substances en leur sein ne peuvent se faire qu'à une échelle allant du laboratoire pour l'étude fine des processus à celle de l'ouvrage. Au contraire, la prise en compte de la qualité et des fonctions des

---

<sup>29</sup> Défi3 Mieux prendre en compte le changement climatique, les risques naturels et les impacts environnementaux et sanitaires en milieu anthropisé. Défi 4 : Penser et aménager les villes et les territoires durables : approches systémiques et multi-échelles

sols dans un objectif de préservation durable des services écosystémiques qu'ils rendent doit se faire à l'échelle de l'aménagement des quartiers ou des villes.

L'axe 'Sols urbains' de l'IRSTV est aussi positionné sur cette thématique depuis trois ans sur sollicitation de l'ADEME. Deux des trois thèses sur les sols urbains financées par l'ADEME sur la période 2016-2018 sont co-dirigées par des chercheurs IRSTV (thèse de B. Sauvaget, co-direction de Cécile Le Guern et thèse de Aurélie Cambou, co-direction de Laure Beaudet). Toutes deux participent au projet SUPRA (AAP ADEME Graine)<sup>30</sup>, complémentaire aux thèses. Parallèlement, l'IRSTV est partenaire du projet MUSE<sup>31</sup>. Tous ces travaux ont une base commune, la définition d'indicateurs de fonctionnalité des sols urbains pour mieux tenir compte de leur potentialité dans les documents d'urbanisme. Il sera important de mettre en regard ces différents projets et de converger vers une dynamique collective sur la question de la préservation des fonctions des sols dans les aménagements de demain. Nous pourrions initier cette action dans le cadre du projet de service national d'observation des environnements urbains, dossier confié à Fabrice Rodriguez sous la responsabilité de l'OSUNA et de l'IRSTV.

Le **Chapitre 4 « Sols urbains et transition vers des Villes durables »** sera consacré à la présentation de quelques résultats et réalisations du projet JASSUR, pour passer ensuite sur une partie 'perspective' sur la prise en compte de la multifonctionnalité des sols dans les solutions fondées sur la nature et dans les documents d'urbanisme autour des projets MUSE, Urbinat et Wise Cities

## **L'IRSTV – Enjeux et stratégie de positionnement dans une métropole en mutation, aux côtés de l'I-Site FUTURE et du LABEX IMU**

### **Création de l'Institut de Recherche en Sciences et Techniques de la Ville (IRSTV)**

L'IRSTV a été créé au 1<sup>er</sup> janvier 2006 sous la forme d'une fédération de recherche du CNRS et d'une structure fédérative du Ministère chargé de la Recherche.

Ses fondations remontent à l'année 1993, période au cours de laquelle les responsables du PIR-Villes du CNRS, qui cherchaient à créer des pôles régionaux destinés à stimuler la recherche interdisciplinaire sur la ville, demandèrent au directeur du CERMA, Jean-Pierre Péneau, professeur à l'Ecole d'Architecture de Nantes (ENSA), d'explorer la possibilité de création d'un tel pôle en région des Pays de la Loire. Un premier schéma de fédération d'équipes de recherche accepté par le PIR en décembre 1993 permit la création de la Fédération de Recherche CNRS "Physique et images de la ville" (FR 73) au 1<sup>er</sup> janvier 1996.

---

<sup>30</sup> Projet SUPRA AAP Graine ADEME 2017 Sols urbains et projets d'aménagement : de l'échantillonnage des sols à l'outil d'aide à la décision d'affectation des sols

<sup>31</sup> Projet MUSE AAP MODEVAL URBA ADEME 2017 - Intégrer la multifonctionnalité des sols dans les documents d'urbanisme

Cette FR, placée en octobre 2000 sous la direction de Gérard Hégron (ENSA détaché au CNRS), a été renouvelée pour quatre ans en 2002 et rattachée au département Sciences pour l'Ingénieur du CNRS (FR 2488). Hervé Andrieu de l'IFSTTAR en assure ensuite la direction entre 2012 et fin 2016. Pendant cette période, l'IRSTV s'installe dans des locaux propres sur le site de l'Ecole Centrale et l'INSU rejoint l'INEE et l'INSHS en tant qu'institut de rattachement secondaire de l'IRSTV.

Préparé dès 2015, le nouveau quinquennal de l'IRSTV (2017-2021) prévoyait que la direction de l'IRSTV soit reprise par Marjorie Musy (ENSA), avec un directoire constitué de 4 personnes représentant les partenaires majeurs de l'IRSTV : I. Calmet (Ecole Centrale de Nantes) ; C. Inard (Univ. La Rochelle), P. Cannavo (AgroCampus Ouest) et moi-même (IFSTTAR). La réussite en juillet 2016 au concours de directeur de recherche du développement durable du Ministère de la Transition Ecologique de Marjorie Musy sur un poste au CEREMA - Direction Territoriale Ouest est venue modifier la gouvernance prévue de l'IRSTV. Le CEREMA, de par ses missions générales et celles prévues pour sa nouvelle DR n'a pas pu répondre favorablement à la demande de M. Musy de consacrer une partie de son temps de travail à la direction de l'IRSTV. L'IFSTTAR étant très impliqué dans l'IRSTV et l'IRSTV portant au sein de l'OSUNA l'axe « Environnement urbain », j'ai posé ma candidature au poste de direction de l'IRSTV, fonction qui m'a été attribuée par le CNRS, après accord des parties, le 1<sup>er</sup> janvier 2017.

## Présentation et missions de l'IRSTV

L'IRSTV est un pôle de recherche fédératif dédié à l'étude interdisciplinaire des environnements urbains et au développement durable des villes, en contribuant à une meilleure maîtrise de l'énergie, des risques et du confort du citoyen et en développant des méthodes et des outils à destination des acteurs de la ville qui contribuent à l'aménagement et à la gestion durable de la ville.

La ville, en tant que système habité, est considérée dans le projet de l'IRSTV, comme un ensemble de 3 grands compartiments (**Figure 4**) : 1) Le construit (génie civil) ; 2) L'humain et les organisations qui en découlent et leurs usages de la ville ; 3) Le milieu, le non construit : l'air, le sol, les eaux, ...



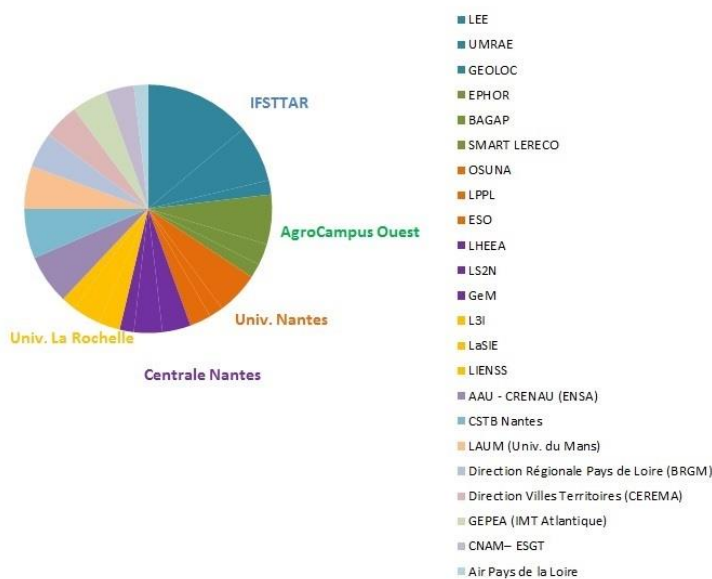
**Figure 4** Représentation schématique de l'écosystème urbain

L'étude de la ville et sa fabrique, si elles sont définies comme objet de recherche en tant que telle, doivent combiner ces dimensions, dans une approche systémique. L'approche globale de la ville, après une période de « leadership » de la France (sociologie urbaine, autour de Henri Lefebvre, Henri Raymond, Michel Leger), s'est morcelée. Le renforcement de cette approche est un enjeu de durabilité du système



aujourd’hui, face à l’urbanisation croissante et à la montée en puissance de la thématique de la Ville intelligente / Smart city, ...Nous devons changer la manière dont la thématique Ville est abordée dans la Recherche et dans la Formation, notamment passer d’un terrain d’application à un objet d’étude en tant que tel, encourager les formations partagées par différents établissements pour contribuer à la pluridisciplinarité des étudiants en parallèle des projets de recherche pluridisciplinaires, contribuer à l’émergence d’un écosystème ligérien sur la Ville non cloisonné.

L’IRSTV mobilise un ensemble de laboratoires, situés en Région des Pays de la Loire majoritairement et en Nouvelle Aquitaine, aux compétences disciplinaires très variées : sciences de l’ingénierie, sciences de l’environnement, sciences humaines et sociales, sciences et techniques de l’information et de la communication. Il compte aujourd’hui 14 établissements partenaires liés par une convention, 23 équipes de recherche et une centaine de personnels de recherche participant aux activités et/ou aux projets de l’IRSTV (chercheurs, enseignants-chercheurs et ITA (**Figure 5**). L’équipe de direction est constituée de I. Calmet (Ecole Centrale de Nantes), C. Inard (Univ. La Rochelle), P. Cannavo (AgroCampus Ouest) et M. Musy (CEREMA) et de M. Douillard (gestionnaire administrative et financière).



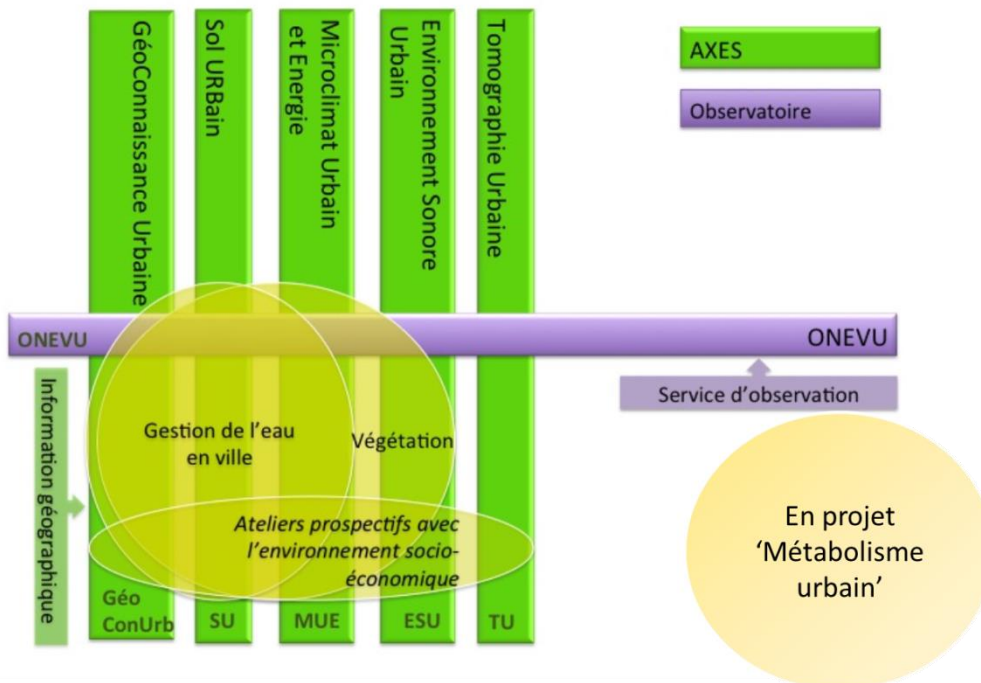
**Figure 5** Répartition en nombre des personnels entre les différents établissements de l’IRSTV (le CNRS n’est pas mentionné mais il est en co-tutelle de 12 équipes de recherche de l’IRSTV)

L’Institut sert une quadruple mission :

- Conduire une **recherche interdisciplinaire** dans le domaine des environnements physiques urbains et de la gestion durable de la ville. Afin de prendre en compte un développement durable du territoire trois démarches spécifiques sont adoptées : 1) une vision multi-échelle de la ville dans ses dimensions spatiale et temporelle ; 2) une modélisation urbaine environnementale intégrée et 3) une approche systémique pour le développement de méthodologies d’évaluation des projets d’aménagement urbain ;
- Coordonner et animer des projets de recherche interdisciplinaire à **l’échelle régionale, nationale et européenne** ;
- Développer des **actions de formation** à la recherche et à finalité professionnelle ;

- Valoriser la recherche à travers des **actions de diffusion** et de création d'activités.

L'IRSTV a entamé son nouveau quinquennal en 2017, avec un projet scientifique évalué très favorablement par l'HCERES en 2016. Ce projet structure l'activité en axes de recherche, 5 axes consolidés et 3 axes en émergence (**Figure 6**).



**Figure 6** Intitulés des axes de recherche de l'IRSTV et structuration globale (extrait du projet scientifique)

Mais si les sujets de recherche avaient été bien définis dans le dossier HCERES, du fait d'un contexte de structuration de la recherche urbaine ayant évolué très rapidement à partir de 2016, la stratégie scientifique de la FR est à repenser et sa feuille de route à préparer. Ce constat a été confirmé par le Comité d'Orientation Stratégique de la FR le 14 février 2017, qui, tout en soulignant l'intérêt de la fédération, et la qualité du travail accompli, m'ont donné pour mission d'élaborer la stratégie de l'Institut pour consolider son identité et sa plus-value et de le positionner l'Institut dans le domaine de la recherche urbaine au niveau national et européen.

### Les grandes orientations à conserver, une stratégie scientifique à réinventer

Face à la nécessité d'adaptation et de mutation pour faire face aux enjeux environnementaux, sociaux et économiques liés au changement climatique, les initiatives pour rendre les Villes plus durables se multiplient et émanent à la fois des organisations internationales (ex. Objectifs de Développement Durable (ODD) de l'ONU (**Figure 7**), One Health (OMS, FAO, OIE)), des collectivités (Ecocities, réseau des Villes Santé par ex.), des citoyens (ex. People4Soil) et de la recherche et innovation (ex. Belmont Forum, Future Earth, Make our planet great again).



**Figure 7** L'IRSTV et les ODD : 11- Villes et communautés durables, majeur pour l'IRSTV, 13- lutte contre le changement climatique, 6-eau, 15-vie terrestre

L'analyse rapide qui peut être faite est que l'IRSTV, structure innovante à sa création en 2006, garde toute sa légitimité et sa pertinence en terme d'objectifs de recherche. Toutefois, l'évolution forte et rapide du paysage de la recherche sur la Ville, tant au niveau national qu'international, est un élément moteur de la réflexion menée pour élaborer une nouvelle stratégie pour l'IRSTV, plus en relation avec les moyens de la fédération et plus en cohérence avec le contexte structurel actuel et le besoin d'évolution vers une interdisciplinarité renforcée dans les projets.

La proposition de RFI « Ville » en région des Pays de Loire (démarche intégrée Recherche Formation Innovation) en 2016, dont l'IRSTV portait le volet recherche, n'a pas abouti pour des raisons politiques. Le bilan des forces régionales, nationales et internationales en recherche et enseignement qui avait été réalisé à cette occasion, avait toutefois consolidé la spécificité de l'IRSTV qui apparaît comme un pôle d'excellence reconnu au niveau national dans le domaine de la ville (**Figure 8**). Au niveau national, les Plans d'Investissement d'Avenir (PIA 1, 2 et 3) ont depuis 2010 modifié le paysage de l'enseignement et de la recherche française. Parmi les projets lauréats des PIA, dotés de moyens importants, structurant le panorama de la recherche urbaine, nous pouvons citer :

- le [LabEx Intelligences des Mondes Urbains](#) (IMU) à Lyon qui a été créé en 2015 (PIA 1) et compte environ 530 chercheurs issus de 32 équipes et laboratoires de l'Université de Lyon relevant de 29 disciplines différentes. IMU vient de soumettre une demande de reconduction de son projet pour 2018-2025, intégrant un nouveau programme « Institut Convergences », l'École Urbaine de Lyon, créé en juin 2017 dans le cadre du PIA2 pour développer un domaine nouveau de connaissances, l'urbain anthropocène; l'Université de Lyon accueille aussi depuis juin 2017 l'IDEXLyon ;
- l'[I Site FUTURE](#) (PIA 2) créé en mars 2017, dédié à la Ville et aux Transports, qui porte la création d'une nouvelle Université, l'Université Gustave Eiffel multisite au niveau national et héberge le LabEx Futurs Urbains ;
- l'[I Site Next](#) Health and Engineering (Université de Nantes, Ecole Centrale de Nantes, CHU de Nantes et INSERM).

A la suite de la création des Labex, le CNRS m'a demandé de réfléchir au positionnement stratégique de l'IRSTV. L'IRSTV doit se positionner et valoriser ses acquis et ses savoir-faire pour trouver les moyens de maintenir la qualité de ses travaux et sa visibilité sur le moyen et long terme. Pour cela, notre fédération possède des atouts importants en terme de thématiques scientifiques et de partenaires. En effet, les

partenaires principaux de l'IRSTV sont aussi membres fondateurs ou associés des I-Site FUTURE et NExT : l'IFSTTAR est au cœur du projet FUTURE en tant que membre fondateur et il est membre associé de NExT ; l'Université de Nantes et Centrale Nantes sont membres fondateurs de NExT.

D'un point de vue thématique, le projet scientifique de l'I-Site FUTURE se saisit de l'évolution future de la vie urbaine. Il repose sur trois défis majeurs : i) la ville économe en ressources ; ii) la ville sûre et résiliente ; iii) la ville intelligente et connectée. Les activités de l'IRSTV trouvent écho dans ces trois défis :

- L'axe 'Ville économe en ressources' vise à concevoir, gérer, développer des espaces et objets urbains sobres vis-à-vis des ressources naturelles et de l'énergie en garantissant une qualité de vie pour les usagers : gestion renouvelée du cycle de l'eau, approche holistique de la qualité de l'air, performance énergétique des villes à différentes échelles du bâtiment et des équipements aux territoires, ressources alimentaires en milieu urbain envisagées du point de vue des conséquences énergétiques, environnementales et sanitaires des modes d'approvisionnement et de distribution, limiter ou optimiser l'utilisation de ressources dans les domaines de la construction et des infrastructures;
- L'axe 'Ville sûre et résiliente' concerne la compréhension et la gestion du risque urbain (aléas naturels (séisme, inondation, canicule, tempêtes...), exposition des citoyens à des agents chimiques ou pathogènes (pollution urbaine, accidents industriels), phénomènes accidentels, crises économiques, migratoires ou sociales, à des attentats) : décrire et analyser l'interdépendance des phénomènes et leurs prises en compte économique, sociale, ou environnementale ; proposer des outils de mesure et de modélisation permettant de produire, aux bonnes échelles (de l'infrastructure au territoire), une description géospatialisée et dynamique des risques en interaction (pics de chaleur/pollution/conséquences sur les réseaux de transport – inondation/dégradation d'ouvrages/pollution/ atteinte des réseaux de communication – ségrégation sociale/risque sanitaire... ;
- L'axe 'Ville intelligente et connectée' traite de l'Étude et du développement de la ville numérique et d'en faire un levier de performance sociale, environnementale et économique : réseaux de capteurs urbains (statiques ou embarqués) pour produire des données pertinentes aux bonnes échelles de temps et d'espace pour les questions relatives aux deux défis précédents (exposition environnementale, maintenance et exploitation des infrastructures, gestion de crise, suivi des usages) ; méthodes de traitement de données innovantes (sémantisation des images, deep learning...) permettant de représenter les systèmes urbains dans toutes leurs dimensions (sociétales, sanitaires, techniques, architecturales, économiques, environnementales) et de piloter ses infrastructures et ses réseaux ;

Même si l'IFSTTAR, au sein du consortium FUTURE, soutient une vision nationale de la recherche urbaine (cf structure d'information et de mise en réseau [PIN Ville](#)), et que l'INSIS et l'INSU, tutelles principales de l'IRSTV, ont fait part du soutien du CNRS à toute démarche de rapprochement des I-Sites de la part de l'IRSTV, il n'en demeure pas moins que l'enjeu est important pour notre fédération et que la

stratégie scientifique proposée doit être suffisamment ambitieuse pour marquer notre plus-value vis-à-vis des I-Sites.

Ma première action en 2017, vis-à-vis de l'émergence de l'I Site FUTURE a été de proposer une lettre d'intention au premier AAP de l'I Site dans la catégorie Tremplin en associant l'IMT Atlantique et le LEE. Après association avec d'autres partenaires de l'I Site, la démarche a conduit au dépôt d'un projet intitulé Wise Cities en octobre 2018 sur le changement de paradigme en gestion de l'eau, dans lequel l'IRSTV est partenaire.

La deuxième étape est de créer les conditions de connaissance réciproque entre l'IRSTV et les LabEx IMU et FU. Nous avons invité les deux responsables des Labex à la Plénière de l'IRSTV en décembre 2018, en souhaitant initier ainsi des échanges réguliers.

### **Les éléments de la stratégie scientifique en cours d'élaboration**

Un travail d'état des lieux des structures de recherche et d'innovation sur la Ville en France et de benchmarking de projets européens fortement interdisciplinaires a été réalisé début 2018 à l'IRSTV sur financement CNRS. Cette analyse a conduit à une sélection de propositions pour construire la stratégie scientifique de l'IRSTV, selon deux grandes lignes directrices :

#### **1) renforcement de la visibilité de l'IRSTV :**

##### Localement/régionalement

- Etre la vitrine 'Recherche sur la Ville' des différents établissements partenaires
- Etre le centre de ressources sur la recherche urbaine interdisciplinaire de Nantes Métropole et de la Région PdL, en lien avec l'Université de la Rochelle.
- Rappeler et consolider la position de l'IRSTV comme de partenaire majeur des formations sur la Ville en Pays de Loire

##### Nationalement/au niveau européen

- Se positionner comme un institut spécialisé dans **l'observation des environnements urbains et l'évaluation des projets urbains durables.**

#### **2) Développer de nouvelles initiatives pour aller vers un positionnement européen affirmé**

##### Localement/régionalement

- Etre moteur dans la construction d'un réseau sur la recherche urbaine dans le Grand Ouest (reprise du rôle initiateur dans le RFI) : réunir les forces pour dégager / rendre visible et lisible les domaines d'excellence du Grand Ouest – viser la construction d'un réseau recherche régional (Ville durable, villes littorales résilientes) reconnu au niveau européen – soutien à rechercher auprès du PIN Ville créé dans le cadre de l'I Site Future

- Développer des partenariats (recherche - expérimentation) avec les Sociétés d'Economie Mixtes et les « grands » Bureaux d'étude (ou avec ambition d'un développement européen /international) de la Région comme SCE, AIA, Forma 6, Phytolab...

#### Nationalement

- **Etre co-porteur avec l'OSUNA du SNO Observil** pour l'acquisition de données sur le long terme sur les flux d'eau, d'énergie et de polluants en environnement urbain (Service National d'Observation des environnements urbains)– Réflexion à mener sur la valorisation des mesures sur l'environnement sonore et la mobilité, lien avec le projet scientifique de l'OSUNA GZER (Grande Zone sous influence EstuaRienne)
- **Promouvoir, maintenir et valoriser à l'échelle nationale le développement d'un 'living lab' nantais ancré dans un quartier, objet d'un projet urbain durable en collaboration avec la Ville de Nantes et/ou Nantes métropole au sein duquel des travaux interdisciplinaires sont réalisés sur le principe de la co-construction avec la collectivité et les habitants.**
- Construire un partenariat privilégié avec les I Site Future et Next

#### Au niveau européen

- Renforcer l'implication de l'IRSTV dans l'UERA (alliance européenne pour la recherche urbaine) en valorisant l'observation des environnements urbains
- Etablir des collaborations privilégiées et/ou un partenariat avec un Institut européen équivalent pluridisciplinaire.

*L'IRSTV doit être capable de proposer un réel appui en recherche multi- et interdisciplinaire à Nantes Métropole pour répondre aux problématiques de la Métropole telles que l'adaptation au changement climatique, la réduction des nuisances et l'aménagement durable du territoire. Trois chercheuses de l'IRSTV (K. Chancibault, G. Molina, M. Musy) accompagnent déjà depuis plusieurs années la Métropole sur l'élaboration et la mise en place du Plan Climat. Il existe un intérêt fort à mettre en relation les aménagements en cours et projetés de la Métropole avec les mesures préconisées dans le Plan Climat. L'IRSTV de part son implication sur le terrain (sites ONEVU, accompagnement de Nantes Métropole dans le projet H2020 URBINAT, sites d'agriculture urbaine...) est en mesure d'aider la collectivité dans ses préconisations et l'évaluation des mesures mises en œuvre. **Toutefois, comme dans beaucoup de collectivités, le challenge, à la fois pour les opérateurs du Plan Climat et l'IRSTV est de porter à connaissance les actions réalisées et en cours, de façon transversale et intégrée aux différents départements opérationnels de la Métropole.***

*Les actions proposées ci-dessus peuvent contribuer à atteindre cet objectif qui reste à dimensionner précisément, en particulier le SNO Observil et des projets tels que le projet H2020 Urbinat qui comporte un volet « Living lab pour la mise en place d'un corridor de ressourcement » et le projet ADEME MUSE.*

*Je reviendrai plus en détail sur ces projets dans le chapitre 4 en mettant en avant les aspects scientifiques liés à mon projet de recherche et l'intérêt pour les objectifs de l'IRSTV listés ci-dessus. Par contre le projet de Service National d'Observation est explicité de façon générale ci-dessous, la partie plus spécifique liée aux sols urbains sera détaillée dans le chapitre 4.*

### **Du réseau des observatoires en hydrologie urbaine (URBIS) à un Service National d'Observation des Environnements Urbains (SNO Observil) unique en France**

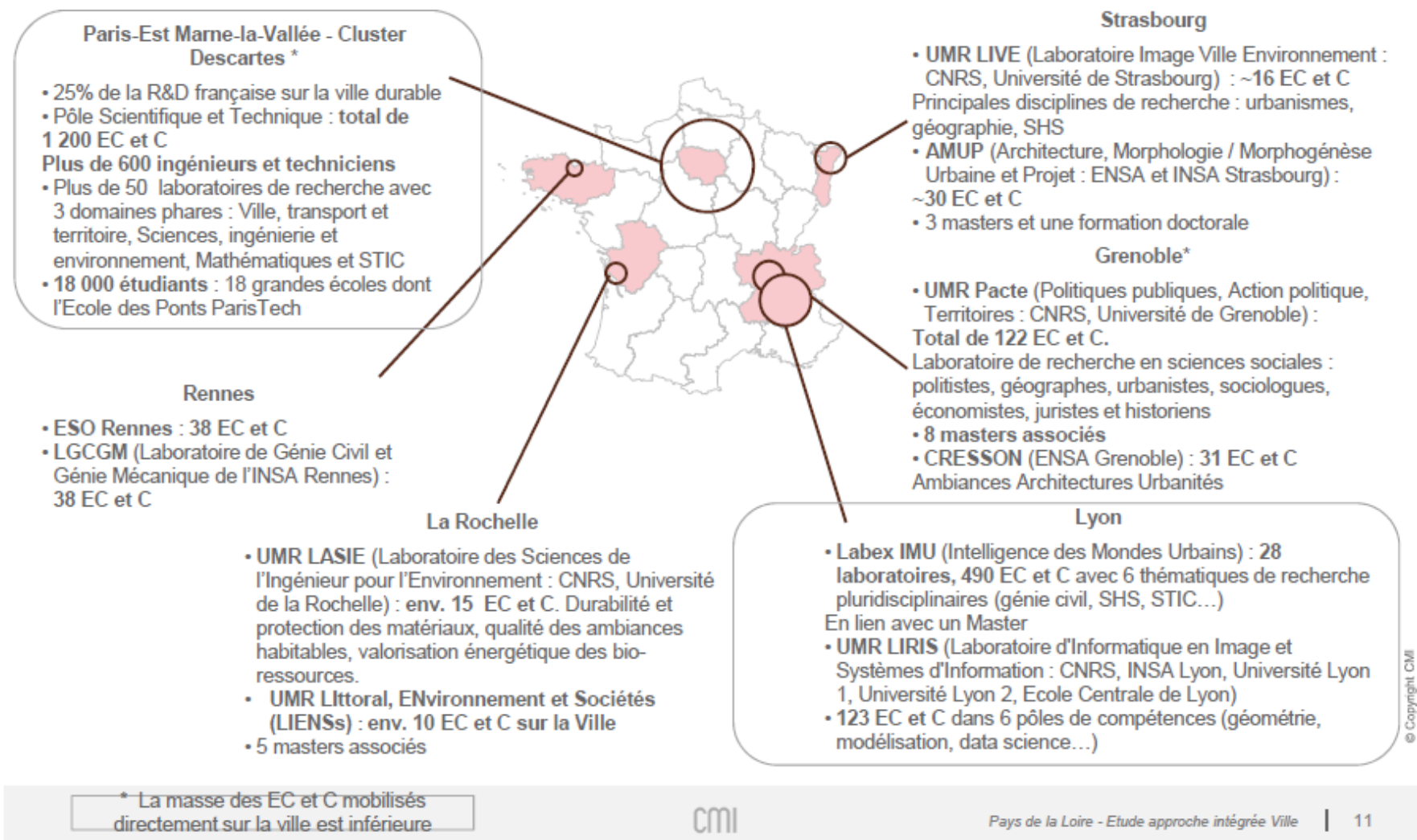
Le développement d'un **Service National d'Observation des environnements urbains** constitue une action nationale forte de l'IRSTV qui répond à un véritable besoin scientifique. L'environnement physique urbain dans son ensemble est très peu étudié et pris en compte dans les programmes de recherche hormis en ce qui concerne la pollution atmosphérique et les risques sanitaires associés. Une recherche bibliographique (WoS) renvoie une trentaine d'articles pertinents avec les mots clés (observatory et urban environment). Parmi ces articles, figurent de nombreux papiers sur les réseaux de capteurs de la pollution atmosphérique ou des émissions surfaciques (CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub> et CO). La recherche sur Internet nous renvoie une seule occurrence [d'observatoire urbain à Newcastle](#) avec des données en ligne acquises en continu (qualité de l'air, de l'eau, trafic, niveau d'eau dans la rivière...). L'observation est pourtant un élément primordial des analyses et des modélisations de la Ville et un élément de lien entre les thématiques des sciences pour l'ingénieur, des sciences humaines et sociales et des sciences de l'univers.

Les services d'observation participent, avec la capitalisation des données, à la fédération des efforts de recherche, et favorisent les échanges et donc les collaborations. L'IRSTV accueille et soutient depuis 2006 l'ONEVU. **L'ONEVU a été moteur dans la constitution de l'Inter-Observatoire en hydrologie Urbaine URBIS**, associant les Observatoires en hydrologie urbaine de Lyon (OTHU), de Paris-Est (OPUR) et de Nantes. Cet Inter-Observatoire a bénéficié de la labellisation SOERE (AllenVi) de 2012 à 2015 en tant que Système d'Observation sur l'Environnement urbain.

Partant de l'hydrologie urbaine, l'ONEVU a la particularité d'avoir étendu ses thématiques d'observation à la microclimatologie, l'énergétique du bâtiment et à la qualité des sols. Il est ainsi devenu un observatoire interdisciplinaire associant sciences de l'univers et sciences pour l'ingénieur. Du fait de l'intérêt majeur de ce type de structure dédiée à l'observation de la Ville, une proposition de SNO – Système National d'Observation dédié à l'observation des environnements urbains (SNO Observil) soutenu par l'INSU est en cours de montage. Le projet de SNO Observil est primordial à la fois pour l'OSUNA qui en sera l'hébergeur et pour l'IRSTV qui assure le co-portage du dossier avec l'OSUNA. L'objectif de pouvoir à moyen terme inscrire le SNO Observil dans E-LTER-France OZCAR qui est une infrastructure de recherche distribuée dédiée à l'observation et à l'étude du fonctionnement des surfaces terrestres, des sous-sols à la basse atmosphère, depuis les hauts reliefs jusqu'aux régions côtières. OZCAR, Observatoire de la Zone Critique, Application et Recherche est un des piliers français du réseau européen e-LTER, Long-Term Ecosystem Research in Europe.

L'enjeu du projet est de constituer une infrastructure permettant de collecter sur le long terme les données sur un ensemble de paramètres caractérisant les flux d'eau, de matière (contaminants) et d'énergie au sein de zones d'observation urbaines (échelle de l'ouvrage, du quartier, du bassin versant urbain). Le projet de SNO s'appuie sur l'Infrastructure de Données existante à l'OSUNA et sur la base de données Brigadoon, mise en place à l'IFSTTAR il y a 4 ans et qui héberge déjà une dizaine d'années de données hydrologiques et chimiques (qualité d'eaux en assainissement pluvial et d'eau souterraine).





**Figure 8** Panorama de la recherche sur la Ville en France – Etat des lieux de novembre 2015 – Bureau d'étude CMI

## CHAPITRE 2 - CARACTERISATION DE MATRICES COMPLEXES EN GESTION DES EAUX PLUVIALES

### Contexte scientifique – La gestion des eaux pluviales urbaines

Chaque année 119 000 km<sup>3</sup> de précipitations sont enregistrés dans le monde, dont seulement 61% (72 000 km<sup>3</sup>) sont évaporés, laissant 47 000 km<sup>3</sup> d'eau de pluie ruisselant à la surface des terres émergées (Sultsky et Yen, 1997). Or l'urbanisation modifie profondément le fonctionnement hydrologique naturel, en augmentant fortement, par l'imperméabilisation des sols, les flux de ruissellement et le risque d'inondation qui en résulte, mais elle affecte également la qualité des eaux ruisselées qui se chargent en polluants au contact des matériaux (enveloppe bâtie, revêtements de sol, mobilier urbain, chaussées, véhicules...) et lessivent les polluants issus des activités anthropiques et déposés sur les surfaces. Ces eaux sont ensuite déversées, avec ou sans traitement, dans les milieux récepteurs, ou dirigées vers les stations d'épuration.

La prise en charge des eaux urbaines dans leur ensemble, fait appel à des systèmes (réseaux) d'assainissement, dont le développement, motivé par une question de salubrité et de santé publique, remonte au XIXe siècle. Pour transporter les eaux usées hors de la ville, les urbanistes et ingénieurs ont fait le choix d'utiliser le réseau d'évacuation des eaux pluviales existant (réseau hydrographique naturel, caniveaux, fossés) (option dite du réseau unitaire). Le traitement des eaux usées s'est développé dans la seconde moitié du XXe siècle. Afin de ne pas surcharger les stations d'épuration, des réseaux séparatifs, distincts pour les eaux usées et les eaux pluviales, ont ensuite été prônés. Il s'agissait d'évacuer rapidement ces eaux pluviales de ruissellement urbain vers l'exutoire des bassins versants.

Il a fallu attendre les années 1970-80 pour que les impasses techniques et environnementales résultant du transfert le plus rapide possible des eaux pluviales vers le milieu naturel apparaissent clairement, comme par exemple les inondations urbaines et les pics de pollution liés aux rejets directs dans le milieu naturel lors des événements pluvieux. La création d'ouvrages de stockage et de décantation des eaux pluviales a tout d'abord été privilégiée. Le contrôle à la source des eaux pluviales, décliné en France sous l'appellation de "techniques alternatives" (au "tout tuyau") apparaît maintenant comme une solution durable de gestion des eaux urbaines de temps de pluie. Cette évolution marque un tournant en réintroduisant les différentes composantes du cycle de l'eau, et notamment l'infiltration dans la prise en charge des eaux urbaines. Simultanément, l'eau en ville redevient un atout environnemental, un élément d'agrément. Des efforts importants sont consacrés à la restauration des cours d'eau urbains<sup>32</sup>. Cette évolution vis-à-vis des eaux pluviales s'accompagne aujourd'hui d'une volonté de mieux tirer parti des eaux usées, pour les faire passer du statut de déchet au statut de ressource (récupération de calories, utilisation des eaux usées traitées pour

---

<sup>32</sup> Andrieu et al. Chapitre 5 - Expertise Scientifique Collective - Béchet B. et al. (coord.), Le Bissonnais Y. (coord.), Ruas A. (coord.) et al. (2017). *Sols artificialisés et processus d'artificialisation des sols, Déterminants, impacts et leviers d'action*. INRA (France), 609 pages

l'arrosage, utilisation des urines comme source de nutriments<sup>33</sup> ...), statut que les excréments humains avaient jusqu'au milieu du 19<sup>e</sup> siècle<sup>34</sup>. Le projet Wise Cities, en réponse aux AAP internes de l'I-Site Future, dans lesquels plusieurs chercheurs de l'IRSTV (LEE Ifsttar, GEPEA et CeNS IMT Atlantique) sont partie prenantes, a d'ailleurs pour objectif de produire des éléments théoriques pour l'accompagnement du changement de paradigme dans la gestion des eaux urbaines, en s'appuyant sur des cas concrets d'implémentation d'innovations.

Le mouvement vers une « gestion équilibrée et durable de la ressource en eau » intégrant l'ensemble des eaux a été véritablement amorcée en 1992 par le législateur en France<sup>35</sup> : il décide alors de réguler les « eaux pluviales et de ruissellement », tant sur les questions de quantité que de qualité et tant des systèmes unitaires que des systèmes séparatifs. Le principe d'un partage des responsabilités est posé : i) aux communes et à leur regroupement, celles d'identifier et spatialiser les problématiques et les mesures à prendre pour y remédier, y compris d'urbanisme, et ii) aux services déconcentrés de l'Etat, les missions de police de l'eau pour les rejets au milieu naturel<sup>32</sup>.

A la même période, le Conseil Européen se limite aux problèmes de déversements de pollution de temps de pluie, par les seuls systèmes unitaires (directive Eaux résiduaires urbaines de mai 1991), en laissant aux Etats membres ce qui a pu être considéré comme une nécessaire marge d'appréciation au vu de la variété des contextes, en particulier climatiques. La Directive cadre sur l'eau de 2000 avait marqué une transition d'une logique de normes d'émission basée sur les « *best available technologies* », à une logique de norme d'immission basée sur une concentration « *souhaitable* » d'un spectre bien plus large de polluants dans un milieu (Barraqué et Roche, 2010). Quant aux problématiques d'inondations pluviales, la directive inondation donne la possibilité d'« *exclure les inondations dues aux réseaux d'égouts* », et l'Etat français a ainsi exclu lors de sa transposition les « *inondations dues aux réseaux de collecte des eaux usées, y compris les réseaux unitaires* », et il a exclu la *maîtrise des eaux pluviales et de ruissellement* de la compétence GEMAPI. On peut constater néanmoins que plusieurs territoires à risque d'inondation (TRI) liée au ruissellement ont été définis, que ce type d'inondations est mentionné dans la SNGRI et qu'une promotion de la prise en compte de ce type d'inondation est effectuée au travers de référentiels portés par le ministère de l'écologie<sup>36</sup>. Enfin, c'est l'enjeu de fonctions des sols qui a suscité la publication récente de lignes

---

<sup>33</sup> Programme OCAPI Optimisation des cycles Carbone, Azote, Phosphore en ville - Programme de recherche & action sur les systèmes alimentation/excrétion urbains et la séparation à la source des eaux usées (ENPC, INRA, SIAAP, AESN,MTES)

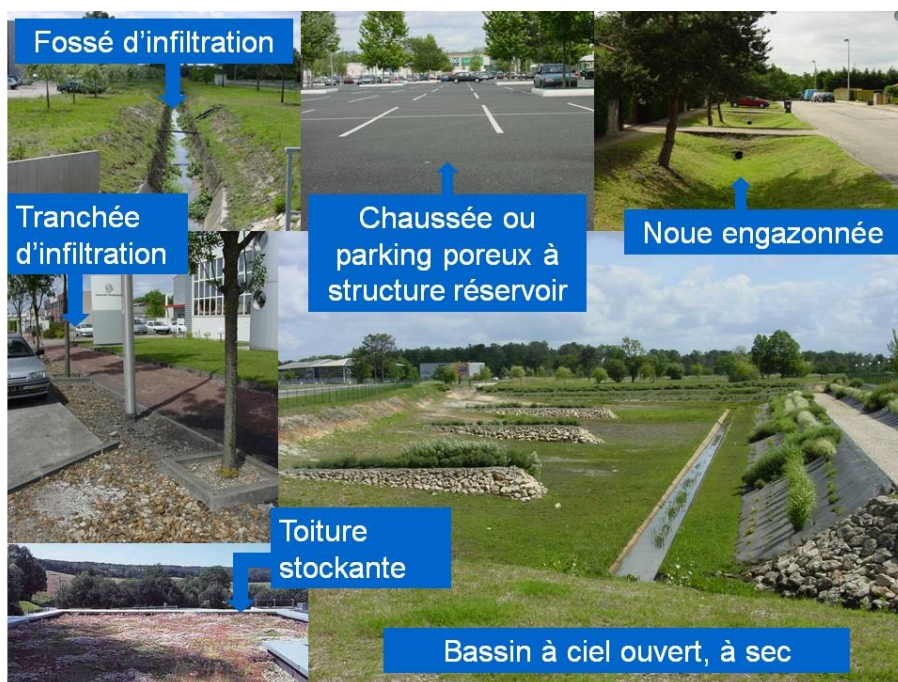
<sup>34</sup> Philosophies des excréments, D.H. Haney dans 'Le sol des villes' P. Maniziaras et P. Vigano, MetisPresses 2016

<sup>35</sup> Directive Européenne du 21 mai 1991 relative au traitement des eaux urbaines résiduaires - Loi sur l'Eau du 3 janvier 1992 Directive Cadre sur l'Eau (DCE) du 23 octobre 2000 au travers de son article premier vise à établir un cadre pour la protection des eaux qui prévient toute dégradation supplémentaire, préserve et améliore l'état des écosystèmes aquatiques et contribue à atténuer les effets des inondations. Enfin, la Loi sur l'Eau et les Milieux Aquatiques (LEMA) du 30 décembre 2006 assoit l'objectif de « bon état écologique » des eaux, fixé par la Directive Cadre sur l'Eau. Elle prône la préservation des milieux aquatiques et une « gestion équilibrée et durable de la ressource en eau » GEMAPI gestion des milieux aquatiques et la prévention des inondations (GEMAPI) est une compétence confiée aux intercommunalités (métropoles, communautés urbaines, communautés d'agglomération, communautés de communes) par les lois de décentralisation n° 2014-58 du 27 janvier 2014 et n° 2015-991 du 7 août 2015, depuis le 1er janvier 2018

<sup>36</sup> Certu, MEDDE (2003). La Ville et son assainissement ; DPPR (2004). PPR Inondation – note Ruissellement péri-urbain ; DPPR (2006). Les collectivités locales et le ruissellement, etc.

directrices pour lutter contre l'imperméabilisation par la commission européenne, à défaut de directive-cadre sur les sols.

Aujourd'hui, les travaux de recherche récents<sup>37</sup> incitent à raisonner à l'échelle du système de gestion des eaux urbaines intégrant technique et gouvernance multi-acteurs. Ce SGEU implique entre autre de considérer une échelle de gestion spatiale plus large, par le passage du réseau d'assainissement à un système enterré ou à ciel ouvert avec des vocations techniques mais également ludiques ou esthétiques en interaction avec l'aménagement urbain. Les techniques alternatives (BMP, LIDS, SUDS<sup>38</sup> en anglais) (système linéaire ou centralisé) sont développées dans cet esprit pour traiter les flux d'eau de ruissellement et de polluants associés et réduire les nuisances directes aux milieux récepteurs (**Figure 9**)



**Figure 9** Exemples de techniques alternatives de gestion des eaux pluviales (crédit photos F. Rodriguez)

Ces ouvrages assurent une double fonction : une fonction hydraulique de réduction des ruissellements et une fonction d'épuration de l'eau, notamment par décantation et infiltration<sup>39</sup>. Les bassins de rétention-infiltration font partie des techniques largement développées pour leur facilité de mise en œuvre et leurs coûts réduits de maintenance.

<sup>37</sup>: Projet ANR OMEGA (2009-2012) - Outil méthodologique d'aide à la gestion intégrée du système de gestion des eaux urbaines

<sup>38</sup> BMP Best Management Practices – LID Low impact development SUDS Sustainable Urban Drainage Systems

<sup>39</sup> 

Projet de la Conference of European Directors of Roads (CEDR) "Road runoff pollution management and mitigation of environmental risks- WP 3 – Sustainable assessment of measures and treatment systems for road runoffs Task 3.1. Literature Review on Blue-Green Treatment Solutions (bassin de rétention-infiltration, fossé, noue, structure de stockage...)

Les eaux de ruissellement sont en effet le vecteur de déchets (du macro- au nanodéchet (cf. micro- et nanoplastiques) et de diverses familles de contaminants (chimiques, biologiques) issus de nos usages de l'espace public et émis par les activités anthropiques (transport, infrastructures, chauffage, industries, revêtements des bâtiments/toitures...). Les grandes familles de substances identifiées sont des métaux (cuivre, zinc, plomb, cadmium, platinoïdes (Pd, Rh, Pt...), des métalloïdes (arsenic...), des hydrocarbures, des pesticides (e.g. 2,4-D, Diuron, glyphosate, AMPA), des polluants organiques émergents (PBDE, alkylphénols...) <sup>40</sup>. Les eaux pluviales comprennent aussi une fraction minérale et des matières organiques d'origine naturelle (végétaux), des nutriments (phosphore, azote) et des pathogènes. Cette pollution se caractérise par son caractère particulaire, tant pour les substances inorganiques que organiques, qui peut atteindre de 50 à 90% selon les substances chimiques (fractionnement par filtration à 0,45 µm entre particules et substances dissoutes).

## **Les questions scientifiques traitées dans le cadre de l'évaluation de la performance des ouvrages d'infiltration des eaux de ruissellement**

Le développement des techniques alternatives de gestion des eaux pluviales depuis une trentaine d'années s'accompagne de retours d'expériences de dysfonctionnements: réduction de l'infiltration par colmatage de fond de bassin, taux d'épuration variable selon les polluants, développement spontané de végétation créant un fonctionnement hydraulique non maîtrisé (infiltrations préférentielles...)... Face aux exigences réglementaires sur l'eau liées à l'objectif d'atteindre un bon état écologique et à l'émergence de nouveaux contaminants, il est nécessaire de mieux évaluer l'impact des ouvrages de gestion des eaux pluviales (en particulier bassins de rétention-infiltration et noues) vis-à-vis de la rétention des micropolluants issus de l'activité humaine en ville ou de l'activité routière. Plusieurs projets portés par le réseau URBIS<sup>41</sup> contribuent depuis une dizaine d'années à cet objectif. L'ANR Inogev<sup>42</sup> a ainsi montré que le spectre des polluants inorganiques et organiques, déjà large, pouvait être élargi à des familles de substances émergentes (PBDE, platinoïdes, bisphénol...) mais les connaissances sont encore jeunes, à consolider et à diffuser auprès des acteurs de la gestion de l'eau. L'appel à projet national « Innovations et changements de pratiques – Lutte contre les micropolluants chimiques des eaux urbaines » (Onema, Agences de l'eau, MTES) permet également depuis début 2015 des avancées notables sur la connaissance des substances émergentes dans les eaux urbaines<sup>43</sup> et le fonctionnement des systèmes de gestion des eaux pluviales.

---

<sup>40</sup> Gasperi J., Sebastian C., Ruban V., Delamain M., Percot S. et al, "Micropollutants in urban stormwater: occurrence, concentrations, and atmospheric contributions for a wide range of contaminants in three French catchments", Environ. Sci. Pollut. Res, 20 (8), 5267–5281, 2015. Environmental Pollution 243, 2018, 1669-1678 Priority substances in accumulated sediments in a stormwater detention basin from an industrial area Wiest L., RobertBaudota FlorentLafaya ErikBonjoura CélineBecouze-Lareure Jean-BaptisteAubin PatrickJame SylvieBarraud Gislain LipemeKouyi ChristelSébastienb EmmanuelleVulliet

<sup>41</sup> la communauté de recherche en hydrologie urbaine (réseau URBIS / LEESU Marne La Vallée - OTHU Lyon LEE Nantes

<sup>42</sup> ANR INOGEV (2010-2013) Innovations pour une gestion durable de l'eau en ville

<sup>43</sup> Exemple projet SIPIBEL-RILACT - Risques et Leviers d'Actions relatifs aux rejets de médicaments, détergents et biocides dans les effluents hospitaliers et urbains

Trois projets sont portés par les observatoires de terrains en hydrologie urbaine : MATRIOCHKAS (Onevu - Nantes), ROULEPUR (Opur - Ile de France) et MICROMEGAS (Othu - Lyon). En coordination avec les deux autres projets dans le cadre du réseau URBIS, l'un des objectifs du projet Matriochkas est de définir des critères et des méthodes d'évaluation des performances de techniques génériques de gestion amont des eaux pluviales, en distinguant deux types: les techniques centralisées (bassins de régulation/décantation/infiltration) et les techniques décentralisées linéaires (noues, fossés drainants) (cf. thèse de A. Fardel CSTB).

Les performances en terme de dépollution des ouvrages de gestion des eaux pluviales sont souvent basées sur la décantation de la fraction particulaire des eaux. Hors, si globalement ce processus permet d'abattre le niveau de pollution de façon satisfaisante à court terme <sup>44</sup>, le retour d'expérience des gestionnaires et les suivis temporels précis in-situ en entrée/sortie des ouvrages indiquent une très grande variabilité de fonctionnement, avec des épisodes de remobilisation de polluants, notamment les hydrocarbures et de rétention faible de la pollution dissoute (dont les chlorures [ACTN10]) (classiquement de 20 à 80% selon le polluant, sa spéciation, le type d'ouvrage et les paramètres hydro-climatiques). Même si ces constats de rendements de dépollution très variables et du risque de transfert au sein des bassins étaient déjà existants au début des années 2000, ces problématiques sont maintenant traduites en termes de performance environnementale des ouvrages de gestion mais elles restent assez mal documentées en ce qui concerne les performances sur le long terme<sup>33</sup>. Cette évaluation sur le long terme ne peut se faire sans une analyse mécanistique des systèmes (identification des processus hydrodynamiques, physiques (sédimentation des contaminants particulaires) et biophysicochimiques contribuant à l'épuration des eaux), associée à la modélisation des processus identifiés et validés par comparaison entre les données existantes à court terme et la simulation.

Pour pallier ce déficit de connaissances, des travaux sur les transferts de métaux trace sur matrice réelle<sup>45</sup> ont donc été développés au début des années 2000 au LCPC et à l'ENTPE (cf. chapitre 1) pour étudier plus particulièrement la rétention des polluants par filtration ; plus récemment, le développement de modèles hydrodynamiques par l'INSA couplés à du transfert particulaire a permis de décrire les processus de sédimentation dans des bassins<sup>46</sup>. Il reste cependant un manque manifeste de travaux sur la modélisation couplée des différents processus sur lequel je reviendrai au chapitre 3.

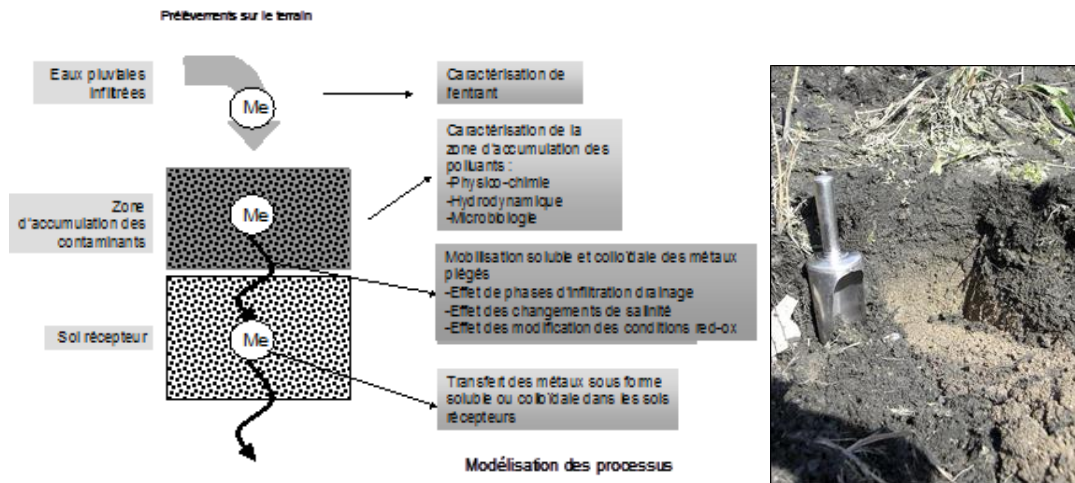
---

<sup>44</sup> Liu Y et al. (2017) A review on effectiveness of best management practices in improving hydrology and water quality : needs and opportunities, *Science of Total Environment*, 601-602, 580-93

<sup>45</sup> Delmas C (2000) Influence des conditions physico-chimiques sur la mobilité du plomb et du zinc dans un sol et un sédiment en domaine routier, Univ. Pau – Lassabatere L (2002) Modification du transfert de trois métaux lourds (Zn, Pb et Cd) dans un sol issu d'un dépôt fluvio-glaciaire carbonate par l'introduction de géotextiles, Univ. Lyon INSA

<sup>46</sup> Yan, H., Lipeme Kouyi, G., Gonzalez-Merchan, C. et al. Computational fluid dynamics modelling of flow and particulate contaminants sedimentation in an urban stormwater detention and settling basin, *Environ Sci Pollut Res* (2014) 21: 5347. <https://doi.org/10.1007/s11356-013-2455-6>

Au sein d'un ouvrage de rétention et de traitement des eaux pluviales, les processus d'abattement de la pollution interviennent i) en surface par décantation contribuant ainsi à la formation d'une couche sédimentaire contaminée et/ou par piègeage des particules et adsorption des solutés sur la végétation en place ; ii) en profondeur par filtration des particules dans le sol sous-jacent et/ou adsorption des substances dissoutes sur les phases réactives du sol (**Figure 10**). A cela s'ajoutent des processus de dégradation des substances organiques par photolyse ou par l'activité microbienne.



**Figure 10** Schéma conceptuel du transfert de polluants dans les sols des ouvrages de traitement des eaux pluviales (projet EMMAUS)

La couche sédimentaire des fonds d'ouvrages de rétention-infiltration des eaux de ruissellement était donc clairement une interface réceptrice et source de polluants, dont la composition et la réactivité devaient être appréhendées le mieux possible pour pouvoir évaluer son rôle dans la performance épuratoire d'un ouvrage. Des données nombreuses étaient disponibles sur les teneurs en polluants métalliques et en HAPs dans les eaux de ruissellement et les sédiments de bassins (fractions dissoutes et particulaires), ainsi que des données sur la matière organique des sédiments (fraction extractible). Par contre, aucune information n'était disponible sur la granulométrie et la nature des particules fines (inférieures à 63  $\mu\text{m}$ ) des eaux de ruissellement et la nature des phases porteuses de polluants dans les sédiments (en dehors d'une distribution obtenue par schéma opérationnel de type Tessier). Ces données étaient en effet nécessaires pour répondre aux questions de représentation des eaux de ruissellement en entrée du système à modéliser et de celle de l'assemblage des phases solides (minérales et organiques) représentatif du terme 'source de pollution'.

Ces questions ont conduit au développement de deux ensembles de travaux :

- le premier sur la **caractérisation des substances colloïdales dans les eaux de ruissellement**, représentant le continuum particulaire, entre les substances dissoutes (ions, complexes, molécules) et les particules grossières soumises uniquement à la gravité et à l'arrachement éventuellement et sur la **spéciation colloïdale des polluants métalliques**, l'hypothèse formulée étant que les particules

colloïdales, du fait d'une vitesse de sédimentation très faible et d'une potentialité de migration dans les sols importante, pouvaient être potentiellement responsables de performances d'épuration dégradées lors d'événements hydrologiques spécifiques ;

- le deuxième sur la **nature des constituants des sédiments de bassins d'infiltration, leur texture et la répartition des polluants métalliques et organiques entre les différentes phases solides** pour évaluer le risque de mobilisation des polluants et de transfert dans le sol et les nappes superficielles ou vers la végétation des ouvrages<sup>47</sup>. Une autre application de ces connaissances était l'amélioration des solutions de traitement des sédiments en vue d'une valorisation en technique routière. Un objectif double était poursuivi : 1) 'tracer' les particules présentes dans les eaux pour évaluer les modifications de spéciation des polluants métalliques, 2) évaluer le potentiel d'une dépollution des sédiments par séparation des phases porteuses selon leurs propriétés physico-chimiques, en complément de la méthode par attrition proposée par Petavy et Ruban (2009)<sup>48</sup>.

Un bilan des travaux et leurs perspectives sont proposés dans la suite de ce chapitre pour ces deux sujets.

---

<sup>47</sup> Pitt, S. Clark, and R. Field (1999) Groundwater contamination potential from stormwater infiltration practices. *Urban Water*, vol. 1, no. 3, pp. 217–236, 1999.

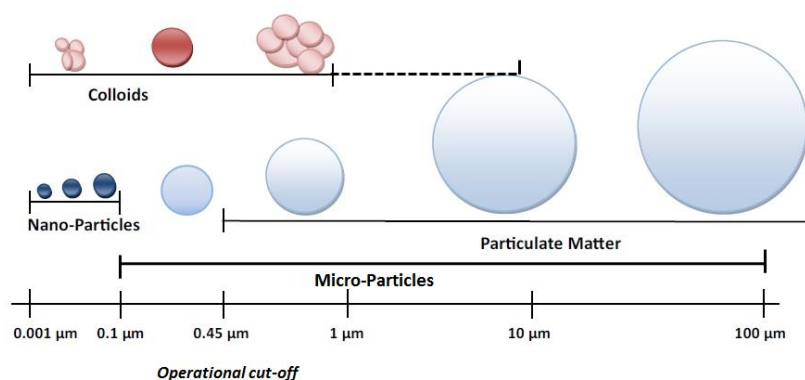
<sup>48</sup> Pétavy F, Ruban V, Conil P (2009). Treatment of stormwater sediments : efficiency of an attrition scrubber – Laboratory and pilot-scale studies. *Chemical engineering journal*, 145, 475-482



## Colloïdes et métaux trace dans les eaux de ruissellement routières et les poussières de chaussées

### Etat des connaissances sur la caractérisation des particules des eaux de ruissellement et la spéciation particulaire des ETM

Après la mise en évidence à la fin des années 60 de l'importance des suspensions colloïdales dans le transfert d'éléments radioactifs<sup>49</sup>, la spéciation physique des substances chimiques en milieu aqueux s'enrichit d'une catégorie supplémentaire, les colloïdes. Les colloïdes aqueux sont des mélanges hétérogènes de particules de taille, forme, coating, composition chimique et chimie de surface différentes et sont définis comme des substances solides ayant, au moins dans une dimension de l'espace, une taille comprise entre 1 nm et 1 µm (jusque 10 µm en sciences de l'environnement)<sup>50</sup>. Dans les années 80 et jusqu'au milieu des années 2000, J. Buffle et M. Filletta à Lausanne s'emploient à développer les méthodes de caractérisation des substances colloïdales présentes dans les environnements naturels catégorisées en fonction de leur taille et de leurs propriétés physico-chimiques<sup>51</sup> (**Figure 11**).



**Figure 11** Matière en suspension, colloïdes et nanoparticules en milieu aqueux – La coupure opérationnelle entre « particulaire » et « dissous » est à 0,45µm ; les micro- et nanoparticules peuvent se présenter sous forme de suspensions colloïdales (mélange homogène de deux

phases : ici particules et phase aqueuse) (adapté de <sup>52</sup>Nielsen et al., 2015)

Depuis les années 2000, l'émergence de la problématique des nanoparticules manufacturées, sur laquelle nous reviendrons dans les perspectives de cette partie, entraîne une attention particulière sur les particules de taille nanométrique, qui dépasse de très loin l'intérêt porté aux colloïdes dans les années 90. Des particules de taille nanométrique étaient alors présentes dans le continuum particulaire, intégrées dans

<sup>49</sup> Champlin JBF, Eichholz GG (1968). The movement of radioactive sodium and ruthenium through a simulated aquifer. *Water Resources Research* 4 (1) 147-158.

<sup>50</sup> Lead JR, Wilkinson KJ (2006). Environmental Colloids and Particles: Current Knowledge and Future Developments, in *Environmental Colloids and Particles: Behaviour, Separation and Characterisation*, Vol.10 (eds K. J. Wilkinson and J. R. Lead), John Wiley & Sons, Ltd, Chichester, UK. doi: 10.1002/9780470024539.ch1

<sup>51</sup> Buffle J, van Leeuwen HP (1992) (eds.) *Environmental particles*, Lewis publishers

<sup>52</sup> Nielsen K, Eriksson E, Strömvall AM, & Baun A (2015). *Characterisation and Treatment of Nano-sized Particles, Colloids and Associated Polycyclic Aromatic Hydrocarbons in Stormwater*. Kgs. Lyngby: Technical University of Denmark, DTU Environment.

l'ensemble des substances colloïdales (1 nm – 10 µm), mais les techniques et méthodes d'analyse ne permettaient pas d'explorer correctement cette fraction<sup>53</sup>. Les nanoparticules sont définies, selon la norme ISO TS/27687, comme étant des particules dont au moins une des dimensions est inférieure à 100 nm. Elles font donc partie des substances colloïdales. Les microparticules sont quant à elles définies, au sens physique, comme les particules de taille comprise entre 100 nm et 100 µm<sup>54</sup>.

En ce qui concerne les environnements urbains, au début des années 2000, la caractérisation de la fraction particulaire des eaux de ruissellement porte sur son caractère décantable. Une analyse granulométrique permet, pour les eaux comportant des teneurs en matières en suspension moyennes à importantes, de déterminer la fraction décantable (>63 µm ou >125 µm), dans une optique de traitement des eaux<sup>55</sup>. La littérature scientifique est de ce point de vue très riche depuis les années 1980, avec des contributions notamment d'équipes canadiennes. Du point de vue de la qualité, les eaux de ruissellement étaient caractérisées de façon normalisée (elles le sont toujours de cette façon), par leurs teneurs en polluants dans des fractions dites 'dissoute' et 'particulaire', avec une coupure physique à 0,45 µm, située dans le domaine colloïdal. L'origine de la valeur de cette coupure opérationnelle est attribuée aux besoins spécifiques des analyses en microbiologie ou en traitement des eaux, les micro-organismes (bactéries) étant éliminées par filtration à 0,2 ou 0,45 µm (cf recommandations de l'OMS pour l'analyse bactériologique). On retrouve la mention de cette filtration pour séparer « dissous » et « particulaire » dans le memento « Methods for Chemical Analysis of Water and Wastes » de l'EPA en 1979.

Très peu de travaux existent par contre sur les fractions colloïdales des eaux de ruissellement. Quelques études sont menées entre 1985 et 1992 sur les différentes formes dissoutes des métaux dans les eaux (labile, colloïdal, lié à des acides organiques) par voltamétrie et séparation sur résine<sup>56</sup>. Elles mettent en évidence entre autre que le cuivre est présent sous forme de complexe organique. Puis de rares travaux dans lesquels des techniques de fractionnement par filtration- ultrafiltration ou ultracentrifugation sont mises en oeuvre portent sur les phases particulaires et colloïdales<sup>57,58</sup>. Grout et al.<sup>17</sup> complètent par une visualisation des particules en microscopie (MET). Les colloïdes de plus grande taille, sont composés majoritairement de Fe, Al et Si, alors que la matière organique est présente dans la fraction 0,01-0,45 µm<sup>58</sup>. Cependant, la

---

<sup>53</sup> Fillella M, Zhang J, Newman NE, Buffle J (1997). Analytical applications of photon correlation spectroscopy for size distribution measurements of natural colloidal suspensions: capabilities and limitations, *Colloids Surf. A* 120, 27-46.

<sup>54</sup> Nowack B, Bucheli T (2007) Occurrence, behavior and effects of nanoparticles in the environment, *Environmental Pollution* 150(1), 5-22.

<sup>55</sup> Sansalone JJ, Buchberger SG (1997). Partitioning and first flush of metals and solids in urban highway runoff. *J. Environ. Eng. Div. ASCE*, 123, 134-143.

<sup>56</sup> Yousef et al. (1985) Consequential species of heavy metals in highway runoff, *Transportation Research Record* 1017 - Morrison GMP, Revitt DM, Ellis JB (1990) Metal speciation in separate stormwater systems, *Wat. Sci. Tech.* 22(10/11), 53-60

<sup>57</sup> Roger S, Montrejaud-Vignoles M, Andral MC, Herremans L, Fortune JP (1998). Mineral, physical and chemical analysis of the solid matter carried by motorway runoff water. *Wat Res*, 32, 1119-1125

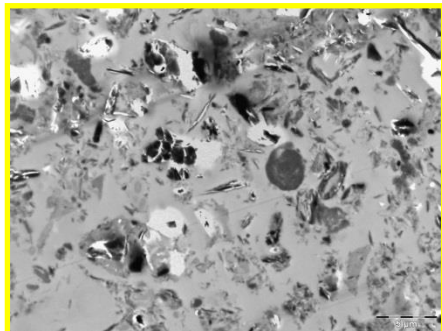
McKenzie ER, Wong CM, Green PG, Kayhanian M, Young TM (2008) Size dependent elemental composition of road-associated particles. *Sci Tot Environ*, doi: 10.1016/j.scitotenv.2008.02.052

<sup>58</sup> Tucillo ME (2006). Size fractionation of metals in runoff from residential and highway storm sewers. *Sci Tot Environ*, 355, 288-300

composition de la fraction colloïdale est très variable au sein même d'un évènement pluvieux et entre évènements saisonniers, avec des changements de morphologie entre agrégats organiques et gels de Si, Fe et Al.

Cette variabilité très forte de la composition de la fraction colloïdale, dépendante des évènements et des sites est à l'image de ce qui est observé pour la spéciation des ETM dans les eaux. La répartition des ETM entre les fractions dissoutes et particulaires dépend de nombreux facteurs et elle est difficile à prévoir, même si le comportement plus ou moins particulaire de certains métaux est avéré. Par exemple, le plomb est plus présent sous forme particulaire que le cuivre ou le zinc <sup>59</sup>.

Au regard de ces éléments bibliographiques et de premières visualisations des particules présentes dans les eaux (**Figure 12**), la coupure opérationnelle à 0,45µm pour séparer les fractions dissoute et particulaire n'apparaissant pas comme suffisante pour comprendre la spéciation des métaux, j'ai donc entrepris de mettre en œuvre un ensemble de techniques complémentaires pour 1) caractériser les particules des eaux pluviales en taille et en nature de phases porteuses de métaux (eaux de ruissellement et d'infiltration), et 2) pour déterminer **quelle était l'importance de la fraction colloïdale des ETM dans les eaux, en vue de déterminer par la suite la potentialité d'un transfert facilité dans les ouvrages de gestion**. Ces travaux ont été appliqués aux eaux de ruissellement du pont de Cheviré (Nantes) recueillies par un bassin de



rétention-infiltration (cf fiche en annexe) et à des eaux du réseau séparatif du quartier du Pin Sec dans l'ONEVU (projet INOGEV stage F. Rehm).

**Figure 12** Observation au MET d'une goutte d'eau de ruissellement de Cheviré (IRSN, projet EMMAUS)

## Techniques expérimentales de caractérisation des particules des eaux de ruissellement

### Mesure de la taille des particules

La distribution de taille des particules des eaux est classiquement évaluée par **diffraction laser**, en utilisant la théorie de Mie qui considère les particules comme des sphères (calcul d'un diamètre de sphère équivalent). Cette technique ne permet pas cependant d'appréhender l'ensemble du domaine colloïdal (1 nm-10 µm), car même si les derniers appareils commercialisés affichent 10 nm comme limite basse, de façon opérationnelle la limite se situe plutôt à 100 nm. Toutefois, des courbes granulométriques ont été réalisées sur différents types d'eaux pour caractériser les fractions supérieures à cette limite. Le LEE

---

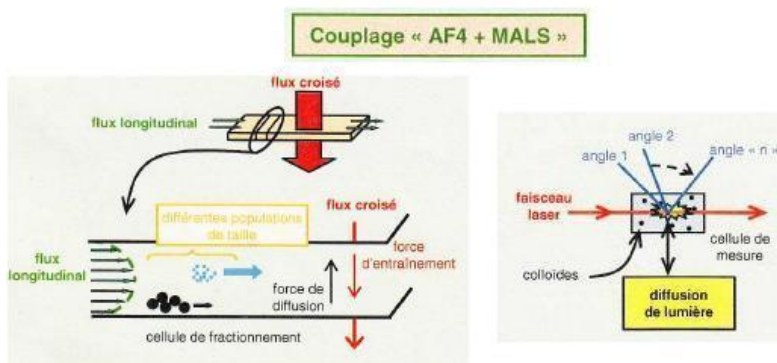
<sup>59</sup> Zgheib S, Moilleron R, Chebbo G (2012). Priority pollutants in urban stormwater: Part 1–Case of separate storm sewers, *Water Res.* 46(20), 6683–6692.

disposant depuis 2013 d'un granulomètre Mastersizer 3000 (gamme théorique de taille entre 10 nm et 3,5 mm de diamètre) (NF ISO 13320), le domaine de caractérisation a donc pu être étendu par rapport aux capacités du Mastersizer 2000 disponible auparavant (100 nm (quelques  $\mu\text{m}$  en pratique) – 500  $\mu\text{m}$ ).

Pour pallier l'imprécision de la mesure sur les tailles de particules inférieures à une dizaine de microns, un travail exploratoire a été réalisé en 2013 à l'aide de **la technique LIBS** (Laser-Induced Breakdown Detection) en collaboration avec SUBATECH (IMT Atlantique) pour déterminer la taille des colloïdes présents dans les eaux souterraines de la Prairie de Mauves (post-doctorat de A. Coulon, projet de recherche RS2E). Le résultat est présentée sur la fiche « Prairie de Mauves » dans le volume d'annexes.

Au sein de la communauté universitaire nantaise, des techniques de pointe sont maintenant accessibles pour la caractérisation de taille de particules :

- spectroscopie par diffusion dynamique de la lumière (DLS) (mesure de taille de particules entre 1 et 500 nm) (Centrale Nantes);
- spectroscopie par photocorrélation basée sur l'analyse du mouvement brownien des particules (particules comprises entre 6  $\mu\text{m}$  et 6 Angströms ;
- fractionnement d'échantillons liquides par couplage flux-force (FFF) couplé à un détecteur MALLS (multi-angle laser light-scattering) pour déterminer les masses molaires et les rayons associés des particules après séparation (Arronax) (**Figure 13**); il est possible de mesurer des particules de taille allant de  $\sim 0.5\text{nm}$  à 500 nm ;
- zétasizer NanoZS Malvern (IMN Univ. Nantes) pour mesurer la distribution granulométrique de colloïdes par MALLS et le potentiel zéta par effet Doppler.



**Figure 13** Schéma de principe de la séparation par couplage flux-force suivi d'une mesure au MALLS - Multi-angle laser light-scattering

### Techniques de fractionnement des eaux de ruissellement

Plusieurs techniques de filtration et ultrafiltration (par pression, centrifugation, tangentielle) ont été testés dans l'objectif de pouvoir corrélérer les concentrations en métaux trace présents dans les différentes fractions avec celles d'éléments majeurs constitutifs des fractions particulières naturelles (argiles, oxydes métalliques, matière organique) ou anthropiques des environnements routiers (produits de corrosion des véhicules (plaquettes de freins, carrosserie, pneumatiques), dégradation des infrastructures et de la

signalétique, produits de combustion des carburants, fluides) : Fe, Al, Mn, carbone organique total (COT), Si.

Un protocole préparatoire des eaux par décantation a été développé au cours de la thèse de B. Durin (2006)<sup>60</sup> pour éliminer la fraction particulaire grossière supérieure à une vingtaine de  $\mu\text{m}$ . Il consiste en une décantation de 2 litres d'eau, entreposée à 4°C dans l'obscurité pendant 12 h. Le temps de décantation a été approximée par le calcul du temps de décantation de particules soumises à la loi de Stokes.

L'ultrafiltration par centrifugation est réalisée dans des tubes d'un volume de 20 mL (Vivaspin 20, Vivasciences, membrane en polyéthersulfone) après filtration à vide sur des filtres en cellulose de taille de pore de 0,45 et 0,22  $\mu\text{m}$ .

Pour le fractionnement par pression, un dispositif de filtration sur vide sert à filtrer les échantillons sur une membrane en nylon de 20  $\mu\text{m}$  puis sur des membranes en esters de cellulose de 8, 1,2 et 0,45  $\mu\text{m}$  de diamètre de pore. Un système d'ultrafiltration frontale (cellule Amicon® modèle 8400) est utilisé ensuite avec des membranes à 100, 30 et 5 kDaltons (1 dalton =  $1,66 \cdot 10^{-27}$  kg - poids moléculaire), correspondant respectivement à environ 10 à 20, 5 et 1 nm.

Les fractions recueillies sont ensuite analysées en ICP-OES et ICP-MS pour déterminer les concentrations en éléments majeurs (ions majeurs, Fe, Mn, Si), en carbone organique et en métaux trace dans chaque fraction, afin d'établir des corrélations entre les constituants des phases porteuses potentielles théoriques (oxydes métalliques, matière organique, minéraux silicatés) (NFX 31-147, 07/1996).

#### Imagerie et micro-analyses des particules

Des observations en microscopie optique, en micro-fluorescence des rayons X ( $\mu\text{XRF}$ ) et au microscope électronique à balayage couplé à un système d'analyse par dispersion d'énergie (MEB-EDX) ont été réalisées sur les filtres issus de la cascade de fractionnement des eaux de ruissellement. Un échantillon de 200 mL est filtré successivement par des filtres Millipore® de tailles de pores décroissantes : 20, 8, 0,4 et 0,05  $\mu\text{m}$ . Une séparation des particules selon leur densité et leur propriété magnétique est appliquée en complément, ce qui conduit aux fractions suivantes : > 1000  $\mu\text{m}$ , 250 – 1000  $\mu\text{m}$  et légères ( $d < 1$ ), 250 – 1000  $\mu\text{m}$  denses ( $d > 1$ ) et non-magnétiques, 250 – 1000  $\mu\text{m}$  denses et magnétiques, 20 – 250  $\mu\text{m}$ , 8 – 20  $\mu\text{m}$  et 0,4 – 8  $\mu\text{m}$ . Les fractions 0,4 – 8  $\mu\text{m}$  ne sont observées qu'au MEB-EDX car difficilement observables au microscope optique et en  $\mu\text{XRF}$  du fait de la faible taille des particules. En effet, en  $\mu\text{XRF}$  le faisceau de rayons X étant d'environ 20-25  $\mu\text{m}$ , les analyses  $\mu\text{XRF}$  n'ont été effectuées que pour les particules supérieures à 25  $\mu\text{m}$ .

---

<sup>60</sup> **Thèse de B. Durin** soutenue en 2006 - Etude des mécanismes du transfert colloïdal des métaux lourds en milieu urbain et routier : application à un bassin d'infiltration des eaux de ruissellement. Univ. Nantes

Un microscope optique Nikon® LV100D équipé d'une caméra numérique DS 2MV a été utilisé pour l'observation des particules des eaux de ruissellement. Cet équipement permet un grossissement allant de 5 à 200 fois. Ainsi, les plus fines particules observables sont de l'ordre de la dizaine de microns.

Les observations en microscopie électronique à balayage (MEB) ont été réalisées à l'aide d'un appareil Hitachi® S 570 avec une pointe en LaB6 excitée par une source pouvant produire jusqu'à 30 kV. L'analyse se fait sous un vide poussé entre  $10^{-5}$  et  $10^{-6}$  torr. Avant passage au MEB, les échantillons sont préalablement métallisés à l'or pour être rendus conducteurs. Le MEB dispose d'une sonde EDX (analyse dispersive en énergie) qui permet une analyse qualitative de la structure de base. Lorsque la surface de l'échantillon est plane, une cartographie de plusieurs éléments est possible. Ceci permet d'une part, d'identifier certaines structures (minéraux, matière organique ...) et, d'autre part, renseigne sur l'organisation de ces structures les unes par rapport aux autres mais aussi sur la localisation des éléments par rapport à ces structures.

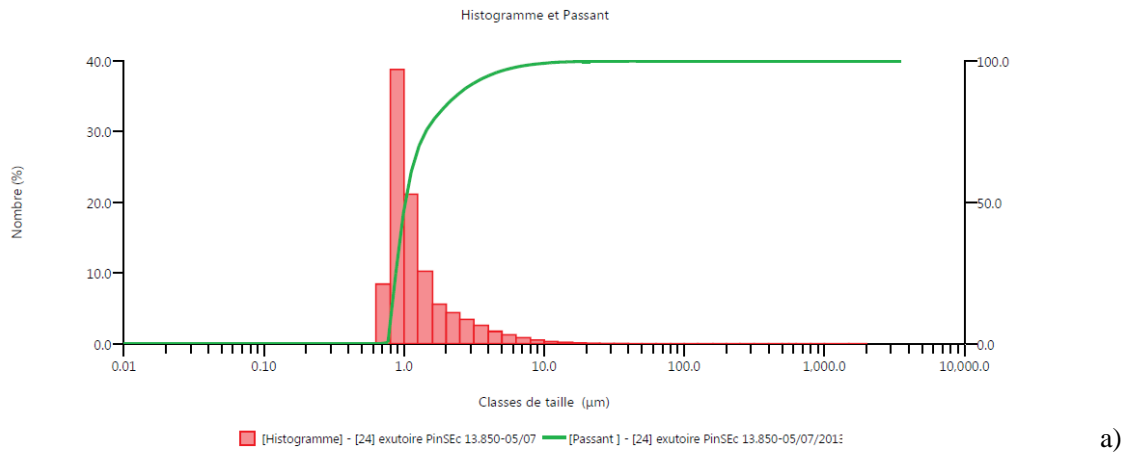
## **Apports des techniques mises en œuvre à la connaissance des particules colloïdales des eaux de ruissellement**

### Un pool de particules de taille colloïdale bien présentes mais une quantification en nombre difficile

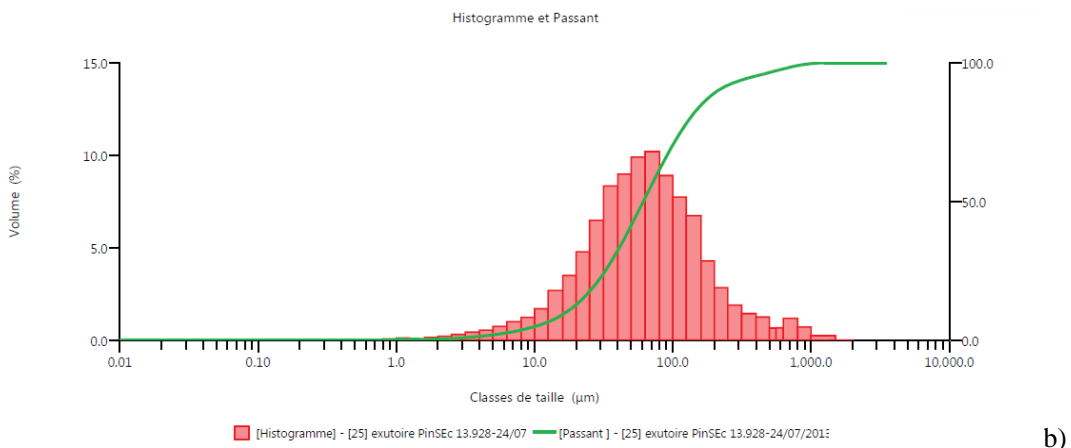
La distribution de taille des particules d'eaux de ruissellement a été étudiée à plusieurs reprises : eau du réseau séparatif du Pin Sec (Nantes ONEVU) (stage de F.Rehm, projet ANR INOGEV) (**Figure 14**), eau à l'exutoire d'un bassin versant routier (7 échantillons, projet ANR Trafipollu) (**Figure 15**), eau de toiture du CSTB (stage de J. Kassir) (**Figure 16**).

Des analyses granulométriques par diffraction laser peuvent être dégagées les conclusions suivantes :

- les courbes de distribution permettent de distinguer trois modalités de taille de particules : un mode colloïdal centré entre 10 et 20  $\mu\text{m}$  ( $D_{50}$ ), un mode principal en volume centré sur 60  $\mu\text{m}$  et un mode autour de 1 mm ;
- l'influence forte de l'échantillonnage sur la distribution des particules. Par exemple, les eaux prélevées dans le cadre du projet Trafipollu ( $n=7$ ) contiennent une forte proportion en volume de particules très fines, contrairement aux 2 autres sites, ce qui a été expliqué par la perte par décantation des particules les plus grossières juste avant l'endroit de prélèvement dans la canalisation. Par contre, ce biais a permis de mieux caractériser la fraction particulaire fine à très fine ;

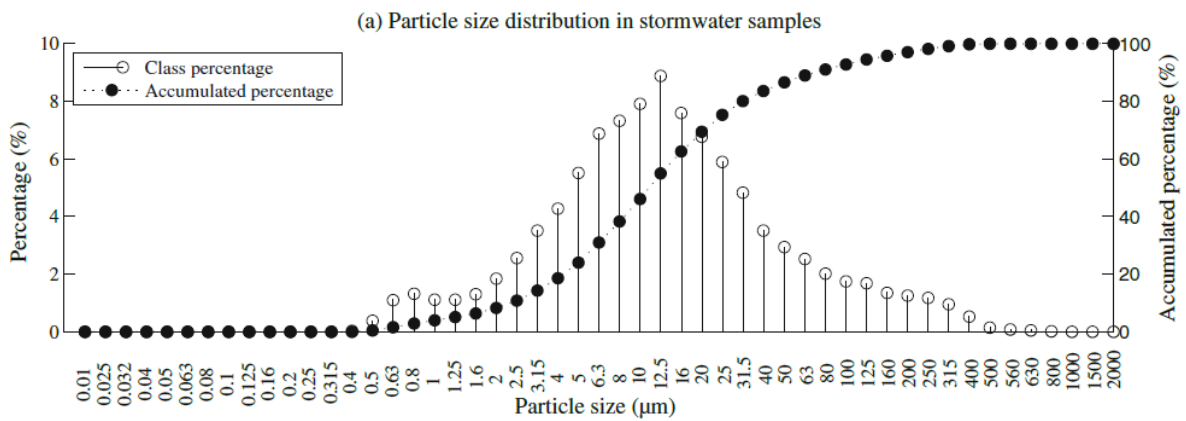


a)



b)

**Figure 14** Courbes granulométriques en volume et en nombre pour une eau de réseau séparatif (exutoire du quartier du Pin Sec Nantes) [stage F.Rehm]



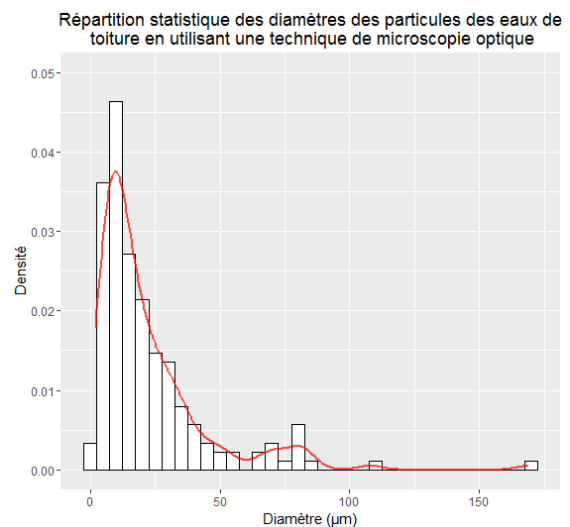
**Figure 15** Distribution de taille des particules en volume d'une eau de ruissellement d'un petit bassin routier [ACL25]

Cependant des limites fortes sont inhérentes à la technique de diffraction laser :

- quelle est l'influence des paramètres (indice d'absorption des particules, indice de réfraction des particules, indice de réfraction du dispersant 1,53) sur la mesure) ? Par manque de données, ces paramètres sont les paramètres standard ;
- la mesure sur les eaux de ruissellement est souvent réalisée dans des conditions de faible % d'obscurité en limite basse de la gamme optimale entre 4 et 8% ;
- l'application d'ultrasons pour désagréger les particules agglomérées peut entraîner une augmentation des particules de taille moyenne fragmentées par les ultrasons, voire réagglomérer certaines particules. Une variabilité forte des  $D_{50}$  et  $D_{90}$  est alors observée. Cela a été le cas pour des eaux de toiture du CSTB.

Pour pallier à ce problème, une observation des particules par microscopie optique couplée à une analyse d'image a été conduite. Une classification de particules selon leur taille a pu être obtenue, ainsi qu'une répartition statistique des diamètres de particules. Le résultat confirme la présence de très nombreuses petites particules, avec un diamètre entre 5 et 10  $\mu\text{m}$  conforme à la mesure granulométrique réalisée par diffraction laser. Une grande majorité des particules est inférieure à 50  $\mu\text{m}$  mais un mode à 70- 80  $\mu\text{m}$  est retrouvé. Cette technique avec l'analyse d'images est prometteuse car elle fournit une quantification des fractions particulaires.

Morphologie	taille
Particule organique d'origine biologique (bactérie, pollen)	10-100 $\mu\text{m}$
Particule sphérique (anneau)	100 $\mu\text{m}$
Agglomérat des particules	50-100 $\mu\text{m}$
Particules minérales	10-50 $\mu\text{m}$
Particules allongées	50-200 $\mu\text{m}$

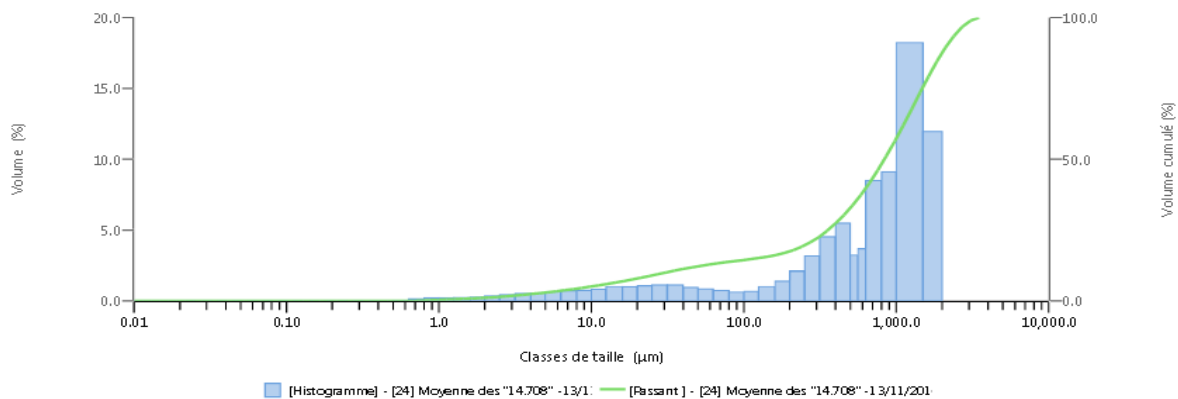


**Figure 16** Résultats de caractérisation en taille des particules présentes dans les eaux de ruissellement d'une toiture en zinc par microscopie optique et analyse d'image (site du CSTB Nantes, extrait du rapport de stage de J. Kassir dans le cadre de la thèse de A. Fardel)

Enfin, dans le projet Trafipollu, des granulométries de poussières de chaussées ont été réalisées à titre de comparaison avec les particules des eaux à l'exutoire qui correspondent théoriquement à la fraction des



particules lessivées (**Figure 17**). Un pool de particules centré sur une vingtaine de microns est bien retrouvé dans les poussières.



**Figure 17** Exemple de distribution de taille de particules dans des poussières de chaussées (bassin routier sur Le Perreux sur Marne (93), projet Trafipollu)

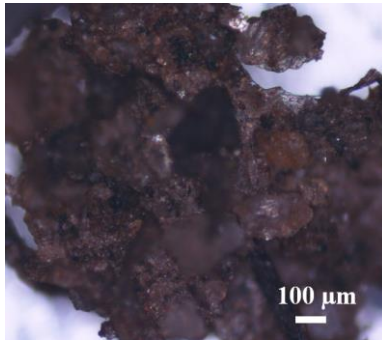
Une proposition de typologie des particules des eaux de ruissellement de taille comprise entre quelques micromètres et quelques millimètres

A l'aide de l'imagerie par microscopie optique et électronique à balayage couplée à des analyses par sonde EDX, une typologie des particules présentes dans les eaux de ruissellement du pont de Cheviré a été proposée en fonction de leur niveau d'agrégation et de leur nature.

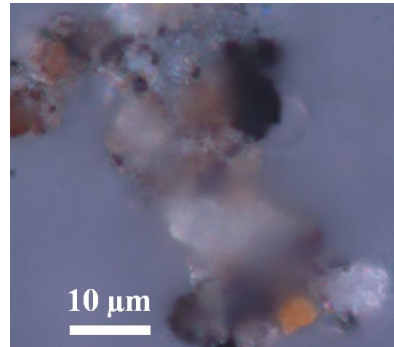
*Particules individuelles* (**Tableau 1**). La majorité des particules naturelles est d'origine minérale, les particules naturelles organiques étant essentiellement composées d'insectes ou débris d'insectes et de débris de végétaux de diverses tailles. Trois groupes de particules minérales, de taille variable, sont observés : des aluminosilicates, des particules siliceuses et des oxydes métalliques. Les aluminosilicates sont des feldspaths (K, Na), des argiles ou des micas (Fe, Mg). Certains feldspaths sont parfois recouverts d'une couche d'oxyde de fer. Les particules siliceuses sont essentiellement du quartz mais des squelettes siliceux de diatomées (algues unicellulaires) sont également observés. Dans le groupe des oxydes métalliques, des oxydes de fer d'une couleur rouge/orange-brique, sont principalement observés.

Les particules d'origine anthropique sont de nature très variée : particules de polystyrène, particules sphériques noires de composition Fe, Ti et Mn et de nombreuses billes de verre de tailles variées. Ces billes de verre sont utilisées comme dispositif rétro-réfléchissant dans les marquages sur chaussée ou encore pour les panneaux de signalisation. D'autres particules sont des fragments d'alliages contenant du fer, du chrome du cuivre et surtout du nickel. De nombreuses particules noires sont observées. Elles sont majoritairement organique mais la présence d'éléments tels que du fer, du titane, du manganèse ou encore du zinc est également détectée. Ces particules pourraient correspondre à des particules d'asphalte (bitume + granulats) ou encore des produits de corrosion de plaquettes de frein ou de pneumatiques.

*Particules agrégées.* Des agrégats de particules de nature variée sont aussi observés. Ils sont de taille comprise entre quelques dizaines et quelques centaines de  $\mu\text{m}$  (**Figure 18**).



a)

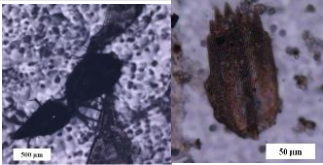
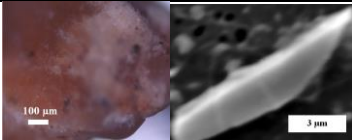
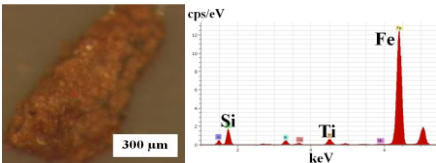
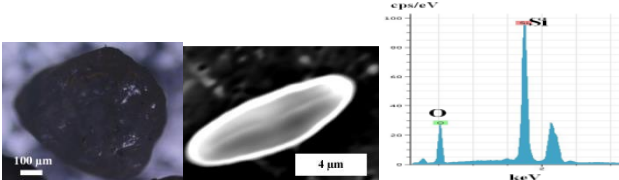
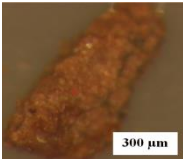


b)

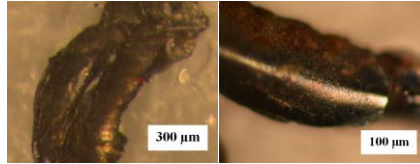
**Figure 18** Agrégats observés en microscopie optique : a) macroaggrégat et b) microaggrégat

Lors de cette étude, l'observation des particules inférieures à 10  $\mu\text{m}$  n'a pu se faire dans de bonnes conditions du fait des limites techniques du MEB disponible à l'IFSTTAR. Le MEB acquis en 2016 permet dorénavant l'observation de structures d'une centaine de nm voire moins, ce qui ouvre des perspectives nouvelles.

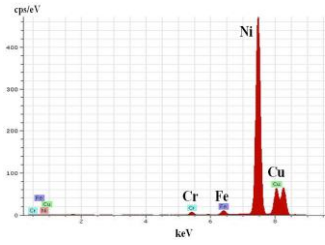
**Tableau 1** Particules individuelles observées dans l'eau de ruissellement du pont de Cheviré (extrait de la thèse de A. El Mufleh)

Origine	Taille (µm)	Nature	Images et spectre (microscopie optique/MEB/microanalyse par EDX)
naturelle	100 µm à 2 mm	Fragments organiques : insectes, végétaux	
naturelle	quelques µm à 1 mm	Minéraux : aluminosilicates	
		oxydes métalliques.	
		particules siliceuses (quartz, squelettes siliceux de diatomées)	
anthropique		polystyrène, billes/fragment de verre, bille noire et son spectre µXR (présence de titane)	

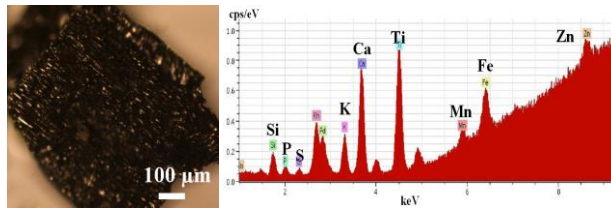
Alliages (présence de Ni/Cr/Cu)



100 µm  
à 1 mm



Particule d'enrobé (présence de Zn et Ti)



### Caractéristiques générales et spéciation colloïdale des métaux trace dans les eaux de ruissellement

L'étude de la répartition des métaux trace présents dans les eaux de ruissellement entre les différentes fractions particulières (spéciation physique) a été menée sur les eaux de ruissellement du pont de Cheviré (thèse de B. Durin, projet ECCO EMMAUS, [ACTI4]), du bassin de Boisbonne (Nantes, thèse de A. El Mufleh) et sur les eaux du réseau séparatif du Pin Sec (stage F. Rehm).

Parmi les trois méthodes testées (centrifugation, filtration par pression, filtration tangentielle), la technique de filtration-ultrafiltration par pression s'avère la plus adaptée pour des raisons techniques (facilité de mise en œuvre, volume de filtrat suffisant pour les différentes analyses) et analytiques (peu de relargage d'éléments trace par les membranes). Si un phénomène de colmatage et formation de gel à la surface des membranes lors de la filtration frontale peut survenir, des phénomènes stériques et électrostatiques ont été mis en évidence lors de la filtration tangentielle, ainsi qu'un relargage de métaux par les membranes. L'ultracentrifugation nécessite une connaissance très fine des conditions de vitesse à appliquer selon la nature des particules, ce qui s'avère difficile à appliquer au regard de la diversité de nature de particules présentes dans les eaux.

### Caractérisation globale des eaux de ruissellement

L'ensemble des articles de la littérature mettent en avant la variabilité très forte des paramètres globaux des eaux de ruissellement de chaussées, du fait d'une part de la variabilité de nature des surfaces ruissellées sur les différents bassins versants et d'autre part de la nature des composants naturels et anthropiques présents dans les eaux. Cette variabilité se traduit de différentes façons et rend difficile les comparaisons directes des eaux, sauf en cas de sélection d'un ensemble de bassins en fixant certains paramètres (taille de bassin versant, taux de véhicules/jour) (ex . Projet ANR INOGEV) : variabilité spatiale entre bassins de géométrie comparable mais de contexte géologique, types de surface et d'usage des sols différents, variabilité de la nature des polluants, variabilité temporelle (entre années et saisonnière), variabilité en fonction des caractéristiques hydrologiques des évènements pluvieux (intensité, durée de l'évènement, période de temps sec antérieur...), variabilité intra-évènement (effet de premier flux)...

Toutefois, de grandes tendances émergent de la littérature (**Tableau 2**) : le pH se situe toujours dans la gamme de pH des eaux naturelles gouverné par la géologie locale ; les matières en suspension et le carbone organique sont corrélés, la conductivité électrique est dépendante des espèces dissoutes mais elle est également sensible à la présence des MES en suspension. Les épisodes de salage peuvent conduire à des conductivités électriques extrêmement fortes dans les ouvrages (ex.  $24 \text{ mS.cm}^{-1}$  après un salage dans la 1<sup>ère</sup> pluie).

**Tableau 2** Paramètres physico-chimiques et physiques d'eaux de ruissellement de chaussées sur Nantes et comparaison avec une revue de la littérature (Event Mean Concentrations)

Lieu de prélèvement	pH	Conductivité ( $\mu\text{s.cm}^{-1}$ )	COT ( $\text{mg.L}^{-1}$ )	MES ( $\text{mg.L}^{-1}$ ) (NF EN 872)	Conditions hydriques de prélèvement
Cheviré (n=11) [Durin et al. 2007]	6,7 (6,2-7,1)	436 (177-748)	18 (3-40)	407 (3-1340)	Sur 2 ans (toutes configurations – pluie d'orage, pluie après salage du pont, pluies moyennes...)
Cheviré (n=1) (th. A. El Mufleh 2011)	6,9	1298	43,7	91,4	Juin - Temps sec très long
Boissonne (n=1) (th. A. El Mufleh 2011)	7	116	7,3	31,2	Juillet - Temps pluvieux long
Revue de la littérature <sup>61</sup> (n=5 à 15)	6,4-7,9	108-2436	63-146 (COD)	66-937	

#### Spéciation physique des métaux trace entre fraction dissoute et particulaire

Les remarques sur la variabilité des paramètres physico-chimiques des eaux de ruissellement de chaussées s'appliquent aussi aux concentrations en métaux traces. (Harrison and Wilson, 1985)<sup>62</sup> précisent que "a "first flush" effect is often seen for the dissolved components, whereas, the particle-associated elements show a more complex temporal variation related to storm intensity and the flushing of large-grained sediment through drainage systems". Les données disponibles dans la littérature (depuis les années 1970...) sur la répartition des métaux traces principaux présents dans les eaux de ruissellement convergent toutefois vers des conclusions partagées qui peuvent se traduire par l'ordre suivant en fonction de la proportion de l'élément sous forme particulaire [**Tableau 3**] : Pb (90%) > Cd,Cr>Cu, Zn > Ni.

Les différences de spéciation entre les métaux doivent être recherchés au niveau de leur source : véhicules, infrastructures mais pas seulement, par exemple plus de 50% de la pollution particulaire en Pb en environnement routier proviendrait actuellement des sources industrielles, après l'interdiction du plomb comme agent antidétonant dans les carburants<sup>63</sup>. Le cuivre, quant à lui est un élément majeur des plaquettes de freins, émis sous forme de produits d'abrasion<sup>64</sup>. Les processus géochimiques contrôlent aussi la

<sup>61</sup> Göbel P., Dierkes C., Coldewey W.G. (2007). Storm water runoff concentration matrix for urban areas, *J. Contam. Hydrol.* 91, 26-42.

<sup>62</sup> Harrison RM, Wilson SJ, (1985) The chemical composition of highway drainage waters I. Major ions and selected trace metals, *Science of The Total Environment*, 43, 1-2, 63-77.

<sup>63</sup> Das A, Krishna KVSS, Kumar R et al. (2018) Lead isotopic ratios in source apportionment of heavy metals in the street dust of Kolkata, India, *Int. J. Environ. Sci. Technol.* 15: 159. <https://doi.org/10.1007/s13762-017-1377-0>

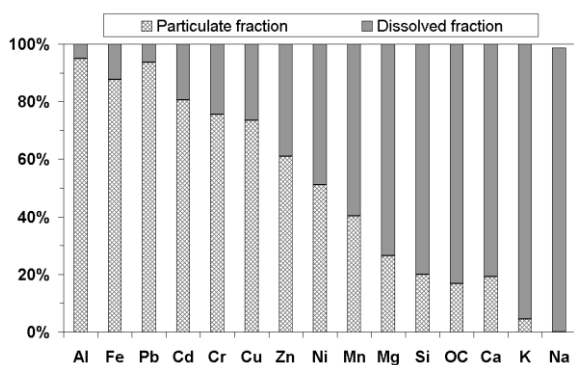
<sup>64</sup> McKenzie ER, Money JE, Green PG, and Thomas M (2009) Young Metals associated with stormwater-relevant brake and tire samples, *Sci. Total Environ* 407(22), 5855-5860

spéciation des métaux en solution: précipitation de carbonates, adsorption ou relargage à partir des oxydes métalliques, complexation avec la matière organique dissoute...<sup>65</sup>

**Tableau 3** Distribution des 6 métaux majeurs des environnements urbains entre fraction dissoute et fraction particulaire des eaux de ruissellement

Pourcentage de forme particulaire	Cd	Cr	Cu	Ni	Pb	Zn
Maitland Interchange Floride 1985 (n=16) <sup>48</sup>	42	67	47	89	94	86
Pont de Cheviré (n=11) [Durin et al. 2007]	82	85	75	50	95	60
Exutoire Quartier Pin Sec (n=15) [Ruban et al. 2003]	70	40	70	40	90	47
Multisite INOGEV <sup>45</sup> (n= 7 à 24)	63± 30	85± 11	73± 13	54± 18	94± 4	60± 23

La distribution des éléments majeurs a été plus rarement étudiée dans la littérature (sauf pour le fer). Hors l'identification des phases porteuses des métaux passe par celle des éléments majeurs présents dans les particules. Il est donc aussi important de quantifier les majeurs dans les deux fractions. Les résultats de l'étude sur le bassin de Cheviré confirment que Ca, Na, Mg et K, qualifiés de cations majeurs dans les eaux naturelles, sont présents sous forme dissoute dans les eaux de ruissellement, que Al et Fe sont des constituants des phases solides >0,45 µm et que le carbone organique, la silice et Mn sont présents majoritairement dans la fraction inférieure à 0,45 µm.



**Figure 19** Distribution des éléments majeurs et trace et du carbone organique de l'eau de ruissellement du pont de Cheviré entre fraction dissoute et particulaire (coupure à 0,45 µm) – Valeurs moyennes sur 11 évènements pluvieux

Les tables de corrélation et les analyses ACP donnent des informations sur la présence conjointe des métaux trace et des éléments majeurs dans les fractions dissoute et particulaire.

<sup>65</sup> Morrison GMP, Revitt DM, Ellis JB (1990) Metal speciation in separate stormwater systems, *Wat. Sci. Tech.* 22(10/11), 53-60

Cuivre Son coefficient de corrélation est élevé avec le carbone organique (0,93 avec le COT et 0,89 avec le COD). Ce résultat est conforme au processus de complexation du cuivre avec la matière organique dissoute mis en évidence par voltamétrie et séparation sur résine<sup>66</sup>.

	Al	Fe	Mn	Ca	K	Mg	Na	Zn	Cd	Cr	Cu	Ni	Pb	Si	MES	COT
Al	1															
Fe	0,9642	1														
Mn	0,8654	0,8975	1													
Ca	0,6171	0,6747	0,8737	1												
K	0,0518	0,0984	0,3803	0,6964	1											
Mg	0,547	0,5841	0,7847	0,9357	0,8173	1										
Na	0,4514	0,5078	0,6048	0,7043	0,6235	0,8388	1									
Zn	0,6825	0,5975	0,5642	0,577	0,4233	0,6093	0,3905	1								
Cd	0,8655	0,839	0,8925	0,7922	0,2528	0,7241	0,6651	0,7117	1							
Cr	0,9313	0,9087	0,8172	0,5535	0,0438	0,4631	0,2952	0,6161	0,7275	1						
Cu	0,8712	0,9126	0,9368	0,7397	0,12	0,5936	0,419	0,497	0,8192	0,8382	1					
Ni	0,876	0,8974	0,9303	0,885	0,4632	0,8201	0,6119	0,7774	0,8306	0,8317	0,8566	1				
Pb	0,4391	0,249	0,195	-0,014	-0,099	0,0518	-0,005	0,5239	0,5055	0,367	0,1228	0,2176	1			
Si	0,5269	0,6225	0,7771	0,872	0,2519	0,6727	0,5905	0,3809	0,5942	0,5759	0,7665	0,7999	-0,251	1		
MES	0,4318	0,4375	0,6276	0,6025	0,4373	0,6911	0,6911	0,2257	0,7554	0,2404	0,4821	0,4664	0,2779	0,0312	1	
COT	0,4658	0,2602	0,8749	0,8756	0,8663	0,8933	0,9618	0,5918	0,8867	0,1574	0,9372	0,6703	0,7419	0,5591	0,7705	1

	COD	Al	Fe	Mn	Ca	K	Mg	Na	Si	Zn	Cd	Cr	Cu	Ni	Pb
COD	1														
Al	0,434276	1													
Fe	0,140226	0,231742	1												
Mn	0,676135	0,269596	0,845746	1											
Ca	0,850311	-0,15473	0,680816	0,709786	1										
K	0,819908	-0,15148	0,554039	0,611787	0,920646	1									
Mg	0,896872	0,011643	0,745764	0,753957	0,953567	0,928424	1								
Na	0,97181	0,256833	0,951847	0,805573	0,781038	0,650363	0,85838	1							
Si	0,616293	-0,30472	0,524358	0,456555	0,881024	0,783653	0,854653	0,6815	1						
Zn	0,430591	0,393286	-0,02154	-0,08147	0,091078	0,166067	0,147688	0,088397	0,094981	1					
Cd	1,07E-16	0,757481	0,837088	0,621052	0,423552	0,353571	0,604743	0,825727	0,311387	0,052029	1				
Cr	0,59949	0,171676	0,450082	0,719322	0,536296	0,646806	0,620907	0,442653	0,226446	0,076805	0,313258	1			
Cu	0,892768	0,188668	0,069795	0,08128	0,199056	0,243488	0,345483	0,220285	0,301479	0,472473	0,30241	0,323964	1		
Ni	0,909021	0,051049	0,730996	0,714752	0,910749	0,903328	0,930535	0,808967	0,787868	0,243449	0,510098	0,558052	0,169542	1	
Pb	0,183017	0,068099	-0,02249	0,139543	-0,26025	-0,35958	-0,31106	-0,17861	-0,51082	-0,0482	-0,14676	0,292048	0,02135	-0,33863	1

### Evaluation de l'importance de la fraction colloïdale dans la spéciation physique des métaux

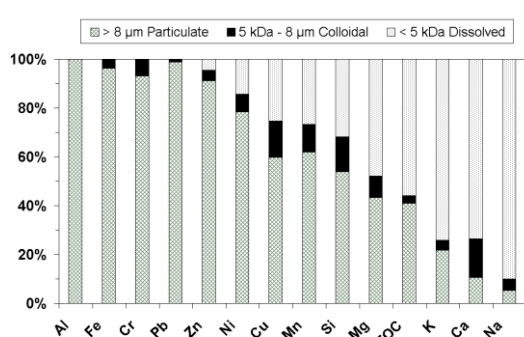
L'analyse de la distribution des éléments majeurs et trace dans les fractions particulières, colloïdales et dissoutes des eaux de Cheviré est original. Très peu d'articles ont été publiés sur la distribution des métaux particuliers et leur corrélation avec les éléments majeurs, malgré l'intérêt d'avoir des connaissances sur la phase colloïdale mobile et facilement mobilisable. *De telles données consolidées permettraient de proposer des hypothèses nouvelles pour expliquer les faibles taux de rétention de certains éléments métalliques comme le cuivre dans les ouvrages de traitement des eaux.*

Les essais de filtration- ultrafiltration réalisés sur les eaux de Cheviré ont montré que les coupures à 0,22 µm, 100 et 30 kDa n'avaient pas d'influence sur les concentrations. Les coupures dans le domaine colloïdal ont été regroupés pour exprimer le fractionnement en 3 fractions : inférieur à 5 kDa (solutés, molécules, acides fulviques), entre 5 kDa et 8 µm (domaine colloïdal) et >8 µm (domaine des particules décantables). La fraction colloïdale ne représente pas globalement plus de 15% des concentrations, sauf pour le cuivre et le carbone organique. Les suspensions colloïdales ont un niveau de stabilité faible et de ce fait les limites

<sup>66</sup> Yousef et al. (1985) Consequential species of heavy metals in highway runoff, *Transportation Research Record* 1017.



expérimentales sont très fortes, ce qui pourrait expliquer partiellement les résultats très hétérogènes obtenus sur les eaux de ruissellement. La variabilité des teneurs en MES dans les eaux pourrait aussi expliquer la large gamme de valeurs. La durée de l'expérimentation n'a pas permis de mettre en œuvre suffisamment d'essais pour réduire l'influence de cette variabilité.



Element	Particulate fraction (%) (>8 µm)	Particulate fraction (%) (>5 µm) <sup>67</sup>	Colloidal fraction (%) (5 KDa – 8 µm)	Dissolved fraction (%)
Al	97-100		0-3	0
Fe	96-100		0-4	0
Cd	85-100	66	0-15	0
Cr	85-100	50	0-15	0
Pb	85-100	95	0-15	0
Mn	52-100		0-11	0-41
Zn	65-94	82	2-15	4-21
Ni	72-98	73	2-7	0-26
Si	52-74		1-14	26-42
TOC	0-41		3-31	44-70
Mg	33-78		3-9	2-59
Cu	22-96	73	2-73	3-26
Ca, Na, K	5-69		2-16	20-92

Figure 20 – Exemple de distribution des éléments majeurs et trace entre les fractions particulaires, colloïdales et dissoutes de l'eau de Cheviré pour l'évènement pluvial du 16 mai 2006 [ACTI7] et variation de la distribution (%) pour 4 prélèvements.

## Conclusions

L'utilisation des différentes techniques de caractérisation a permis d'avancer d'un point de vue méthodologique sur deux questions peu étudiées dans la littérature :

- 1) quelle est la typologie des particules présentes dans les eaux de ruissellement pour aller au-delà de la boîte noire « fraction particulaire » et peut-on observer des phases porteuses de métaux trace ?
- 2) quelle importance de la fraction colloïdale dans la spéciation des métaux trace et peut-on établir des corrélations avec des phases porteuses ?

D'un point de vue expérimental, il faut être très vigilant à l'évolution des suspensions colloïdales des eaux. Un traitement des échantillons très rapide au laboratoire après prélèvement permet de limiter les biais expérimentaux lorsque les sites d'étude sont proches du laboratoire. Des méthodes de pré-traitement in-situ d'eaux sont utilisées dans la littérature pour concentrer la fraction colloïdale. Des filtrations à 0,45 µm et 0,22 µm sont aussi couramment pratiquées sur le terrain mais pour préparer des volumes de l'ordre de 10 à

<sup>67</sup> Baumann K, Stolpe B, Pettersson TJR and Hassellöv M (2011) Colloidal nanomaterials as metal carrier phases in road runoff: implications for conventional stormwater treatment technologies, *12<sup>nd</sup> International Conference on Urban Drainage*, Porto Alegre/Brazil, 11-16 September

20 mL dans un objectif d'étude du comportement de quelques éléments métalliques seulement. Les capteurs passifs quant à eux permettent d'accéder à des valeurs de la fraction labile des métaux. La question de la stabilité des eaux de ruissellement vis-à-vis de la fraction colloïdale se pose également dans le cas des variations des conditions physico-chimiques des milieux, notamment en période hivernale, lors d'opérations de salage des routes. Les pluies succédant à l'évènement neigeux ou le gel sont très chargées en sel et pourraient perturber l'état d'équilibre de la suspension. La thèse de L. Barbier en cours de finalisation au CEREMA Nancy devrait apporter des éléments sur ce point.

Les méthodes de caractérisation des particules utilisées ont permis d'accéder à des données qualitatives par microscopie optique et microscopie électronique à balayage. Des publications récentes mettent en œuvre ces mêmes techniques, en ciblant sur les fractions magnétiques<sup>68</sup>. La technique de fractionnement par couplage flux-force (FFF) couplé à de l'analyse chimique pourrait être aussi intéressante pour coupler taille de particules et concentrations en métaux<sup>67</sup>. On peut noter l'intérêt pour les nanoparticules dans les eaux que les méthodes actuelles peuvent permettre de mieux visualiser. Cependant les résultats sont peu nombreux et justifient des développements, notamment pour étudier les transferts entre source et cible et étudier les potentiels changements de spéciation des ETM [ACL25] (cf Chapitre 3)

Enfin, des équipes se saisissent de la difficile question de la prévision des flux de particules et de polluants associés à l'échelle du bassin versant, en proposant des modèles dont la validation s'appuie sur de l'expérimentation<sup>69</sup>.

---

<sup>68</sup> Bourliva A, Papadopoulou L, Aidona E (2016) Study of road dust magnetic phases as the main carrier of potentially harmful trace elements, *Sci. total environ.*, 553, 380-391

<sup>69</sup> O'Sullivan A, Charters F, Cochrane T (2017) Stormwater Contaminant Load Monitoring (2016) and Modelling of the Heathcote Catchment and Six Representative Subcatchments, Report prepared for Christchurch City Council Report No: 2017-5 ISSN: 1172-9511

## Apport de techniques couplées à la caractérisation des sédiments de l'assainissement pluvial

### Etat des connaissances et questions scientifiques traitées sur les sédiments de l'assainissement pluvial

Les premières études sur la caractérisation des sédiments de l'assainissement pluvial ont été menées dans les années 70<sup>70</sup> et ne concernaient que la quantification de quelques éléments métalliques (Cu, Pb, Zn). Dans les années 80, les études apportent des données sur la migration des métaux dans les ouvrages, avec souvent une caractérisation conjointe de sols de bord de route<sup>71</sup>, quelquefois avec des indications de granulométrie et de pH. Dans les années 90, apparaissent les premières données sur les teneurs en hydrocarbures<sup>72</sup> et la spéciation des métaux trace<sup>73</sup>.

La spéciation des métaux dans les sédiments et sols de bord de route a été étudiée par des méthodes d'extraction chimique simple et séquentielle de type schéma opérationnel du BCR ou de Tessier (1979). Ces procédures étant basées sur les différentes phases solides classiquement observées dans des sols naturels (carbonates, phases argileuses, oxydes métalliques...), même si Tessier avait validé sa méthode sur des sédiments fluviaux, elles ont rapidement été mises en débat par rapport à leur utilisation pour des matrices comportant de nombreux éléments d'origine anthropique.

Ensuite, des études plus complètes ont porté sur les volumes de sédiments collectés, leurs caractéristiques biologiques, physiques, chimiques et parfois écotoxicologiques, la mobilité potentielle des contaminants et les voies de traitement (e.g., Pétavy 2009, Weinstein et al. 2010; Gallagher et al. 2011; Tixier et al. 2012). En même temps, la caractérisation des sédiments devenait plus poussée vis-à-vis des polluants organiques et métalliques et l'utilisation de méthodes de microscopie pour aller vers l'identification des particules constitutives des sédiments<sup>74,75</sup> Durand et al. 2003.

---

<sup>70</sup> Nightingale HI (1975) Lead, Zinc, and Copper in Soils of Urban Storm-Runoff Retention Basins. *J. American Water Works Association* 76(8), 443-446

<sup>71</sup> Harrison RM, Laxen DPH, and Wilson SJ (1981) Chemical associations of lead, cadmium, copper, and zinc in street dusts and roadside soils, *Environmental Science & Technology* 15 (11), 1378-1383 - Wigington Jr. PJ, Randall CW, Grizzard TJ (1983) Accumulation of selected trace metals in soils of urban runoff detention basins, *J. American Water Works Association* 19(5), 709-718 - Nightingale HI (1987) Accumulation of As, Ni, Cu, and Pb in retention and recharge basins soils from urban runoff. *J. American Water Works Association* 24(3), 663-672

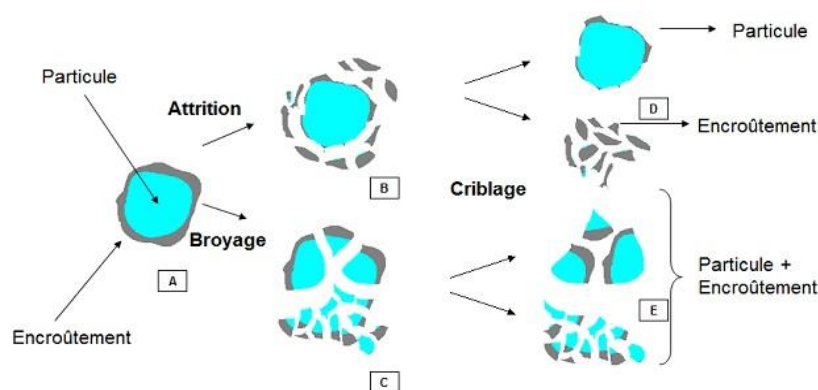
<sup>72</sup> Gautier A (1998) Contribution to the knowledge of the functioning of stormwater infiltration devices, Doctoral dissertation, INSA de Lyon

<sup>73</sup> Yousef YA, Hvitved-Jacobsen T, Sloat J, Lindeman W (1994) Sediment accumulation in detention or retention ponds. *Sci Total Environ* 147:451-456- Legret M, Le Marc C, Demare D, Colandini V (1995) Heavy metals contamination in a decantation basin receiving road runoff. *Environ Technol* 16:1049-1060

<sup>74</sup> Dechesne M, Barraud S, Bardin JP (2004) Spatial distribution of pollution in an urban stormwater infiltration basin. *J Contam Hydrol* 72:189-205

Le LEE a largement contribué dès le début des années 1990 à ces travaux sur la base de sites expérimentaux sur Nantes (bassin de Cheviré, pont et ses abords sur l'A11 au nord de Nantes) et en région parisienne (RN10, RN12) (thèse de C. Pagotto 1999, C. Delmas 2000 C. Durand 2003). L'équipe a produit en collaboration avec le BRGM, les premières observations MEB-EDX de particules fractionnées par densité ou par séparation magnétique passant ainsi de la vision 'boîte noire' des schémas d'extraction à une vision plus naturaliste des matériaux<sup>75</sup>. Dans le même temps, la caractérisation fine de la matière organique après fractionnement selon le protocole IHSS confirmait la présence de résidus de végétaux dans la fraction 'acides humiques' et d'une composante bactérienne dans l'humine et les acides humiques. La matière organique anthropique étant majoritairement concentrée dans la fraction lipidique (hydrocarbures aliphatiques dérivés des carburants diesels ou d'huiles de moteurs, HAP, produits de combustion pyrolytique) extraite sur l'échantillon brut (Durand).

Sur la base de ces nouvelles connaissances acquises, un procédé de traitement des sédiments a été mis au point en vue d'une ré-utilisation en génie civil (thèse Pétavy 2007, Pétavy et al., 2009). Seul un processus d'attrition appliqué au sédiment (couplage d'un procédé de mélange homogène et d'une abrasion de surface) a permis une séparation correcte des fractions fines contaminées et d'une fraction sableuse à niveau de contamination faible (**Figure 21**). La gangue organique recueillie était constituée d'humine 57,6% d'acides humiques 18%, d'acides fulviques 4,5% et de lipides 20%.



**Figure 21.** Principe de l'attrition et comparaison avec un procédé de broyage (source : thèse de F. Pétavy, 2009)<sup>48</sup>

Cependant, même si l'étude de F. Pétavy mettait en évidence un « encroûtement' des grains sableux du sédiment, le résultat 'inhabituel' observé entre granulométrie et teneurs en ETM dans plusieurs études ne pouvait être complètement expliqué (thèse C. Durand, B. Durin, Badin). En effet, la granulochimie réalisée sur des échantillons de sédiments de bassins de rétention-infiltration à Nantes et à Lyon, n'avait pas mis en évidence de corrélation nette entre taille de particules et teneurs en ETM, résultat s'écartant de la théorie selon laquelle la charge polluante augmente avec la diminution de taille des particules (la fraction particulaire la plus fine étant toutefois la plus chargée dans ces ouvrages).

<sup>75</sup> Clozel B, Ruban V, Durand C, Conil P (2006) Origin and mobility of heavy metals in contaminated sediments from retention and infiltration ponds. *Applied geochemistry*, 21, 1781-1798.

De plus, l'application de schémas d'extraction type BCR pour évaluer la mobilité des polluants métalliques et la nature des phases porteuses ne pouvait être satisfaisant face à un matériau composé d'un mélange de particules minérales et organiques d'origine naturelle, mais aussi d'une forte proportion de particules anthropiques issues de la corrosion des véhicules (plaquette freins, carrosserie, ), des infrastructures (fragments de bitume, particules métalliques ...).

Aussi avons-nous avec Véronique Ruban proposé un nouveau travail de doctorat (th. A. El Mufleh) autour de deux questions:

- **comment et sur la base de quels paramètres pouvait-on expliquer la relation particulière entre taille de particules et teneurs en polluants métalliques et organiques dans les sédiments ?**
- **à l'aide de quelles méthodes pouvait-on aller plus loin sur la caractérisation des phases porteuses de polluants et de la répartition des ETM et HAP associés (spéciation particulaire), ainsi que de leur mobilité ?**

Ces travaux avaient une double finalité: 1) évaluer la pertinence et la faisabilité de fractionnements spécifiques pour éliminer les fractions à charge polluante importante selon la nature des polluants; 2) par la caractérisation des phases constitutives des sédiments, aller vers le modèle géochimique nécessaire à la compréhension des transferts de polluants.

### **Méthodes de désagrégation, d'extraction/séparation et d'observation qualitative couplées pour la caractérisation de la spéciation particulaire des ETM et HAP**

#### Désagrégation par ultra-sons et sonification avant granulométrie laser

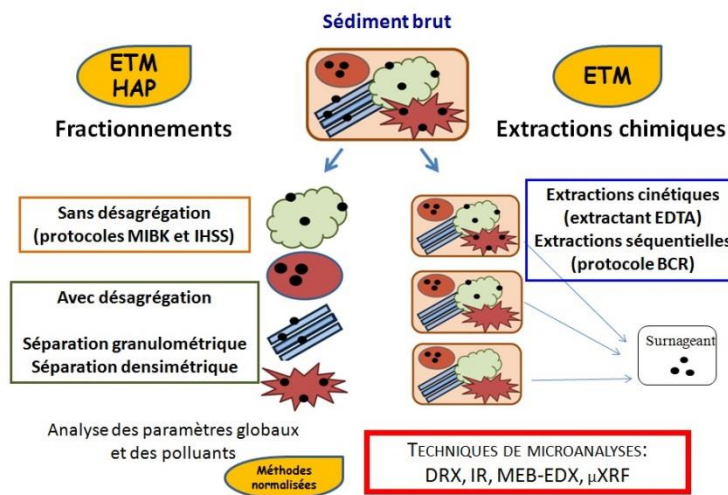
L'état d'aggrégation des sédiments influençant fortement la répartition des polluants et la traitabilité des matériaux, il s'agissait de définir les tailles élémentaires des agrégats et les conditions expérimentales pour atteindre un niveau de désagrégation suffisant pour l'étude des phases porteuses.

L'optimisation de la méthode par ultrasons pour désagréger les matériaux a d'abord été testée pour étudier le rôle des différents constituants des sédiments sur l'état d'aggrégation des matériaux des bassins d'infiltration de Chevire (Nantes) et de Django-Reinhardt (DjR – Lyon) [ACL8]. Des ultrasons ont été appliqués pendant une durée de 2 à 10 min après détermination de la puissance optimale.

Une désagrégation par sonification a ensuite été testée lors de la thèse de A.El Mufleh par référence à la méthode appliquée en sciences du sol. Les résultats obtenus ont été confortés par l'utilisation de l'imagerie MEB, ce qui était novateur en 2010 dans le domaine de l'assainissement pluvial.

## Caractérisation de la spéciation particulaire par fractionnements et extractions couplés à de l'imagerie et des micro-analyses

La méthodologie proposée est basée sur la comparaison de méthodes indirectes : extractions séquentielles et cinétiques, et directes : fractionnements physiques et chimiques (**Figure 22**).



**Figure 22** Méthodologie d'étude de la spéciation particulaire des polluants métalliques et organiques dans les sédiments de bassin de rétention-infiltration d'eaux de ruissellement urbaines (extrait de la thèse de A. El Mufleh)

Dans les méthodes d'extraction chimique, le polluant est sorti de son contexte structural à l'aide d'extractants spécifiques de la nature du polluant ou de la phase solide ciblée. L'hypothèse d'association du polluant avec une phase solide précise est indirecte dans la mesure où l'analyse du polluant est réalisée dans la solution. Les extractions mises en œuvre pour les ETM<sup>76</sup> sont

- un schéma d'extractions séquentielles par application d'extractants de force croissante (schéma BCR) ; les extractants du schéma du BCR ont pour objectif de libérer progressivement les polluants métalliques des phases échangeables (argiles, matière organique) et facilement solubilisables (carbonates), des phases organiques, des oxydes métalliques et de la fraction résiduelle (phases bien cristallisées) ;
- et un schéma d'extraction cinétique à l'acide éthylène diamine tétra acétique (EDTA). Ce réactif, non spécifique à une phase solide, est utilisé pour estimer les teneurs totales en ETM extractibles par les plantes. La facilité d'extraction va être estimée par la cinétique d'extraction et les polluants seront qualifiés de labiles, non labiles ou non extractibles.

<sup>76</sup> Quevauviller P, Ure A, Muntau H, Griepink B (1993) Improvement of analytical measurements within the BCR programme : single and sequential extraction procedures applied to soil and sediment analysis. *Intern. J. Environmental and Analytical Chemistry* 51, 129-134

Les méthodes de fractionnement consistent, quant à elles, à séparer les phases solides en fonction de leurs propriétés physicochimiques (taille, densité, solubilité...) <sup>77</sup>. Deux fractionnements physiques sont appliqués sur les matériaux :

- un fractionnement granulométrique pour séparer l'échantillon en fonction de la taille des particules qui le composent ; il s'effectue après application d'une période de 9 minutes de sonification pour désagréger le matériau ;
- un fractionnement densimétrique par utilisation de solutions de polytungstate de sodium, préparées de façon à obtenir 4 solutions de densité croissante (1,9 ; 2,3 ; 2,6 ; 2,8). Le schéma en série de mélange du polytungstate avec le sédiment conduit à une séparation en 5 fractions de densité croissante (associée pour les matériaux naturels à des minéralogies différentes) ( $x < 1,9$  ;  $1,9 < x < 2,3$  ;  $2,3 < x < 2,6$  ;  $2,6 < x < 2,8$  ;  $x > 2,8$ ).

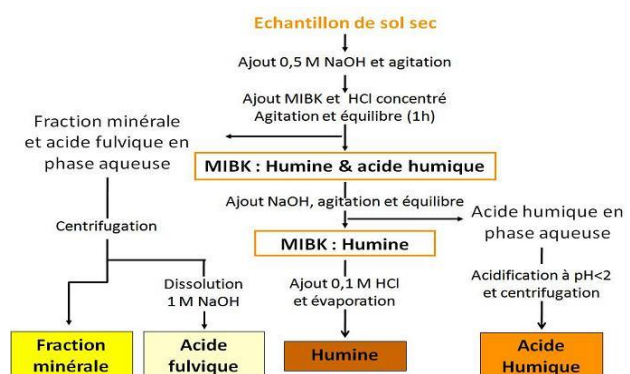
Les sédiments étant composés d'une fraction organique importante (15% en masse) et cette fraction ayant théoriquement une affinité forte pour certains ETM, deux protocoles de fractionnement de la matière organique sont également appliqués pour isoler les substances humiques.

Le premier protocole est un protocole classique de séparation des fractions organiques d'un sol selon leurs propriétés de solubilité en fonction du pH (protocole IHSS). Ainsi, la fraction humine (MO résiduelle très faiblement dégradable) n'est pas soluble quelque soit le pH de la solution. Les acides humiques sont insolubles en milieu basique et les acides fulviques restent en solution quelque soit le pH (molécules de faible taille).

Le deuxième protocole a été rarement utilisé dans la littérature. Il est basé sur l'utilisation de méthylisobutylcétone (MIBK) <sup>78</sup>. Il présente l'avantage de conduire, dans le cas des sols naturels, à une meilleure séparation de la fraction minérale, par rapport au protocole IHSS (**Figure 23**).

Que ce soit sur le sédiment brut ou sur les fractions obtenues suite aux différentes méthodes d'extraction et de fractionnement, les teneurs en polluants ont été obtenues à l'aide de méthodes d'analyse normalisées en ICP-OES, ICP-MS et/ou GC-MS.

**Figure 23** Schéma du fractionnement chimique au MIBK (méthylisobutylcétone) (adapté de Rice et McCarthy, 1989) – extrait de la thèse de A. El Mufleh, 2012 [ACL17])



<sup>77</sup> Cornu S and Clozel B (2000). Extractions séquentielles et spéciation des éléments trace métalliques dans les sols naturels. Analyse critique. *Etude et Gestion des sols*, 7, 179-189

<sup>78</sup> Rice et McCarthy, 1989

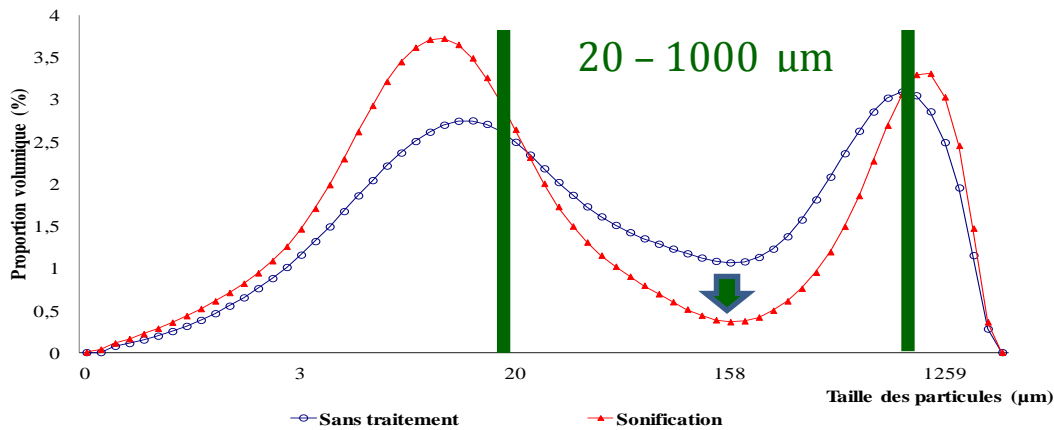
*Ce qui fait l'originalité de la démarche est un couplage systématique avec des techniques d'imagerie et de microanalyse afin d'accéder à des informations sur la nature des phases et à la recherche d'ETM par analyse spectrale. Les techniques utilisées sont :*

- la diffraction des rayons X (DRX) : elle permet une estimation semi-quantitative des phases solides cristallisées présentes à plus de 5% en masse ;
- la spectroscopie infrarouge (FTIR) : l'objectif de cette technique est d'obtenir une analyse qualitative des groupements fonctionnels majeurs constitutifs des structures organiques et inorganiques présentes dans l'échantillon (phases cristallisées et amorphes) ;
- la microscopie à balayage couplée à une analyse dispersive en énergie (MEB-EDX) : elle conduit à une visualisation des particules présentes dans les échantillons et à leur identification à l'aide de l'analyse chimique par sonde EDX. La limite de détection des éléments est relativement élevée (100 mg/kg), mais la taille du spot de la sonde est de l'ordre du  $\mu\text{m}$ ;
- la spectrométrie de microfluorescence des rayons X ( $\mu\text{XRF}$ ) : cette technique permet de réaliser une véritable analyse chimique mais uniquement sur des structures inorganiques, avec une taille minimale de particules de l'ordre de 20  $\mu\text{m}$ . La limite de détection est toutefois 100 fois plus faible que celle de la sonde EDX.

### **Les sédiments sont des assemblages de particules isolées et d'agrégats à signature anthropique spécifique**

Les techniques granulométriques et d'imagerie ont permis de mettre en évidence que les sédiments de bassin sont constitués de particules isolées majoritairement d'origine naturelle, les particules d'origine anthropique se trouvant plutôt dans les nombreux agrégats (macro- et micro-agrégats de 10 à 300  $\mu\text{m}$  avec des particules de 10 à 60  $\mu\text{m}$ ) [ACL8, ACL15]. Les microagrégats <160  $\mu\text{m}$  apparaissent comme très stables et ne sont pas détruits par les traitements chimiques ou les ultra-sons (**Figure 24**).

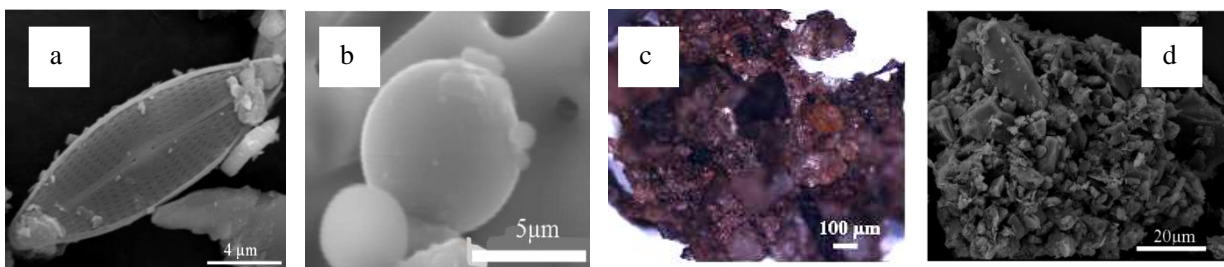




**Figure 24** Exemple de courbes granulométriques obtenues sur le sédiment de Cheviré, sans traitement (courbe bleue) et avec sonification de 9 min sur matériau humide (courbe rouge)

Les fractions les plus grossières sont composées majoritairement d'éléments bien isolés (billes de verre, fragments végétaux, fragments métalliques ou organiques) avec persistance de macro-agrégats non déstructurés. Les particules sont très similaires à celles décrites dans les eaux de ruissellement (**Tableau 1**), mais avec un taux d'agrégation supérieur :

- *origine naturelle* - minéraux caractéristiques des bassins versants des bassins : quartz, feldspaths, micas, argiles, carbonates ; débris végétaux, diatomées (**Figure 25 a**)
- *origine anthropique* : fragments métalliques : alliages Cr-Ni, Cu-Ni, fragments d'enrobés bitumineux, fragments de pneumatiques et de plaquettes de frein, billes de verres ou encore cendres volantes (**Figure 25 b**).



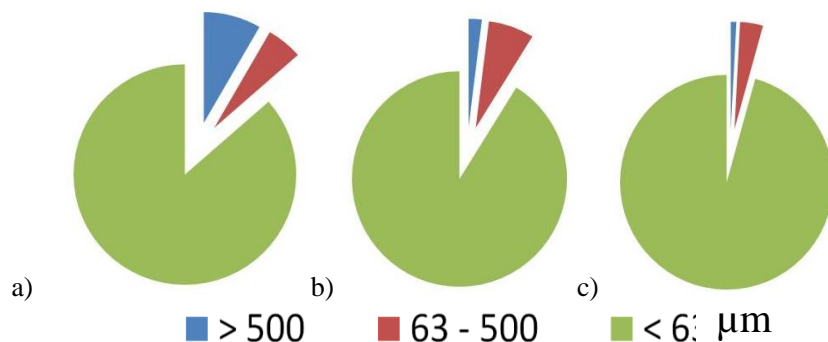
**Figure 25** Sédiment de Cheviré : a) et b) : observations en microscopie électronique à balayage a) d'une diatomée et b) de cendres volantes; c) observation en microscopie optique d'un macroagrégat organo-minéral ; d) observation en microscopie électronique à balayage d'un microagrégat organo-minéral

Les agrégats organo-minéraux (Figure 25 c et d) ont pour ciment des constituants agrégeants tels que la matière organique naturelle, des carbonates... mais également la matière organique anthropique conférant aux sédiments des propriétés spécifiques.

Les propriétés hydrodynamiques du sédiment de Cheviré ont été étudiées à l'aide d'essais d'infiltration modélisés par Hydrus et mis en regard du taux d'agrégation. Les résultats montrent l'action conjointe des particules fines ( $< 2\mu\text{m}$ ) et des matières organiques (MO) sur les propriétés hydrodynamiques d'un bassin d'infiltration [ACL10 et 12]. Il a été observé que la conductivité hydraulique à saturation était inversement corrélée à la teneur en MO ; ceci étant lié à une diminution progressive de la taille des pores lorsque les teneurs en MO sont de plus en plus élevées. Ce constat, contraire aux observations faites sur la MO naturelle, interroge sur la faible capacité de structuration de ces MO. La question de la composition et de la capacité de biodégradation des ces MO en lien avec les propriétés d'infiltration est donc posée. On peut alors observer que malgré une quantité de matière organique importante, celle-ci ne joue pas de rôle structurant du sédiment et contribue au phénomène de colmatage.

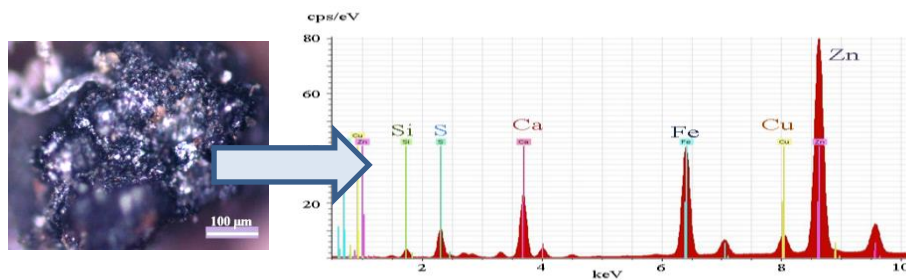
Cependant, si certaines zones du bassin sont trop exposées au flux d'eau pour pouvoir accueillir de la végétation, d'autres zones sont propices au développement de la végétation qui assure par leur système racinaire des zones d'infiltration et un apport de MO naturelle au sédiment.

Les analyses en polluants effectuées sur les différentes fractions granulométriques confirment que les ETM et les HAP sont plus concentrés dans les fractions fines ( $< 63 \mu\text{m}$ ), que dans les fractions grossières, résultat qui était, dans certaines études, occulté du fait de l'agrégation des matériaux (**Figure 26**).



**Figure 26** Sédiment de Cheviré a) répartition granulométrique en masse des différentes fractions ; b) proportion des ETM dans les fractions (somme des ETM) ; c) proportion des HAP dans les fractions (somme des HAP)

Dans une optique de traitement des sédiments par élimination des fractions les plus contaminées, un fractionnement granulométrique après désagrégation semble alors être une piste intéressante. Cependant, l'analyse des fractions grossières ( $>500 \mu\text{m}$ ) des sédiments doit être menée avec soin car par exemple, dans le cas d'un bassin situé dans un contexte mixte routier-industriel, la fraction grossière s'est révélée être non valorisable du fait de teneurs en plomb et zinc très élevées ( $> 2000 \text{ mg.kg}^{-1}$ ) (**Figure 27**). La teneur en matière organique est également un facteur limitant pour une réutilisation en technique routière par exemple.



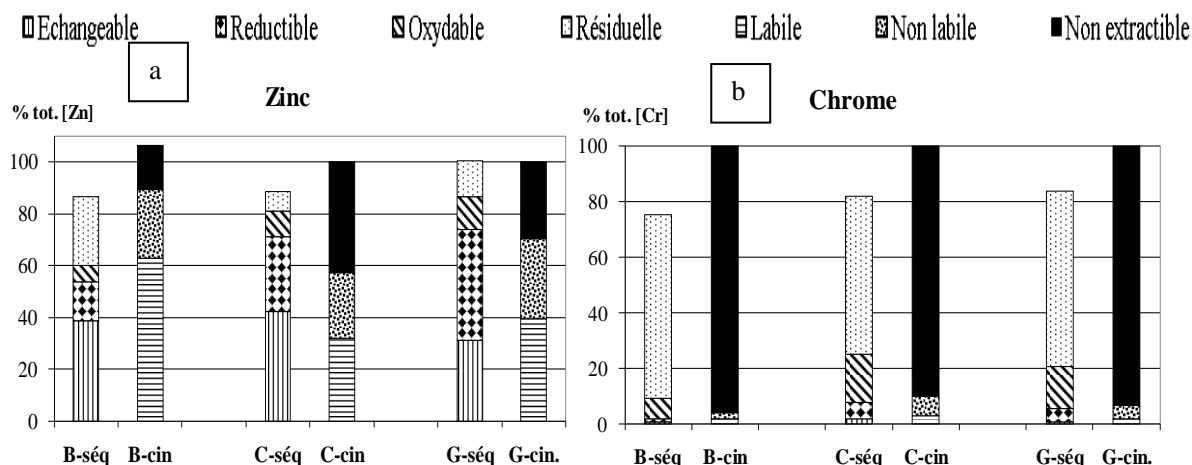
**Figure 27** Particule métallique du sédiment du bassin de Lens (G08) en microscopie optique et son spectre EDX (mise en évidence d'une forte teneur en zinc et fer)

### Les extractions chimiques renseignent uniquement sur la mobilité des métaux trace et sont peu comparables entre elles

Les extractions séquentielles et cinétiques réalisées sur les sédiments ont été comparées avec l'objectif de conforter par deux méthodes indirectes les données sur la mobilité des métaux trace. Il s'agissait d'associer la distribution des ETM entre les différentes fractions du sédiment définies opérationnellement à leur mobilité potentielle au sein de chaque fraction.

Certains comportements de métaux ont été retrouvés entre les 2 méthodes par rapport à des types d'interactions similaires. Ainsi, les ETM de la fraction échangeable sont toujours labiles (interactions faibles), tandis que ceux de la fraction résiduelle sont non extractibles (inclusion des éléments dans des fractions bien cristallisées).

Il est cependant difficile de définir une mobilité moyenne pour chaque ETM par cette comparaison, hormis pour le chrome (**Figure 28 b**). Pour les autres éléments, la comparaison ne permet pas de trancher sur des mobilités comparables par sollicitation de phases posées comme ayant des réactivités proches. Par exemple, le zinc associé à la fraction réductible peut présenter un caractère labile, non labile voire non extractible selon le matériau. La source des métaux, la réactivité différente des phases selon l'extractant et les méthodes expérimentales elles-mêmes (force des extractants, ré-adsorption...) expliquent les difficultés à coupler ces méthodes (**Figure 28 a**).



**Figure 28** Extractions séquentielles et cinétiques pour a) le zinc et b) le chrome piégés dans les sédiments de Boisbonne (Nantes) (B), Chevirié (Nantes) (C) et G08 (Lens) (G), en pourcentage de leur concentration totale

### Les fractionnements chimiques sont des protocoles fortement limités par la présence des agrégats mais l'observation est un soutien précis à l'interprétation

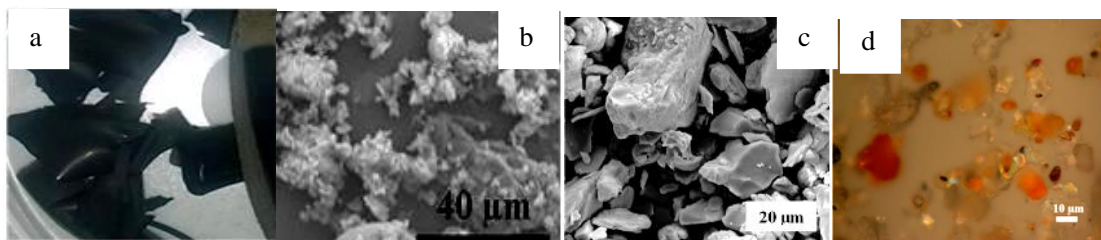
#### Le protocole MIBK ne permet pas de compléter le fractionnement IHSS de la matière organique

Le fractionnement de la matière organique à l'aide des protocoles IHSS et MIBK, appliqué à trois sédiments a montré que les HAP et les ETM sont majoritairement contenus dans la fraction humine [ACL17]. L'intérêt du couplage avec des techniques de microanalyse a pu être souligné car il a permis d'identifier clairement au sein de l'humine des agrégats organo-minéraux identiques à ceux du sédiment brut et d'en préciser la gamme de taille.

Les résultats ont souligné également que le protocole MIBK n'était pas adapté à la recherche des phases porteuses des ETM du fait de l'utilisation de HCl dans le protocole. Une fois encore, les deux métaux trace les moins affectés par la présence d'acides sont le chrome et le nickel, dont l'origine tend à les stabiliser sous forme métallique (alliages). Lors de l'application du protocole IHSS, la mobilité potentielle du cuivre est mise en évidence par son association avec les fractions organiques les plus mobiles des sédiments (acides fulviques et humiques). En résumé, les résultats de ces deux protocoles soulignent les limites très fortes de leur application sur sédiment brut du fait du fort niveau d'agrégation.

#### Les apports des fractionnements par densité et taille de particules après désagrégation des sédiments

Le fractionnement densimétrique, basé sur une séparation des phases en fonction de leur densité après désagrégation, a permis de séparer des fractions entièrement organiques ( $d < 1,9$ ), des fractions agrégées ( $1,9 < d < 2,6$ ), des fractions minérales ( $d < 2,8$ ) et métalliques ( $d > 2,8$ ), ces deux dernières comportant très peu d'agrégats (**Figure 29**).

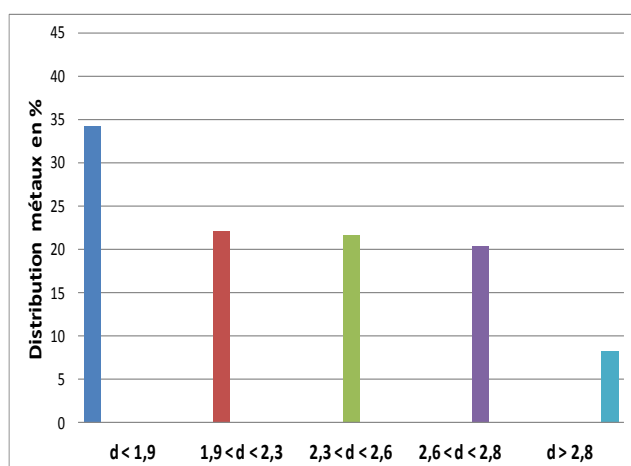


**Figure 29** Fractionnement densimétrique a) pellicule organique  $d < 1,9$  ; b) agrégats organo-minéraux ( $1,9 < d < 2,6$ ) ; c) particules minérales ( $d < 2,8$ ) et d) particules denses (dont oxydes métalliques) ( $d > 2,8$ )

Une analyse chimique a été menée pour déterminer la répartition des polluants entre les fractions. Les bilans matière calculés à partir des résultats des dosages sont satisfaisants pour les HAP (75 à 89%), ainsi que pour le chrome (110-120%) et le nickel sur deux bassins (107% pour Cheviré, 109% pour G08) mais seulement 48% du nickel est retrouvé pour le bassin de Boisbonne. Pour les autres ETM (Cu, Pb, Zn), les bilans sont mauvais (20 à 70%). Le cadmium est quant à lui systématiquement inférieur à la limite de quantification. Ces résultats mettent en avant que le protocole de fractionnement densimétrique est difficile à mettre en œuvre pour étudier la répartition des polluants métalliques dans ce type de matériau. En effet, l'utilisation du polytungstate de sodium acide nécessite de maintenir un pH proche de la neutralité en vue d'éviter la désorption des polluants, ce qui est difficile à atteindre pour les solutions de forte densité.

Malgré les biais expérimentaux pour les fractions les plus denses, plusieurs conclusions sont tirées :

- 72 à 80 % des HAP sont associés aux fractions les moins denses ( $d < 2,3$ ), dont 65 à 90% uniquement avec la fraction organique ( $d < 1,9$ ) ;
- le chrome et le nickel sont répartis entre toutes les fractions mais sont préférentiellement liés aux fractions les plus légères (**Figure 30**) tandis que les autres métaux sont liés aux argiles, aux oxydes métalliques, aux carbonates et à la matière organique (cuivre essentiellement).



**Figure 30**– Répartition des concentrations en chrome et en nickel entre les fractions obtenues par fractionnement densimétrique à partir des sédiments de Cheviré et G08

## **Synthèse et proposition d'amélioration de la méthodologie pour l'étude des phases porteuses de la pollution mixte des sédiments de l'assainissement pluvial**

La description de *l'état d'agrégation et des tailles d'agrégats* présents dans les sédiments, ainsi que les conditions expérimentales nécessaires pour désagréger les matériaux a permis de lever le *questionnement que nous avons sur la distribution des polluants en fonction de la granulométrie* du sédiment. Nous avons retrouvé des résultats conformes à la littérature mais qui ne doivent pas faire oublier que des effets « pépité » liés à la présence de fragments métalliques dans les fractions grossières des sédiments peuvent être observés.

Des données nouvelles sur la spéciation des polluants ont été apportées par les méthodes de fractionnement et les observations et micro-analyses. Les techniques de microanalyse ont permis : i) de s'assurer de la légère ou non dissolution de certaines phases minérales; ii) de confirmer le rôle de la matière organique comme liant dans les agrégats et iii) de souligner l'influence de ces agrégats dans la rétention des polluants. Ainsi nous recommandons la prise en compte de l'agrégation dans les études futures notamment celles concernant le transfert particulaire (microagrégats stables).

Les HAP sont majoritairement présents dans les fractions humine des sédiments, avec une distribution entre particules fines (<63 µm) et fragments d'enrobés grossiers. L'origine des HAP a peu d'influence sur leur distribution et ils sont peu mobiles. Les ETM ont des comportements et une distribution très variée au sein des sédiments. Le chrome et le nickel sont présents dans des phases stables, sans doute du fait d'une origine simple sous forme d'alliages. Le cuivre confirme son affinité pour les matières organiques. Les autres ETM sont répartis entre des phases de densité variable et piégés dans les agrégats..

En ce qui concerne les méthodes d'étude des phases porteuses, la méthode préconisée est celle du fractionnement densimétrique après désagrégation mais en apportant une amélioration au protocole classique. Il s'agit d'arrêter le fractionnement à une densité de 2,6 afin d'éviter au maximum la désorption des ETM par baisse du pH. La fraction la plus dense étant magnétique (oxydes métalliques), elle peut être séparée au sein de la fraction supérieure à 2,6 par aimantation. L'intérêt des techniques d'observation par microscopie optique et MEB associé à une microsonde a été mis en avant. La technique de microfluorescence X semble prometteuse mais nécessite une adaptation pour la préparation des échantillons à observer.

*Il a ainsi été montré que des techniques couplées pouvaient amener des résultats intéressants pour séparer les fractions solides des sédiments, non plus selon un protocole opérationnel (schéma d'extraction de Tessier par exemple) mais selon leurs caractéristiques physicochimiques et ensuite de pouvoir analyser les teneurs en micropolluants associés à ces fractions.*

## Perspectives – Micro- et nano-particules naturelles et anthropiques des eaux de ruissellement - Mobilité associée des métaux trace

### Les nanoparticules manufacturées dans les milieux urbains

Les eaux pluviales urbaines sont contaminées par de nombreuses substances inorganiques et organiques provenant des activités humaines (métaux trace et métalloïdes – ex. Cu, Zn, Pb, Cr, Cd, As, platinoïdes ; pesticides (e.g. 2,4-D, Diuron, glyphosate, AMPA) et d'autres composés organiques (COV, HAP), la plupart faisant partie de la liste des substances prioritaires de l'Union Européenne<sup>79</sup>. Ces substances sont souvent présentes sous forme particulaire, cette spéciation étant acquise lors de leur émission et/ou lors de leur transfert dans les différents compartiments de l'environnement (e.g. Charlesworth et al. 2011)<sup>80</sup>. Cependant, la fraction particulaire colloïdale des polluants des eaux pluviales, c'est-à-dire celle contenant les particules contaminées les plus petites (1 nm – 1 à 10 µm) et les plus mobiles, est peu étudiée, comme nous l'avons explicité en début de ce chapitre. Ce constat déjà effectué au début des années 2000 est toujours d'actualité, mais l'émergence d'une nouvelle famille de contaminants, les *nanomatériaux* (1 nm – 100 nm) et la problématique de leur dispersion dans l'environnement suscitent une production scientifique et technique très importante (80000 articles en 2009 !) qui comprend aussi quelques études sur les eaux pluviales urbaines<sup>81</sup>.

La Commission européenne a proposé en octobre 2011, dans le cadre de la recommandation L275/38 du 20 octobre (2011/696/UE), une définition pour le terme « nanomatériau ». Un nanomatériau est un matériau qui peut être d'origine naturelle, généré de façon non intentionnelle par les activités humaines (INMs) (ex. procédés de combustion et industriels), ou être issues de l'utilisation de nanotechnologies basées sur des nanomatériaux manufacturés (EMNs - engineered nanomaterials) (Tableau 4). Un nanomatériau contient des particules libres, sous forme d'agrégat ou sous forme d'agglomérat. Au moins 50% des particules, en répartition numérique par taille, présentent une ou plusieurs dimensions externes se situant entre 1 nm et 100 nm.

L'Organisation internationale de normalisation (ISO) définit quant à elle un nanomatériau comme étant "*un matériau comportant toute dimension externe à l'échelle nanométrique ou une structure interne ou en surface à l'échelle nanométrique*" (l'échelle nanométrique est définie comme un spectre de dimensions d'environ 1 nm à 100 nm) ; elle a adopté le terme [NOAA](#) pour englober l'ensemble des "Nano-Objects such as nanoparticles (NPs), nanofibres, nanotubes and nanowires, their Agglomerates and Aggregates greater

---

<sup>79</sup> Zgheib, S., Moilleron, R. and Chebbo, G. (2012). Water Research. 46, 20 6683–6692.

<sup>80</sup> Charlesworth S., De Miguel E., et Ordóñez, A. (2011). A review of the distribution of particulate trace elements in urban terrestrial environments and its application to considerations of risk, *Environmental Geochemistry and Health* 33 (2): 103-23.

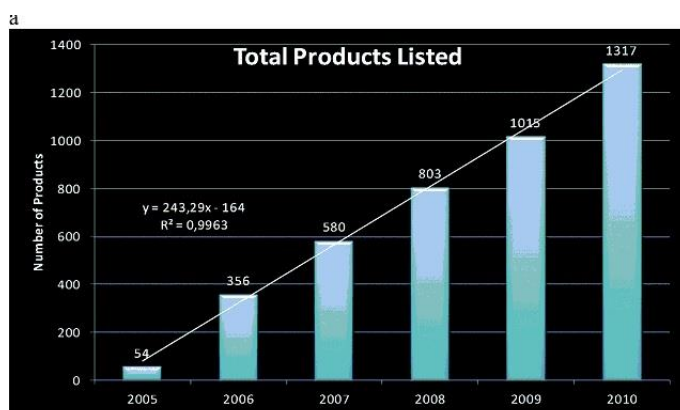
<sup>81</sup> Peralta-Videa JR et al. (2011). Nanomaterials and the environment: A review for the biennium 2008–2010, *Journal of Hazardous Materials* 186(1) : 1-15.-Tiede K, et al. (2012). Detection and characterization of engineered nanoparticles in food and the environment, *Food additives and contaminants*, Part A, 25:7, 795-821.

than 100 nm". Les nanomatériaux incluent ainsi des matériaux ayant une seule dimension à l'échelle nano comme les nano-couches, deux dimensions comme les nanotubes et les nano-fils et des particules telles que des nano-cristaux (quantum dots), des nanoparticules métalliques ou organiques (qualifiées de particules ultrafines jusqu'au début des années 2000) ou des fullerènes (molécule composée de carbone pouvant prendre une forme géométrique rappelant celle d'une sphère, d'un ellipsoïde, d'un tube (appelé nanotube) ou d'un anneau).

	Natural origin	Incidental origin	Engineered nanoparticles
Air	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Volcanic eruption</li> <li>• Hydrothermal vent systems</li> <li>• Physico-chemical wearing of rocks and dust volatilization</li> <li>• Biological processes</li> <li>• UV degradation from aquatic systems</li> <li>• Nucleation processes</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Combustion processes</li> <li>• Industrial emissions</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Nanotechnology-production processes</li> </ul>
Water	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Metal-sulfide nanoclusters</li> <li>• Hydrus iron</li> <li>• Manganese oxide</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Deposition from atmosphere</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Spillage from nanotechnology</li> </ul>
Soil	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Nanominerals (e.g., ferrihydrite)</li> <li>• Natural organic-material aggregates</li> <li>• Biogenic origin (e.g., uraninite)</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Deposition from atmosphere</li> <li>• Sorption and transport from aquatic systems</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Spillage from nanotechnology</li> </ul>

Tableau 4 - Origines principales des nanomatériaux dans l'environnement <sup>82</sup>

Les nanomatériaux manufacturés font l'objet d'une attention accrue depuis le milieu des années 2000 du fait de l'accroissement très rapide de leur utilisation à partir de la fin des années 90 dans les nanotechnologies, dans de très nombreux domaines d'activité industrielle et de services : industrie pharmaceutique,



cosmétique, électronique, automobile, textile, applications biomédicales (Gd), produits antibactériens (Ag, Zn, Ti), dépollution des sols, ... (Figure 31).

Figure 31 - Nombre total de produits contenant des nanomatériaux mis sur le marché entre 2005 et 2010 (extrait de <sup>83</sup>)

Le risque sanitaire avéré associé à ces nanomatériaux manufacturés, introduits dans de nombreux produits du quotidien (Figure 31), est un facteur prédominant de l'intérêt porté à ces substances émergentes, tant par la communauté scientifique que par la

<sup>82</sup> Farré M., Sanchi's J., Barcelo D. (2011). Analysis and assessment of the occurrence, the fate and the behavior of nanomaterials in the environment, *Trends in analytical chemistry*, 30(3), 517- 527.

<sup>83</sup> López-Serrano A., Muñoz Olivas R., Landaluze J.S. and Cámara C. (2014) Nanoparticles: a global vision. Characterization, separation, and quantification methods. Potential environmental and health impact DOI: 10.1039/C3AY40517F (Critical Review) *Anal. Methods*, 6, 38-56



société civile <sup>84</sup>. Certaines catégories de produits listées dans le spectre de la Figure 32 (automobile, maison) sont donc susceptibles de relarguer des nanomatériaux dans les eaux pluviales. Ils seront détaillés dans le Tableau 5.

b

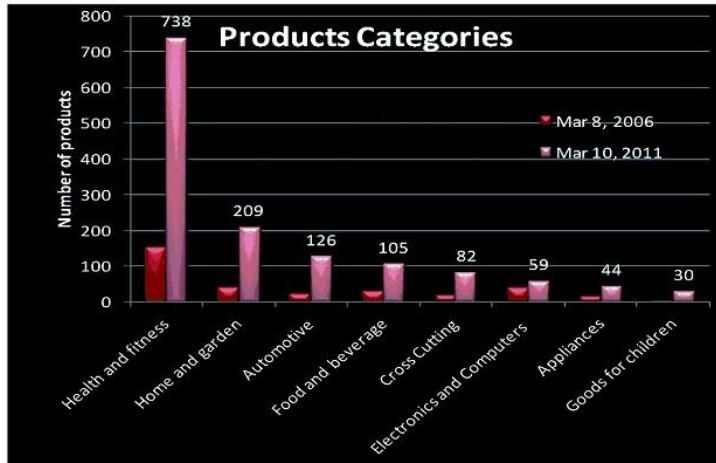


Figure 32 - Nombre de produits contenant des nanoparticules par catégorie de produits (extrait de [83])

Nowack et al. (2012) <sup>85</sup> attirent cependant notre attention sur le fait que les NPs manufacturées sont rarement sous la même forme que lors de leur production lorsqu'elles parviennent dans l'environnement (Figure 33). A noter

aussi que les NPs manufacturées sont très souvent stabilisées par un ajout de produit organique (exemple : coating hydrophobique de TiO<sub>2</sub> - TiO<sub>2</sub>-Al(OH)<sub>3</sub>-polydimethylsiloxane (Labille et al. 2010. Environ Pollut 158:3482–3489)).

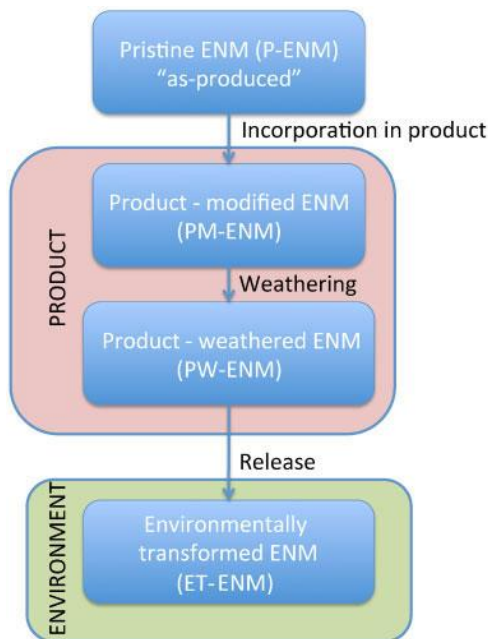


Figure 33 – Catégories de nanomatériaux manufacturés (ENM) : ENM initiales (P-ENM; telles que fabriquées), ENM modifiées (PM-ENM; par incorporation dans le produit), ENM modifiée (PW-ENM; dans le produit et pendant son usage), and ENM transformée dans l'environnement (ET-ENM)

<sup>84</sup> Brun E., Carrière M., Mabondzo A. (2012). In Vitro evidence of dysregulation of blood-brain barrier function after acute and repeated/long-term exposure to TiO<sub>2</sub> nanoparticles, *Biomaterials* 33 (3): 886-96. doi:10.1016/j.biomaterials.2011.10.025.

<sup>85</sup> Nowack B., Ranville J.F., Diamond S., Gallgo-Urrea J., Metcalfe C., Rose J., Horne N., Koelmans A., Klaine S. (2012). Critical Review – Potentiel scenarios for nanomaterial release and subsequent alteration in the environment, *Environmental Toxicology and Chemistry*, 31 (1),50–59

## **Caractérisation de l'occurrence, de la nature et des propriétés des micro- et nanoparticules métalliques dans les eaux pluviales urbaines par couplage de méthodes de fractionnement et d'analyses**

### Quelles nanoparticules dans les eaux pluviales urbaines ?

Remarque préliminaire : par souci de simplification et de cohérence, nous parlerons dans la suite de ce document, de nanoparticules, noté NPs pour désigner les nanomatériaux présents dans l'environnement urbain sans préjuger de leur origine naturelle ou non. Nous désignerons par « nanoparticules manufacturées (MNPs) », les nanoparticules fabriquées et introduites dans les produits manufacturés utilisés en environnement urbain (véhicules, bâtiment, mobilier...) quand nous voudrions les différencier. De façon plus spécifique, nous rajouterons le terme « métallique » pour désigner les « nanoparticules manufacturées métalliques (MNPs métalliques) ».

L'attention très grande portée sur les nanoparticules depuis quelques années ne doit pas faire oublier les travaux -certes bien moins nombreux- expérimentaux et théoriques réalisés dans les années 1980-2000 sur les particules colloïdales dans les environnements naturels et urbains<sup>51, 58</sup>. Les particules de taille nanométrique étaient bien présentes dans le continuum particulaire, mais considérées dans l'ensemble des substances colloïdales (1 nm – 10 µm), les techniques et méthodes d'analyse ne permettant pas alors d'explorer correctement cette fraction<sup>53</sup>.

Comparativement aux études menées sur les nanoparticules manufacturées (caractérisation, évolution, devenir), celles menées sur les nanoparticules de façon générique dans le domaine de l'environnement (environmental samples) sont moins fréquentes et concernent majoritairement les eaux naturelles et les eaux usées des réseaux d'assainissement en entrée et sortie de stations d'épuration afin d'évaluer l'efficacité des traitements sur les NPs<sup>86</sup>. En 2011, Farré et al.<sup>82</sup> notent que si de nombreuses techniques sont disponibles pour des analyses qualitatives et de caractérisation des NPs, il y a peu d'approches analytiques directes adéquates pour quantifier les NPs dans les échantillons prélevés in situ, les limites de détection étant souvent trop élevées pour ces substances présentes à des concentrations très faibles dans les matrices aqueuses. Cette remarque avait déjà été formulée pour la caractérisation des suspensions particulaires dans le domaine micrométrique.

Les nanoparticules manufacturées, présentes dans les eaux pluviales et les poussières de chaussées, vont provenir de sources variées, dont les principales sont les revêtements de surface des bâtiments et des surfaces imperméabilisées, les produits de corrosion des véhicules et des infrastructures. Quelques données sont également disponibles sur le taux de relargage des MNPs à partir des matériaux.

Parmi les publications concernant l'environnement urbain, seules quelques études mentionnent les eaux pluviales comme sources diffuses de NPs ou présentent des résultats de caractérisation (14 références avec

---

<sup>86</sup> Brar S. K., Verma M., Tyagi R.D., Surampalli R.Y (2010). Engineered nanoparticles in wastewater and wastewater sludge – Evidence and impacts, *Waste Management* 30, 504-520.

les mots clés ‘nanoparticles’ et ‘stormwater/runoff waters’ WoS 2017). Les articles portant sur la quantification et/ou caractérisation des particules de taille nanométrique dans les poussières de chaussées sont plus nombreuses<sup>87</sup> et sont à considérer en tant que matériau formé des particules transportées par les eaux de ruissellement et des retombées atmosphériques<sup>88</sup>.

Nielsen et al.<sup>52</sup> concluent d'une étude menée sur les eaux de 5 bassins de rétention en Suède, Danemark et à Lyon (18 campagnes de prélèvement en entrée-sortie) que la majorité des particules est de diamètre inférieur à 10 µm en entrée et en sortie et que les particules de la fraction nanométrique sont comprises entre 50 et 200 nm de diamètre. Des données sur la spéciation des HAP sont également disponibles dans ce travail. Baalousha et al. (2016)<sup>89</sup> font le constat de la rareté des données sur les nanomatériaux dans les eaux urbaines (seules deux références de leur article comportent spécifiquement le mot « urban stormwater » dans le titre). Ils rapportent une étude qualitative réalisée sur un ensemble de 8 bassins aux USA dans lesquels les nanoparticules présentes ont été observées en microscopie à transmission et analysées à l'aide d'une sonde EDX. Les observations montrent la présence d'oxydes de fer bien cristallisés et notamment des rouilles vertes spécifiques d'environnements réducteurs. Des NPs de titane (anatase et rutile) de taille comprise entre 10 à 100 nm sont identifiées en association avec Al, Fe, Cr, Pb, ainsi que des oxydes de zinc (100-200 nm), des agrégats de suie (100 nm à 1 µm), des NPs siliceuses et des particules de CePO<sub>4</sub>. C'est l'étude la plus complète d'observation des NPs dans les eaux de ruissellement existante, avec toutefois des teneurs en polluants métalliques très faibles dans la fraction <0,45 µm.

De nombreuses méthodes existent pour déterminer la taille des particules submicroniques et nanométriques, leur état de surface (contrôlant le taux d'agrégation), leur morphologie et leur composition chimique. Elles sont répertoriées dans plusieurs articles d'état de l'art<sup>[81], [82]</sup>,<sup>90</sup>, avec leurs avantages et inconvénients, et leurs limites (**Figure 35**).

Au-delà des limites de détection liées aux faibles concentrations des éléments, l'une des difficultés majeures pour les échantillons environnementaux, est l'impossibilité de différencier par les techniques actuelles les NPs manufacturées des NPs naturelles. Les travaux expérimentaux cités ci-dessus soulignent peu cette difficulté. En effet comment identifier à composition chimique équivalente (évaluée par ICP-MS en mode single-particule par exemple) l'origine naturelle ou anthropique d'une nanoparticule ? Peut-on réellement quantifier une 'sur-concentration' en Ti MNPs par exemple dans un contexte où le titane peut avoir une origine naturelle ? Bourdoiseau et Delolme (2016) montrent par exemple que les concentrations

---

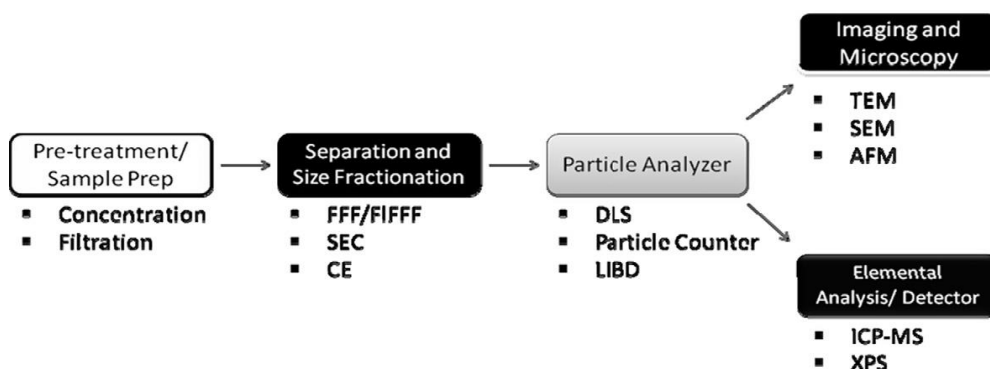
<sup>87</sup> Ermolin MS, Fedotov PS, Ivaneev AI, Karandashev VK, Fedyunina N., Burmistrov AA (2018) A contribution of nanoscale particles of road-deposited sediments to the pollution of urban runoff by heavy metals, *Chemosphere*, 210, , 65-75, <sup>88</sup>.Al Ali S., Debade X., Chebbo G., **Béchet B.**, Bonhomme C. (2017). Contribution of atmospheric dry deposition to stormwater loads for PAHs and trace metals in a small and highly trafficked urban road catchment, *Environmental Science and Pollution Research*, <https://doi.org/10.1007/s11356-017-0238-1>

<sup>89</sup> Baalousha et al. (2016). Review - Outdoor urban nanomaterials: The emergence of a new, integrated, and critical field of study, *Science of the Total Environment*, 557–558, 740–753

<sup>90</sup> Van Koetsem F., Rinklebe J., Du Laing G. (2016). Analysis and fate of metal-based engineered nanoparticles in aquatic environments, wetlands, and floodplain soils, in *Trace elements in waterlogged soils and sediments*, Rinklebe J., Knox A.S., Paller M. (eds.), CRC Press.

en titane dans les sédiments de bassins d'infiltration d'eaux pluviales de Lyon sont de l'ordre de 2,7 g/kg, dans la gamme de concentrations de 1,5 à 4 g/kg dans les sédiments de rivières européennes<sup>91</sup>. Les essais exploratoires en FFF-ICP-MS réalisés lors de la thèse de B. Durin nous avaient aussi permis de mettre en évidence la présence de particules de taille nanométrique dans un lixiviat de sédiment, conjointement avec la présence d'éléments chimiques tels que le titane et le zinc, ciblés dans la littérature comme constituants fréquents de nanoparticules manufacturées<sup>92</sup>.

Pour faire face au problème des faibles concentrations des NPs et des éléments chimiques qui les composent et obtenir les données de caractérisation des particules, un schéma d'opérations successives est préconisé comportant une étape de préconcentration, une étape de fractionnement et un ensemble de techniques d'observation et d'analyse, tel que nous avons pu le mettre en œuvre pour les micro-particules des eaux de ruissellement<sup>92</sup>.



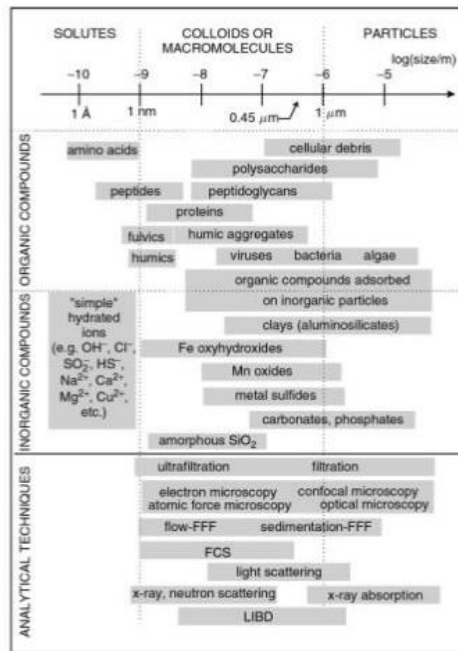
**Figure 34** Schéma opérationnel de préparation d'un échantillon pour la caractérisation de nanoparticules (Weinberg et al. (2011)).

Les autres travaux récents en gestion des eaux pluviales, mieux documentés sont des cas tests sur l'efficacité de traitements appliqués aux eaux pluviales pour éliminer les MNPs et les polluants associés avant rejet dans l'environnement<sup>52, 93</sup>.

<sup>91</sup> Bourdoiseau J. et Delolme C. (2016) Le titane dans les sédiments de l'assainissement pluvial urbain : sources, concentrations, mobilités, *Déchets, sciences et techniques* 71, <https://doi.org/10.4267/dechets-sciences-techniques.3416>.

<sup>92</sup> Weinberg et al. (2011). Evaluating engineered nanoparticles in natural waters, *Trends in analytical chemistry*, 30(1), 72-83.

<sup>93</sup> Wang Q et al. (2017) . Physicochemical conditions and properties of particles in urban runoff and rivers : implications for runoff pollution, *Chemosphere* 173, 318-325.



**Figure 1.** Size distributions of various types of environmental colloids and particles and several of the analytical techniques that are used to characterize them. Abbreviations: FFF = field-flow fractionation (Chapter 5); FCS = fluorescence correlation spectroscopy (Chapter 11); LIBD = laser-induced breakdown spectroscopy (Chapter 12). Adapted from [1] with permission from Taylor and Francis

**Figure 35** Méthodes les plus fréquentes de fractionnement physique et de caractérisation de particules (extrait de Lead and Wilkinson, Environmental particles, 2006)

En conclusion, nous avons dégagé deux questions scientifiques après cette analyse de la littérature :

- 1) au regard des volumes d'eau ruisselées en ville et à l'effet concentrateur des ouvrages destinés à les collecter, et au peu de données disponibles, quel est le poids des NPs métalliques issues du milieu urbain dans les milieux naturels ?
- 2) considérant que les NPs des eaux de ruissellement ont une forte probabilité d'être transférées vers les milieux récepteurs (eaux de surface et sols), quelles sont la nature et les propriétés des NPs ? En particulier la différenciation entre NP métallique naturelle et manufacturée est-elle possible compte tenu de leur variation de biodisponibilité ?

Nanomatérial	Source (application/matrice)	Propriété	% de relargage	Référence
TiO <sub>2</sub>	Revêtement de façade photocatalytique Trottoir en béton photocatalytique Peinture des façades des bâtiments Panneaux solaires  Peinture, marquage au sol Matériau cimentaire/fibro-ciment	Photocatalyse Auto-nettoyant Anti-bactérien IR-absorption/reflection Light trapping and photo-carrier collection Stabilité aux UV		Dawa et al. 2017 <sup>94</sup>
Ag	Matériau cimentaire/fibro-ciment Revêtements de surface des bâtiments (peintures, isolants)	Anti-bactérien		
CuO	Revêtements de surface des bâtiments (peintures, isolants)	Anti-bactérien		
SiO <sub>2</sub>	Eléments de la signalétique (panneaux, peinture au sol) Peinture, revêtement de surface  Matériau cimentaire/fibro-ciment	Matériau réfléchissant  Anti-corrosion, anti-abrasion, résistance aux chocs		
CdS, CdSe, CdTe	Panneaux solaires	Light trapping and photo-carrier collection		
ITO ATO	Peinture Peinture, revêtement de surface, plastiques	IR-absorption/réflexion Conductivité électrique, dissipation de charge statique		
SnO <sub>2</sub>	Peinture, revêtement de surface, plastiques	Conductivité électrique, dissipation de charge statique		
In <sub>2</sub> O <sub>3</sub> CuInSe <sub>2</sub>	Peinture Panneaux solaires	IR-absorption/réflexion Light trapping and photo-carrier collection		
ZnO	Facades de bâtiments, vitres, peintures, trottoirs/chaussées Peinture, marquage au sol Panneaux solaires Revêtements de surface des bâtiments (peintures, isolants)	Photocatalysis, self-cleaning  Stabilité aux UV Light trapping and photo-carrier collection Anti-bactérien		
CeO <sub>2</sub>	Carburant Pot catalytique Peinture, marquage au sol	Adjuvant Support des catalyseurs (platinoïdes) Stabilité aux UV		
BaSO <sub>4</sub>	Peinture, marquage au sol	Stabilité aux UV		
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Soils, rocks, magnetic resonance imaging	Magnétique		
Nano-argiles Boehmite (AlO(OH))	Revêtements de surface des bâtiments (peintures, isolants) Asphalte, plastiques (mobilier urbain, équipements des véhicules) Peinture, revêtement de surface	Retardateur de flammes  Anti-corrosion, anti-abrasion, résistance aux chocs		

Tableau 5 – Sources de nanoparticules manufacturées dans les eaux pluviales (adapté de Baalousha et al. 2016 [89])Candidate nanomaterials for property improvements in coatings(Fernando, 2009; van Broekhuizen et al., 2011; Ugwu, 2013)

<sup>94</sup> Dawa S. et Tae Y. (2017). NOx removal rate of photocatalytic cementitious materials with TiO<sub>2</sub> in wet condition, *Building and environment*, 112: 233-240.

## Objectifs du sujet de recherche

Lors de nos travaux antérieurs sur les fractions particulières des eaux de ruissellement et de leur rôle dans le transfert des métaux trace, nous avons mis en place un protocole comportant une phase de décantation puis une cascade de filtration-ultrafiltration par pression avant analyse par ICP-OES/ICP-MS pour corréler les éléments constitutifs de particules et métaux trace. Des identifications par MEB-EDX des particules avaient été faites mais avec une limite de travail autour de 10 µm. Des analyses non systématisées mais prometteuses avaient été réalisées par MET et FFF –ICP-MS sur quelques lixiviats de façon exploratoire.

*Il s'agit donc de définir et de mettre en œuvre une méthodologie plus complète de fractionnement et d'analyses pour caractériser les micro- et nanoparticules dans des eaux pluviales urbaines recueillies sur un (ou des) sites expérimentaux. Ce(s) site(s) seront caractérisés d'un point de vue hydrologique afin de calculer les flux de particules. En fonction des limites liées aux faibles concentrations en polluants, les sédiments des ouvrages sélectionnés pourront aussi être étudiés. Les campagnes d'échantillonnage seront réalisées sur des sites faisant partie de l'ONEVU (Observatoire Nantais des Environnements Urbains).*

L'application de la méthodologie doit nous permettre d'obtenir des résultats i) qualitatifs : présence de particules de taille micro- et nanométrique, morphologie, composition des particules en allant vers l'identification des MNPs, nature des métaux associés aux particules et ii) quantitatifs : distribution en taille des particules, concentration en métaux après fractionnement, charge de surface des particules. Par rapport aux données existantes sur les teneurs en métaux trace, nous nous intéresserons en priorité au titane et au zinc. La question de l'évolution de la spéciation physique des métaux à l'échelle d'un ouvrage pourra être abordée.

A noter que la réflexion sur la caractérisation des apports de NPs issus des milieux urbains à l'environnement est en train de s'étendre aux nanoplastiques dans la communauté scientifique. Sur ce thème, nous avons apporté un soutien terrain à une équipe de l'OSUNA (MMS) pour un travail préliminaire sur les apports des eaux de ruissellement dans le cadre des appels d'offre interne de l'OSUNA.

## Méthodologie expérimentale

Le site expérimental pré-sélectionné pour les prélèvements d'eaux de ruissellement de chaussée est le bassin de Chéviré dont les caractéristiques sont présentées dans la fiche x en annexe. Il recueille les eaux de la moitié Sud du pont du même nom qui supporte le plus fort trafic de Nantes. Les études réalisées antérieurement sur les eaux et les sédiments ont été décrits dans le début de ce chapitre. D'autres ouvrages sont aussi accessibles pour comparaison.

Le protocole développé antérieurement a été repris dans une phase exploratoire début 2018 et adapté en terme de temps de décantation et de coupures de filtration (membranes à 8, 1,2, 0,45, 0,22 µm et 30 kDaltons (environ 5 nm) de taille de pore). Une campagne de prélèvement d'eau a eu lieu en février 2018 et traitée selon ce protocole. Les analyses chimiques sur les fractions ont mis en évidence que Ti et Zn étaient

les deux éléments trace majoritairement présents dans l'eau et qu'ils étaient présents respectivement à 5 et 15% dans la fraction nanoparticulaire comprise entre 5 et 220 nm. Toutefois, leur concentration est proche des limites de quantification et une pré-concentration devrait être envisagée. L'ultra-filtration sur membrane suivie d'une analyse nous renseigne sur les teneurs en éléments en fonction de la classe de taille mais elle présente des artéfacts, un risque de colmatage...La coupure à 5 kDa va être rajoutée dans le protocole à des fins de comparaison avec les études antérieures et sa représentativité comme coupure avec les ions et complexes ('vrai' dissous).

De plus, le LEE a fait l'acquisition mi-2017 d'un *spectromètre de masse triple-quadripole (ICP-MS 3Q)*, permettant d'augmenter les performances sur les analyses classiques (notamment en cas d'effet de matrice important), et disposant aussi d'un mode de fonctionnement qualifié de '*single particle*' (*Sp*), dédié à la quantification de nanoparticules. Cette méthode est récente et prometteuse pour la détection et la caractérisation de NPs manufacturées<sup>95</sup>. Différentes informations analytiques peuvent être obtenues sur un ou plusieurs éléments spécifiques : i) une information qualitative sur la présence de formes particulières ou dissoutes, ii) une information quantitative sur le nombre de particules, ainsi que sur la concentration (en masse) et iii) la taille des particules.

Les articles présentant des applications de la technique pour des NPs manufacturées ou des échantillons environnementaux sont très récents et mettent en évidence la nécessité d'ajustement des paramètres analytiques tels que le dwell time et la question des étalons internes. Fabricius et al. (2013)<sup>96</sup> font une comparaison d'analyses de suspensions de NPs manufacturées (Ag, TiO<sub>2</sub>, CeO<sub>2</sub>, ZnO, Au) de différentes tailles par ICP-MS-SP et après digestion. L'objectif est d'obtenir la teneur totale en métaux et de quantifier de la fraction « dissoute » des NPs obtenue par filtration sur une membrane de 10 kDa (MWCO) (1-2 nm). Ils concluent que le fractionnement par ultrafiltration couplé à une analyse par ICP MS après digestion par microondes est la méthode la plus précise, économe en temps et argent et facile (préparation hors ligne).

Parallèlement aux caractérisations de l'échantillon global, l'identification de particules individuelles et la caractérisation de leurs formes (et composition si on dispose des sondes d'analyse) peuvent être menés en microscopie à balayage après recueil des particules sur filtre et recouvrement par du carbone.

La création en 2016 à l'Ifsttar Nantes d'une plateforme d'imagerie et de microanalyse avec l'acquisition d'un *microscope électronique à balayage (MEB) nouvelle génération* (Hitachi SU5000) nous offre des possibilités avérées pour la visualisation et l'analyse par microsonde de particules de taille infra-micrométrique (résolution de 3 nm en bas vide), alors que nous étions jusque-là confrontés à une limite de résolution au-dessus de quelques µm au MEB (même le MEB environnemental) (gain d'un facteur 10 à

---

<sup>95</sup> Laborda F et al. 2016 Single particle inductively coupled plasma mass spectrometry for the analysis of inorganic engineered nanoparticles in environmental samples *Trends in Environmental Analytical Chemistry* 9, 15-23

<sup>96</sup> Fabricius AL, Duester L, Meermann B, Ternes TA (2014). ICP-MS-based characterization of inorganic nanoparticles—sample preparation and off-line fractionation strategies *Anal Bioanal Chem* (2014) 406:467–479.



20). Tout en ayant conscience des limitations de la méthode (altération de l'état de dispersion et des surfaces par séchage et par le vide), des observations seront réalisées sur filtre après fractionnement de l'échantillon d'eau brute.

Enfin, des contacts ont été pris avec Sandrine Huclier, chercheuse à Subatech IMT Nantes qui est spécialiste de la séparation particulaire par FFF<sup>97</sup>. Un appareil est disponible au centre ARONNAX de Nantes. Des essais préliminaires seront réalisés en 2019 pour séparer les fractions particulières qui seront ensuite dosées par ICP-MS.

#### Moyens humains et financiers et collaborations prévues

Ce sujet de recherche bénéficie d'un financement provenant du projet ANR (2018-2021) INFILTRON (Infiltron for assessing infiltration & filtration functions of urban soils in stormwater management) coordonné par Laurent Lassabatere (LEHNA Lyon) (budget fonctionnement, 1 stage master). L'expérimentation sera réalisée pour partie dans le cadre de la thèse de J. Raimbault financée par le Ministère de la Transition Ecologique qui a démarré en août 2017 et qui est rattachée au projet Infiltron. J'assure le co-encadrement de la thèse avec L. Lassabatere.

Le projet INFILTRON a pour objectif le développement d'un infiltromètre de taille métrique dédié à la compréhension des transferts d'eau et de matière dans les sols hétérogènes des ouvrages d'infiltration des eaux pluviales. Le LEE a pour mission de mener une caractérisation des NPs présentes dans des eaux de ruissellement réelles en vue du choix de NPs modèles. Ces NPs modèles seront utilisées dans des expérimentations colonne avec une modélisation associée pour décrire les transferts de nanoparticules dans un sol représentatif du système réel afin d'aider à la validation du système terrain (cf Chapitre 3).

La thèse vient enrichir les travaux collaboratifs menés dans le cadre de l'axe 'Sols urbains' de l'IRSTV. La thèse bénéficie également d'un complément de financement par le programme de recherche régional des Pays de Loire POLLUSOLS, sur la pollution diffuse des sols, dans lequel le LEE porte, avec le BRGM, la thématique sur la pollution urbaine.

Des contacts ont été pris avec les équipes nantaises de Arronax et de Centrale détenant la FFF et la DLS (Dynamic Light Scattering pour la mesure de particules de taille colloïdale). L'utilisation de l'ICP MS en mode SP nécessite une mise au point méthodologique qui sera programmée au premier trimestre 2019.

J'ai l'intention, si les essais en FFF sont prometteurs, de déposer une demande de financement sur les nanoparticules des eaux pluviales, en collaboration avec Sandrine Huclier (Subatech – IMT Arronax), à l'AAP INSU EC2CO 2020.

---

<sup>97</sup> Fedotov PS, Mikhail SE, Katasonova ON (2015) Field -flow fractionation of nano- and microparticles in rotating coiled columns, *Journal of Chromatography A*, 1381, 13, 202-209

## CHAPITRE 3 – TRANSFERT DE POLLUANTS DANS LES SOLS DES ENVIRONNEMENTS ROUTIERS - EXPERIMENTATION EN LABORATOIRE ET MODELISATION

### Contexte scientifique - Les risques de contamination des sols et des ressources en eau par la pollution routière

#### Contamination des sols et mobilité des polluants

Depuis le début des années 1990, les risques de contamination des sols et des ressources en eau en milieu routier par transfert de polluants émis par les véhicules dans l'environnement, mais aussi par l'utilisation de sous-produits industriels, comme les mâchefers d'incinération d'ordures ménagères, en sous-couche routière font partie des préoccupations des pouvoirs publics. Des retours d'expérience mettaient en évidence en effet des problèmes de contamination des ressources en eau liés à l'utilisation de déchets industriels en sous-couche routière<sup>98</sup> et les demandes en matériaux alternatifs aux matériaux naturels dans la construction routière étaient en croissance. Cela a conduit à la production de normes pour évaluer le potentiel de relargage de polluants par les matériaux réutilisables. Un matériau granulaire est classiquement évalué de façon normée à l'aide de tests statiques (tests de lixiviation – NFX 31-210 (1995)/EN 12920 (2006)) ou dynamiques en colonne dans une démarche de modélisation (tests de percolation à écoulement ascendant NF CEN/TS 14405 (2005)). Il s'agit dans ces tests d'appliquer des rapports liquide/solide variables et de quantifier la fraction soluble des métaux extraits du matériau.

Cependant, l'évolution in-situ des matériaux sur le long terme et la potentielle remobilisation de substances après dissolution de phases cristallisés n'est pas prise en compte, ni le risque de transfert dans les sols sous-jacents de la structure. *La compréhension des processus couplés entre le transfert d'eau et les réactions géochimiques et leur modélisation sont des éléments qui aident alors à leur estimation.* Hors si elle est largement développée dans le domaine des sites et sols pollués ou des stockages de déchets radioactifs ou ménagers, la thématique des transferts réactifs de polluants l'était beaucoup moins dans le domaine des infrastructures routières (sols de bord de route, structures routières<sup>99</sup> (utilisation de MIOM par ex.), ouvrages d'assainissement) en 2000, comme encore aujourd'hui (une vingtaine d'articles WoS entre 2000 et 2017).

---

<sup>98</sup> Van Laethem F, Legrand J (1993) Impact sur l'environnement des remblais polluants de l'autoroute A22 au nord de Lille - Recherche de solutions. *Bulletin de liaison des laboratoires des ponts et chaussées*, Nov. 1993, n° 188

<sup>99</sup> Meima JA and Comans RNJ (1998) Application of Surface Complexation/Precipitation Modeling to Contaminant Leaching from Weathered Municipal Solid Waste Incinerator Bottom Ash, *Environmental Science & Technology* 32 (5), 688-693

De nombreuses études ont mis en évidence la contamination des environnements proches des infrastructures par des métaux lourds (Pb, Zn, Cr, Cu, Cd, Ni, Pt, Pd), des substances organiques (hydrocarbures, herbicides) et des fondants chimiques<sup>100</sup>. Les polluants, après émission, sont transportés par les eaux de ruissellement vers les bas-côtés, sous forme soluble ou associés à une phase solide particulaire minérale ou organique, comme cela a été explicité au chapitre 2. Par infiltration, ils sont ensuite retenus dans les sols de bord de route, de ce fait, très souvent contaminés en plomb et en zinc. Les eaux de ruissellement, chargées en métaux lourds, contribuent également à la contamination des sédiments des bassins de rétention<sup>101,102</sup>. Les sous-produits utilisés ou potentiellement utilisables en construction routière tels que les mâchefers d'incinération des ordures ménagères, les laitiers ou les résidus d'épuration des fumées d'incinération des ordures ménagères sont également étudiés du point de vue de leur capacité de relargage de métaux lourds<sup>103</sup>.

Sous l'effet de l'infiltration des eaux de pluie et/ou de modifications des conditions physico-chimiques du milieu poreux, un *relargage des substances polluantes présentes dans le sol ou le matériau* peut être observé. C'est le cas par exemple pour un sol de bord de route, lors d'une modification de pH par dissolution des phases carbonatées du milieu ou l'effet de variations de salinité répétées des eaux de ruissellement en période hivernale, lors des opérations de maintenance. Elles mobilisent de façon continue le « stock » de polluants du sol, notamment le plomb, zinc et cuivre<sup>104</sup>. Ces perturbations vont être favorables au transfert de polluants sous forme de solutés, mais également sous forme colloïdale<sup>100,105</sup>.

Le transfert de polluants sous forme particulaire colloïdale, c'est-à-dire un transport facilité des polluants par des particules natives du milieu ou les polluants ayant déjà une spéciation particulaire, de dimension comprise entre le nanomètre et la dizaine de micromètres, a été mis en évidence in-situ tout d'abord dans le domaine du nucléaire, sur des sites de stockage de déchets ou d'expérimentations nucléaires<sup>106</sup>. Les préoccupations vis-à-vis de la protection des eaux souterraines ont conduit ensuite à s'interroger sur cet aspect du transfert de polluants dans le cas des épandages sur terrains agricoles, de stockage de résidus miniers ou de déchets ménagers<sup>107</sup> ou de sols pollués par des activités industrielles<sup>108</sup>.

---

<sup>100</sup> Amrhein C, Mosher PA, Strong JE (1993) Colloid-assisted transport of trace metals in roadside soils receiving de-icing salts, *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 57, 1212-1217

<sup>101</sup> Yousef, Y.A., Hvitved-Jacobsen, T., Harper, H.H. and Lin, L.Y. 1990. Heavy Metal Accumulation and Transport through Detention Ponds Receiving Highway Runoff. *The Science of the Total Environment*, 93 April: 433-440.

<sup>102</sup> Legret M, Le Marc C, Demare D, Colandini V (1995) Pollution par les métaux lourds dans un bassin de décantation recevant des eaux de ruissellement d'origine routière, *Env. Technol.*, 16, 1049-1060.

<sup>103</sup> Meima JA and Comans RNJ (1997) Geochemical Modeling of Weathering Reactions in Municipal Solid Waste Incinerator Bottom Ash, *Environmental Science & Technology* 31 (5), 1269-1276

<sup>104</sup> Delmas C, Larpin L, Legret M, Astruc M (2002) Mobility and adsorption capacity of Pb and Zn in a polluted soil from a road environment: laboratory batch experiments, *Environ. Technol.*, 23, 381-390

<sup>105</sup> Norrström ACC, Jacks, G (1998) Concentration and fractionation of heavy metals in roadside soils receiving de-icing salts, *The Science of the Total Environment*, 218, 161-174.

<sup>106</sup> Buddemeier RW, Hunt JR (1988) Transport of colloidal contaminants in groundwater: radionuclide migration at the Nevada test site, *Applied Geochemistry*, 3 (5), 535-548,

<sup>107</sup> Gounaris V, Anderson PR, and Holsen TM (1993) Characteristics and environmental significance of colloids in landfill leachate, *Environmental Science & Technology* 27 (7), 1381-1387

*Cette question du transfert colloïdal des contaminants se pose aussi en environnement urbain pour des sols et les sédiments des bassins d'infiltration des eaux pluviales contaminés par les métaux lourds et des hydrocarbures<sup>109110</sup>.*

## **Modélisation des transferts réactifs**

Dans la démarche d'évaluation des risques, la prédiction de la migration des polluants est la dernière étape. Face à la complexité des sols, tant en terme de structure physique que de composition, il est souvent nécessaire d'étudier des systèmes simplifiés et de découpler le transport de polluants des interactions qu'ils vont subir dans le milieu poreux, à l'aide d'une expérimentation en colonne de laboratoire, complémentaire d'expériences pilotes ou d'essais sur le terrain. Des outils de modélisation, couplant les mécanismes de transport d'eau et les interactions physico-chimiques entre le polluant et la matrice poreuse sont utilisés afin d'interpréter les résultats des expérimentations menées en colonne et de préciser les mécanismes d'interaction. Une fois les mécanismes prépondérants définis, on peut envisager d'estimer les risques de contamination de l'environnement, à l'aide de codes de calcul de transfert réactif intégrant les écoulements à l'échelle du laboratoire, de l'ouvrage ou de l'aquifère, lorsque l'on dispose des données suffisantes.

La modélisation des transferts réactifs (ou modélisation couplée transport-géochimie ; reactive transport modelling en anglais) est issue de l'évolution de l'hydrogéologie, qui passe au cours du XXe siècle d'une simple discipline naturaliste à une science pluridisciplinaire. Vers 1950, l'hydrogéologie amorce une évolution de la description géologique des formations aquifères vers la compréhension et l'explication quantitative des systèmes hydrogéologiques. A partir des années 1970, le champ s'élargit pour répondre aux nouveaux besoins dans le domaine de la gestion des eaux souterraines. L'hydrogéologie, dont la science de base est la géologie, fait désormais appel aux méthodes et aux moyens de la géochimie des roches et des eaux, de l'hydrodynamique souterraine et de la statistique, ainsi qu'à l'emploi d'ordinateurs pour le traitement des données et les modèles mathématiques, sans oublier les techniques de prospection géophysique, ainsi que les techniques de forage et de captage<sup>111</sup>.

En géochimie, les premiers modèles permettant de prévoir la composition à l'équilibre thermodynamique d'un système eau-roche sont proposés au milieu des années <sup>112</sup>. Dans les premiers modèles couplés, la description de la compétition, pour un élément chimique présent dans les eaux souterraines, entre l'écoulement et les interactions physico-chimiques se fait à l'aide de lois simplifiées empiriques (partage

---

<sup>108</sup> L. Citeau, I. Lamy, F. van Oort, F. Elsass (2003) Colloidal facilitated transfer of metals in soils under different land use, *Colloid. Surface. Physicochem. Eng. Aspect.*, 217, 11-19

<sup>109</sup> Yousef A. Yousef & Lin L. Yu (1992) Potential contamination of groundwater from Cu, Pb, and Zn in wet detention ponds receiving highway runoff, *Journal of Environmental Science and Health . Part A: Environmental Science and Engineering and Toxicology*, 27:4, 1033-1044

<sup>110</sup> Winiarski T, JP Bedell, C Delolme, Y Perrodin. (2006) The impact of stormwater on a soil profile in an infiltration basin. *Hydrogeology Journal* 14:7, 1244-1251.

<sup>111</sup> Banton O, Bangoy LM (1999) Hydrogéologie: multisciences environnementale des eaux souterraines. Presse de l'Université du Québec. Québec, 460 p.

<sup>112</sup> Morel&Morgan, 1972 ; Fritz, 1975

linéaire, isothermes de type Freundlich ou Langmuir) puis, à partir de 1980, apparaissent des modèles 1D et 2D décrivant la compétition de l'écoulement et la géochimie des interactions<sup>113</sup>.

Les hydrogéologues ne sont pas les seuls à s'intéresser au transfert de solutés dans les milieux poreux naturels. Dès 1976, dans le domaine des sols agricoles sont proposés des modèles de transfert de sels<sup>114</sup>. Au côté des chercheurs en sciences de la terre et en sciences du sol, dans les années 80, les chercheurs du génie chimique appliquent les modèles du génie des procédés aux milieux naturels. En effet, l'étude des réactions chimiques transitoires entre fluide et solide est un des objets majeurs du génie chimique. La théorie de la distribution des temps de séjour développée en génie de la réaction chimique<sup>115</sup> est aussi employée en hydrologie et hydrogéologie. Les théories de la chromatographie multi-constituants<sup>116</sup>, puis celle de la chromatographie réactive avec les modèles d'équilibre ou cinétique associés, sont transposées à l'étude des mécanismes d'interactions dans les milieux poreux naturels.

Il existe de nombreux codes de calcul numérique de transfert réactif, simulant les écoulements multiphasiques (huile/eau/solide ou gaz/eau/solide) et les transferts multiconstituants en milieu poreux saturé en eau ou non saturé<sup>117</sup>. S'ils ont été développés à partir d'un code d'hydrogéologie, les codes offrent la possibilité de représenter les transferts en 2D ou 3D. Par contre, s'ils ont été développés en génie chimique ou dans le domaine des sciences des sols, ils sont souvent 1D ou 2D et plus adaptés à des interprétations d'expérimentations en laboratoire. Pour l'utilisateur qui n'est pas le développeur, les paramètres de choix d'un code de calcul sont en premier lieu sa pertinence scientifique et sa robustesse numérique. La convivialité de l'interface et la documentation comptent aussi beaucoup dans le choix.

De plus, de nombreux paramètres ou phénomènes peuvent être responsables d'une mobilité des polluants métalliques en présence d'écoulement : une variation de force ionique de la solution interstitielle du milieu poreux, une variation du débit de l'écoulement du fluide<sup>118</sup> ou bien encore les alternances de cycles de séchage-réhumidification des matériaux. Ces représentations de phénomènes transitoires constituent bien souvent une difficulté importante.

Malgré les domaines très variés d'application de ces codes, ils restent quand même affaire de spécialistes et nécessitent beaucoup de données, ce qui fait que les modèles simples de représentation des interactions de type isotherme constituent toujours une approche très usitée. Les applications au domaine urbain, hors sites et sols pollués, doivent traiter les sols de bord de route, les sédiments de l'assainissement pluvial et les

---

<sup>113</sup> par exemple, Sauty et al., 1987

<sup>114</sup> (Van Genuchten & Wierenga, 1976)

<sup>115</sup> (Danckwerts, 1953 ; Villiermaux, 1993)

<sup>116</sup> (Tondeur, 1969 ; Helfferich & Klein, 1970) (Schweich et al., 1980 (Valocchi et al., 1981). Valocchi A.J., Street R.L., Roberts P.V., Transport of ion-exchanging solutes in groundwater chromatographic theory and field simulation, *Water Resour. Res.*, Vol. 17, N°5, 15717-1527, 1981

<sup>117</sup> Steefel, C.I., Appelo, C.A.J., Arora, B. et al. Reactive transport codes for subsurface environmental simulation *Comput Geosci* (2015) 19: 445. <https://doi.org/10.1007/s10596-014-9443-x>

<sup>118</sup> McDowell-Boyer LM, Hunt JR, and Sitar N (1986), Particle transport through porous media, *Water Resour. Res.*, 22(13), 1901–1921

matériaux recyclés comme sources complexes de contaminants et les sols sous-jacents (fond d'ouvrages d'assainissement, sous couche routière, encaissant géologique...) comme milieux de transfert.

## **Les acquis sur les transferts de polluants au LEE en 2000 et les questions traitées**

Dans les années 90, le LEE développe des tests de lixiviation sur des mâchefers et sur des sédiments de l'assainissement pluvial pour quantifier le potentiel de relargage, ainsi que des extractions cinétiques et séquentielles (avec ajout d'extractants de force croissante) pour évaluer la spéciation des métaux dans les matériaux (répartition des métaux entre les différentes phases solides).

En 2000, deux thèses sur les transferts de métaux en conditions dynamiques en colonne de laboratoire se finissent dont j'ai pu contribuer à la valorisation<sup>119</sup>: la thèse de *Carole Delmas* (2000)<sup>45</sup> sur la mobilité du plomb et du zinc dans un sol de bord de route et un sédiment contaminés et celle de *Laurent Marcos* (2001)<sup>120</sup> sur la détermination des mécanismes prépondérants d'interaction et la modélisation du transport compétitif du plomb et du zinc dans des milieux sableux modèles.

La nature des sédiments et la spéciation particulière marquée des métaux des eaux de ruissellement ont orienté ma réflexion vers la prise en compte d'une **mobilisation des métaux dans les matériaux des environnements routiers à la fois sous forme dissoute (ions, complexes, petits colloïdes/molécules) et sous forme particulaire colloïdale**. Mais si les travaux ont d'abord été réalisés en milieu saturé en eau, deux facteurs terrain nous ont rapidement amené à aller vers des systèmes expérimentaux plus proches des conditions in-situ : **l'infiltration des eaux de ruissellement liée aux événements pluvieux dans un milieu non saturé en eau et la présence d'hétérogénéités dans les sols des bassins** (macroporosité liée à la bioturbation, macroporosité résiduelle du système racinaire, hétérogénéité de texture liée à l'alternance de couches de sol de nature différente ou à la présence de géotextiles en fond de bassin..).

Au niveau des outils, le code Impact du LSGC a été utilisé pour la thèse de L. Marcos. J'ai ensuite utilisé les codes CHESS et PHREEQC-2 pour réaliser des modélisations géochimiques de solutions complexes et la modélisation de mécanismes réactionnels de transfert du zinc. Par la suite, à l'arrivée de L. Lassabatere dans l'équipe, le code HYDRUS 1D a été utilisé dans l'équipe pour les simulations des transferts d'eau et de solutés en milieu homogène ou hétérogène, avec la description des interactions par isothermes (collaboration avec L. Lassabatere au LEE de 2004 à 2010, puis avec PE Peyneau).

---

<sup>119</sup> [ACTN2, COM 1 et 2]

<sup>120</sup> Thèse de L. Marcos soutenue en 2001 - Etude expérimentale et modélisation du transfert du zinc et du plomb dans des milieux sableux modèles

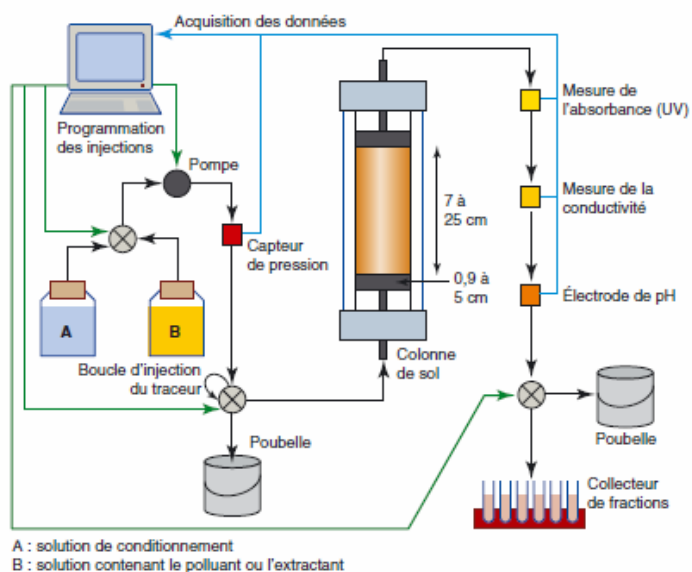
Dans la suite de ce chapitre, quatre sujets sont traités :

- 1) la modélisation du transfert de métaux trace (zinc, plomb) dans un système modèle sableux et dans un sol de bord de route à l'aide du code PHREEQC-2 : à partir des résultats expérimentaux de la thèse de C. Delmas, il s'agissait de répondre à la question de la **nature des phases réactives lors du transfert de zinc et de plomb sous forme dissoute** ;
- 2) le transfert de métabolites de HAP dans un sol de bord de route, avec un travail expérimental et de modélisation (collaboration avec K. Hanna et L. Lassabatere), associé à l'évaluation du transfert couplé de métaux avec l'acide salicylique autour de la question du **rôle de vecteur des métabolites de HAP dans la mobilité des métaux trace** ;
- 3) la mobilisation des métaux trace sous forme colloïdale à partir d'un sédiment de l'assainissement pluvial en étudiant l'effet des variations de salinité et de débit (thèse de B. Durin);le **transfert facilité des métaux trace est-il observé ? Quelles sont les phases mobilisées et dans quelles conditions ?**
- 4) les transferts de colloïdes modèles dans des sols sableux hétérogènes et en conditions non saturées (collaboration L. Lassabatere) (macropore et géotextile) : **quel impact des hétérogénéités et de la non saturation sur les écoulements et le transfert de particules ? Quelle validité d'un modèle d'interaction mono site pour décrire la rétention des particules ?**

## **Méthodologie générale de l'expérimentation en colonne de laboratoire et de l'approche de modélisation couplé géochimie-transport**

### **Expérimentation en colonne de laboratoire**

Le montage expérimental de chromatographie linéaire à basse pression permet de suivre des paramètres physico-chimiques en sortie de colonne tels que la conductivité, le pH et la densité optique et de récupérer des fractions d'éluat à l'aide d'un collecteur (**Figure 36** Montage expérimental d'une expérimentation a) en conditions saturées sur colonne de chromatographie (**Figure 36**). La colonne chromatographique est remplie de sol puis saturée par le bas avec une solution de conditionnement avant d'effectuer des injections de solutés ou de particules, pour étudier le phénomène de rétention ou de relargage des substances d'intérêt. Le volume poreux des colonnes est déterminé par traçage non réactif. Dans le cas d'une expérimentation en conditions de non saturation en eau, l'injection s'effectue par haut. Nous avons réalisé des expériences de ce type sur colonne fermée ou colonne ouverte pour simuler une infiltration suite à un évènement pluvieux.



b)

a)

**Figure 36** Montage expérimental d'une expérimentation a) en conditions saturées sur colonne de chromatographie [ACL2]; b) en conditions de percolation descendante sur sédiment

### Principes de la chromatographie réactive

La méthodologie utilisée pour interpréter les résultats fait appel à la théorie classique de la chromatographie multi-constituants <sup>121</sup> qui a pour objectif la caractérisation des interactions physico-chimiques entre une phase solide et des solutés en présence d'un écoulement permanent, monodimensionnel et peu dispersif. Cette caractérisation repose sur l'analyse de chromatogrammes qui résultent d'un signal de type échelon ou créneau de composition connue, imposé à un milieu poreux modèle de composition uniforme.



**Figure 37** Créneaux d'injection et courbes de percée en sortie de colonne [ACLN4]

<sup>121</sup> Tondeur, 1969 ; Helfferich, Klein, 1970



## **Analyses des courbes de percée à l'aide d'une modélisation 1D couplant transfert d'eau et de polluant**

L'interprétation des courbes de percée se fait en trois étapes :

1. proposition d'un ensemble de réactions chimiques (mécanisme réactionnel), sur la base de la minéralogie du milieu poreux et de ses caractéristiques physico-chimiques (pH, nombre de sites de rétention...) et de la spéciation des solutés ;
2. réalisation d'expériences en colonne sur des systèmes simples pour accéder aux paramètres du mécanisme non disponibles dans la littérature ;
3. validation du mécanisme par comparaison des courbes de percée expérimentales et simulées pour une expérience sur le sol mettant en jeu le mécanisme dans son ensemble. Si le résultat n'est pas satisfaisant, cela signifie qu'une ou plusieurs réactions chimiques manquent ou que le mécanisme proposé est faux. Dans les deux cas, on revient à la première étape.

Pour étudier l'effet du débit sur les réactions chimiques se déroulant dans le milieu poreux, une même expérience est réalisée à deux ou trois débits différents. Les limitations cinétiques observées lors de la réalisation d'expériences à différents débits peuvent être de deux types :

1. des limitations réactionnelles dues à des réactions chimiques lentes ;
2. des limitations dues au transfert de matière entre phases, appelées limitations diffusionnelles. Elles concernent des réactions hétérogènes, car elles impliquent la migration de réactifs entre la phase aqueuse mobile et la phase stationnaire. Ces limitations sont décrites par des temps caractéristiques de transfert de matière externe et interne.

### PHREEQC-2, un code de transport réactif 1D

Le code PHREEQC a été développé par Parkhurst et Appelo à partir de 1995 sur la base du code géochimique PHREEQE dont la première version date de 1980 (Parkhurst, Appelo, 1999). La dernière version PHREEQC -3 est disponible librement sur internet.

L'approche utilisée dans ce code consiste à représenter une colonne de milieu poreux de longueur  $L$  par un ensemble de  $N$  cellules en série de même volume. Chaque cellule contient la même proportion de phase mobile et stationnaire que l'ensemble de la colonne. L'écoulement 1D est permanent, à débit constant. On ne peut pas simuler de phénomène transitoire. Une cellule est caractérisée par sa longueur ( $L/N$ ) et le temps de séjour d'un traceur non réactif dans la phase mobile ( $t_s$ ). La dispersion dans le milieu poreux est une donnée d'entrée. Le milieu est considéré comme homogène mais on peut faire varier certaines caractéristiques dans les cellules (température, pression des gaz,...).

Dans chaque cellule, la composition chimique de la fraction mobile est uniforme et égale à la composition de sortie de la cellule. En cas de zone de fluide immobile dans la colonne, un élément du fluide peut diffuser dans cette zone. Les variables principales de la partie géochimique sont les concentrations totales en éléments chimiques. Des modèles d'échanges d'ions et de complexation de surface sont disponibles pour décrire les interactions entre solutés et surface solide. Le modèle de complexation de surface tient compte de la variation de la charge de surface du solide en fonction du pH. Les calculs sont effectués dans l'hypothèse de l'équilibre local, sauf lorsque des cinétiques de dissolution de minéraux sont précisées dans le fichier d'entrée des données.

## **Modélisation du transfert de zinc et de plomb dans un milieu sableux modèle et un sol de bord de route**

### **Un sable quartzeux à réactivité de surface faible mais la nécessité d'introduire un modèle de complexation à deux sites<sup>122</sup>**

Des expériences d'échange d'ions binaires et ternaires (Ca, Zn, Pb) avaient été réalisées dans la thèse de L. Marcos (2000) et modélisées avec le code Impact développé au LRGP (ex-LSGC) Nancy. La phase de validation du modèle phénoménologique avait mis en évidence que l'évolution du pH était relativement mal décrite à l'aide de réactions de dissociation des sites de surface du sable couplées à de l'échange d'ions. Le code PHREEQC intégrant un modèle de complexation de surface prenant mieux en compte l'évolution des charges de surface électriques en fonction du pH, j'ai repris la modélisation de ces expériences à l'aide du code de calcul PHREEC-2.

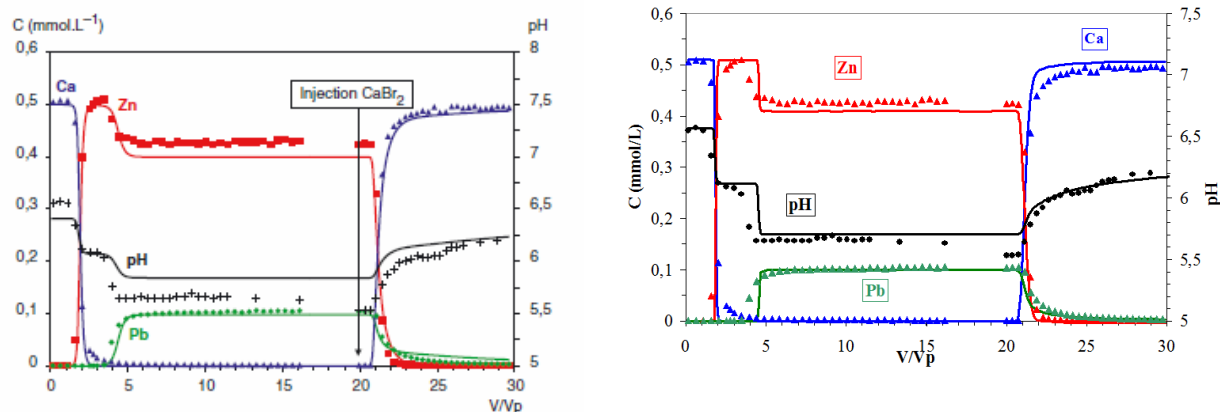
Le modèle le plus en adéquation avec les données expérimentales est un modèle de complexation de surface à deux sites sur les grains de quartz avec des affinités différentes selon l'élément chimique (Ca, Zn, Pb), les constantes de réaction pour Ca/Zn ayant été obtenues à partir d'une isotherme d'adsorption.

Le modèle phénoménologique sous PHREEQC améliore sensiblement la modélisation des courbes de percée des métaux (percée du plomb, évolution fine des concentrations en Ca et Zn), toutefois l'évolution du pH n'est pas mieux décrite (**Figure 38**). La non maîtrise de toutes les conditions expérimentales (contact avec l'atmosphère par ex.) pourrait influencer sur l'évolution du pH, ainsi que d'autres processus de surface impliquant les protons.

L'étape suivante était d'aller vers la modélisation des systèmes plus complexes, tel que le sol de bord de route utilisé dans la thèse de C. Delmas.

---

<sup>122</sup> **Béchet B**, Legret M (2004) Modélisation du transfert réactif de métaux traces dans les sols du domaine routier – Approche simplifiée, *Bulletin de liaison des Ponts et Chaussées*, N°252-253, 137-152.



**Figure 38** Système modèle de sable de Fontainebleau - Simulation des courbes de percée expérimentales (figurés) et simulées (traits) du calcium, du pH et des métaux (plomb, zinc) en fonction du volume élué par un modèle de complexation de surface à deux sites ( $\log K_{Ca(w)} = -3,6$  et  $\log K_{Ca(s)} = -2,6$  ;  $\log K_{Zn(w)} = -2,8$  et  $\log K_{Zn(s)} = -2,1$  ;  $\log K_{Pb(w)} = -1,8$  et  $\log K_{Pb(s)} = -1,0$ ). Dans la colonne saturée en Ca, une injection compétitive de Zn et Pb est réalisée suivie d'une désorption par injection de  $CaBr_2$ .

### Modélisation par complexation de surface de la mobilisation du zinc et du plomb dans un sol de bord de route sous l'effet du pH et d'un complexant organique<sup>123</sup>

#### Expérience et données de la littérature

La méthodologie expérimentale en colonne a été appliquée lors de la thèse de C. Delmas pour un sol de bord de route prélevé en région parisienne le long d'un axe routier mis en service en 1972 (RN12 Houdan) et supportant un trafic journalier de 25000 véhicules/jour en 2000 (**Figure 41**). Ce sol présente des teneurs en plomb de l'ordre de 2500 mg/kg et en zinc de 720 mg/kg (teneur moyenne française des sols naturels en zinc de 50 mg/kg et en plomb de l'ordre de 20 mg/L).



**Figure 39** Image MEB du sol de bord de route

L'objectif est d'étudier la mobilité des métaux trace sous l'effet de différents paramètres chimiques et en conditions statiques et dynamiques.

A ce titre, des extractions simples avec une solution saline ( $NaCl$  0,1 et 1 mol/L), de l'EDTA à pH 7 ou une solution d'acide acétique à pH 5 sont réalisées en batch et en colonne. Elles simulent l'influence des fondants routiers à base de sel ou contenant de l'acétate ou des déversements accidentels de produits chimiques (produit acide, complexant organique). Lors du séjour post-doctoral de Khalil Hanna à l'Ifsttar en 2004, nous avons développé un modèle

<sup>123</sup> Hanna K, Lassabatere L, Béchét B (2009) Zinc and lead transfer in a contaminated roadside soil: Experimental study and modeling, *Journal of Hazardous Materials*, 161 (2-3), 1499-1505

réactionnel sous PHREEQC, basé sur la complexation de surface pour simuler les extractions simples à l'EDTA et à l'acide acétique.

Les phases les plus réactives vis-à-vis des métaux sont les minéraux argileux, les oxydes et hydroxydes métalliques et la matière organique<sup>124</sup>. Les métaux trace forment des complexes de surface sur les minéraux silicatés et les oxydes dans les sols, qui peuvent être de type 'sphère interne' ou 'sphère externe' selon la nature de la liaison physico-chimique qui s'établit entre le métal et les groupes fonctionnels (silanol, aluminol, hydroxydes de fer ou manganèse). Les minéraux argileux et la matière organique adsorbent les métaux par échange d'ions ou complexation de surface. Des processus de précipitation et coprécipitation peuvent aussi intervenir à fortes concentrations et pH élevé. Le modèle de complexation de surface a été appliqué avec succès à des sols naturels ou contaminés artificiellement pour décrire les propriétés acido-basiques et l'adsorption de cations et anions dans les sols. Mais en 2004, seul un article est recensé sur la modélisation de processus d'adsorption/désorption dans un sol de bord de route<sup>125</sup>. Le pH et la CEC sont les deux propriétés principales du sol influençant l'adsorption du Pb. La teneur en matière organique est plus importante dans le processus d'adsorption que celle en oxydes ou la précipitation, mais l'adsorption sur les phases argileuses resterait prépondérante. Pour le zinc, la désorption intervient en dessous de pH 5 et la littérature note le rôle majeur des argiles et de la matière organique en terme de rétention du zinc par rapport à la complexation de surface.

### Résultats et modélisation

Les extractions en colonne montrent le faible impact de l'échange cationique sur la mobilité des métaux traces lors de l'injection de la solution saline ; par contre, en présence d'une solution acide ou d'un complexant fort, le plomb et le zinc sont fortement mobilisés. Ils ont des comportements similaires avec une désorption rapide dans les 2 expériences. Les quantités mobilisées sont importantes à pH 5, le plomb montre une affinité plus forte que le zinc pour l'EDTA (**Figure 40**). A noter que les métaux ne sont dosés que dans la fraction dissoute.

La mobilisation des métaux sous l'effet d'une diminution de pH et l'ajout d'un extractant organique a été décrite de façon satisfaisante à l'aide d'un modèle de complexation de surface à un site sur les oxydes métalliques de fer et d'aluminium (**Tableau 6**)<sup>108</sup>.

---

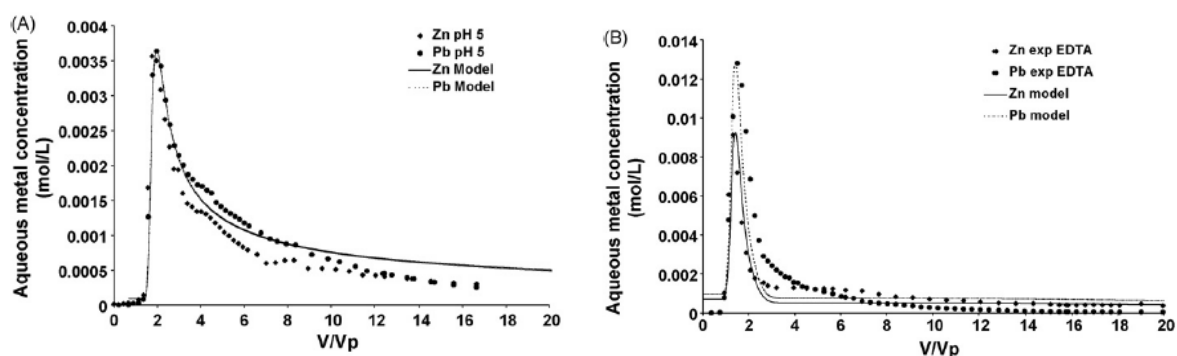
<sup>124</sup> Bradl HB (2004) Adsorption of heavy metal ions on soils and soils constituents, *Journal of Colloid and Interface science*, 277, 1-18.

<sup>125</sup> Dijkstra JJ, Meeussen JCL, Comans RNJ (2004). Leaching of Heavy Metals from Contaminated Soils: An Experimental and Modeling Study. *Environmental Science & Technology* 38 (16), 4390-4395

**Tableau 6** Constantes d'équilibre et constantes d'adsorption intrinsèque utilisées dans le modèle

Reaction	logK		References
Surface reaction (quartz)			
$\equiv\text{SiOH} = \equiv\text{SiO}^- + \text{H}^+$	-6.8		[5]
$\equiv\text{SiOH} + \text{H}^+ = \equiv\text{SiOH}_2^+$	-5.62		[18]
Surface reaction (hydrrous ferric oxides)			[6]
$\equiv\text{FeOH} = \equiv\text{FeO}^- + \text{H}^+$	-8.93		
$\equiv\text{FeOH} + \text{H}^+ = \equiv\text{FeOH}_2^+$	7.29		
Surface reaction (hydrrous aluminum oxides)			[20]
$\equiv\text{AlOH} = \equiv\text{AlO}^- + \text{H}^+$	-12.3		
$\equiv\text{AlOH} + \text{H}^+ = \equiv\text{AlOH}_2^+$	-1.5		
Intrinsic adsorption constants	<u>Pb</u>	<u>Zn</u>	
$\equiv\text{SiOH} + \text{Me}^{2+} \rightarrow \equiv\text{SiOMe}^+ + \text{H}^+$	0.6	1.0	[19]
$\equiv\text{FeOH} + \text{Me}^{2+} \rightarrow \equiv\text{FeOMe}^+ + \text{H}^+$	4.65	0.99	[6]
$\equiv\text{AlOH} + \text{Me}^{2+} \rightarrow \equiv\text{AlOMe}^+ + \text{H}^+$	3.32	2.1	[21-22]

For solutions reactions (acetate and EDTA), MINTEQA2 database were used.



**Figure 40** Comparaison des courbes expérimentales et simulées de désorption de plomb et zinc dans un sol de bord de route sous l'effet d'une variation de pH et de l'injection d'un complexant organique

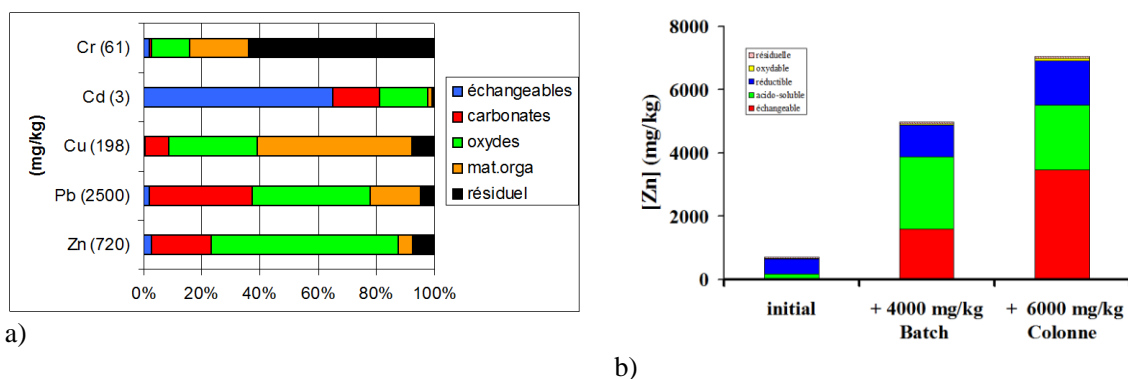
### Modélisation préliminaire d'injection de zinc dans un sol de bord de route <sup>126</sup>

Toujours dans la thèse de C. Delmas, l'adsorption de zinc dans la colonne de bord de route a été simulée expérimentalement par injection d'une solution d'eau d'Evian, dopée avec du zinc sous forme soluble, l'eau d'Evian ayant servi également à la saturation et au conditionnement du milieu poreux.

Les extractions séquentielles sélectives sur le sol indiquent que le zinc est initialement majoritairement présent dans les phases oxydées et carbonatées. La première modélisation d'une expérience de désorption de zinc (et de plomb) sous l'effet de sel (NaCl), basée sur un système d'échanges d'ions entre les cations majeurs (Ca, Na, K, Mg) et Zn, Pb nous indiquent que les concentrations désorbées prédites sont 10 fois supérieures aux concentrations expérimentales. Bien que les constantes d'échange aient été celles de la

<sup>126</sup> Delmas C, Marcos L, **Béchet B**, Legret M (2001) Modelling of the transport of zinc in a roadside soil : evaluation of main retention mechanisms, 6<sup>ème</sup> conférence Internationale sur la Biogéochimie des Eléments Traces (ICOBTE 6th) (28 juillet-2 août 2001, Guelph-Canada)

littérature par rapport à la nature des fractions argileuses identifiées et en étant compte de la CEC mesurée, la simulation théorique simple de cette expérience ne s'avère pas possible, ce qui questionne la nature des phases porteuses de métaux sollicitées par la première phase de l'extraction séquentielle.



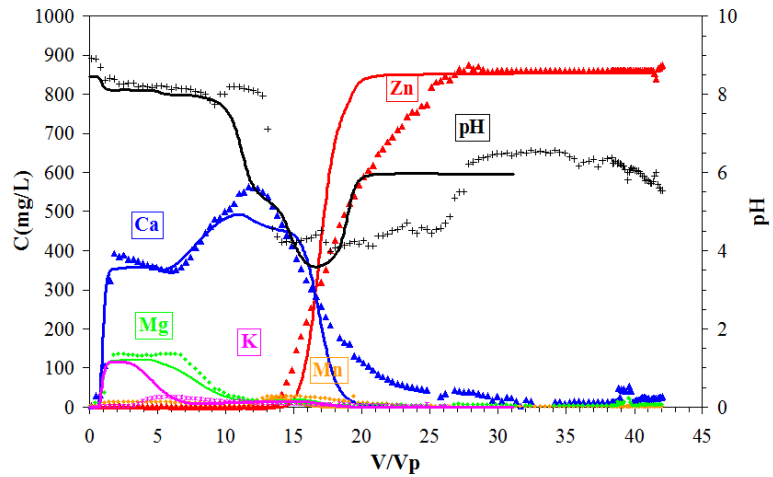
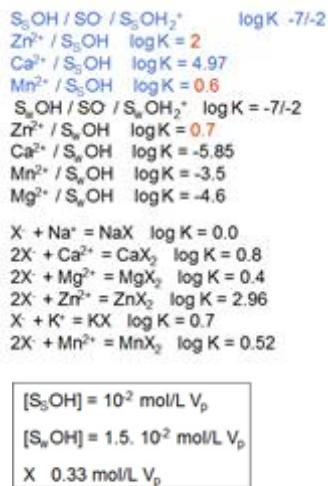
**Figure 41** Sol de bord de route de Houdan (RP) a) schéma d'extraction séquentielle appliqué au sol avant expérience en colonne<sup>127</sup> ; b) schéma d'extraction séquentielle appliqué au sol après expérience en colonne (th. C. Delmas)

Le transfert du zinc en colonne est ensuite modélisé sur la base du système réactionnel intégrant la spéciation en solution du zinc, des réactions de complexation de surface sur deux types de site (en référence aux résultats du système modèle et à la composition minéralogique du sol) et des échanges d'ions vis-à-vis de la réactivité des cations majeurs (Ca, Mg, K) présents dans les éluats (**Figure 42** c). Ce modèle proposé s'appuie aussi sur le fait que les extractions séquentielles post-expérience sur le sol ont montré que l'adsorption du zinc avait lieu préférentiellement sur les fractions échangeable et acido-soluble et dans une moindre mesure, réductible pendant l'injection de la solution (**Figure 41** b).

Les courbes expérimentales et la simulation du transfert sont présentées sur la **Figure 42**. Le modèle proposé simule de façon relativement satisfaisante les courbes de percée du zinc, du calcium, du magnésium, mais partiellement celle du pH. On peut noter que la percée du Zn intervient de façon concomitante avec la baisse du pH en dessous de 5, ce qui est conforme aux conditions de désorption rapportées dans la littérature. Les réactions de dissolution/précipitation des carbonates ne nous avaient pas apparus comme prépondérantes pour décrire l'adsorption du zinc au regard de la littérature<sup>128</sup> (adsorption sur les argiles, les oxydes métalliques et la MO), contrairement à ce que nous aurions pu introduire pour le plomb. Mais pour modéliser le système dans son ensemble, un nouveau modèle intégrant la dissolution/précipitation de la calcite serait à prévoir.

<sup>127</sup> Delmas C, Larpin L, Legret M & Astruc M (2002) Mobility and Adsorption Capacity of Pb and Zn in a Polluted Soil from a Road Environment: Laboratory Batch Experiments, *Environmental Technology*, 23:4, 381-390

<sup>128</sup> Alloway BJ, Heavy metals in soils, second edition, Blackie academic and professional, 1995



**Figure 42** a) Système réactionnel pour modéliser le transfert de zinc en conditions dynamiques (en rouge les variables d'ajustement); b) Courbes de percée du zinc et des cations majeurs et évolution du pH en réponse à une injection échelon de zinc dans de l'eau d'Evian ( $C_0 = 870 \text{ mg/L}$ ) dans un sol de bord de route

## Transfert de métabolites de HAP couplé aux métaux trace dans le sol de bord de route<sup>129</sup>

Les produits de combustion des carburants faisant partie des polluants présents dans les sols de bord de route, un travail expérimental et de modélisation a été développé en collaboration avec K. Hanna et L. Lassabatere, au cours de deux stages de master (2005 et 2007) sur le transfert de métabolites de HAP dans le sol de Houdan.

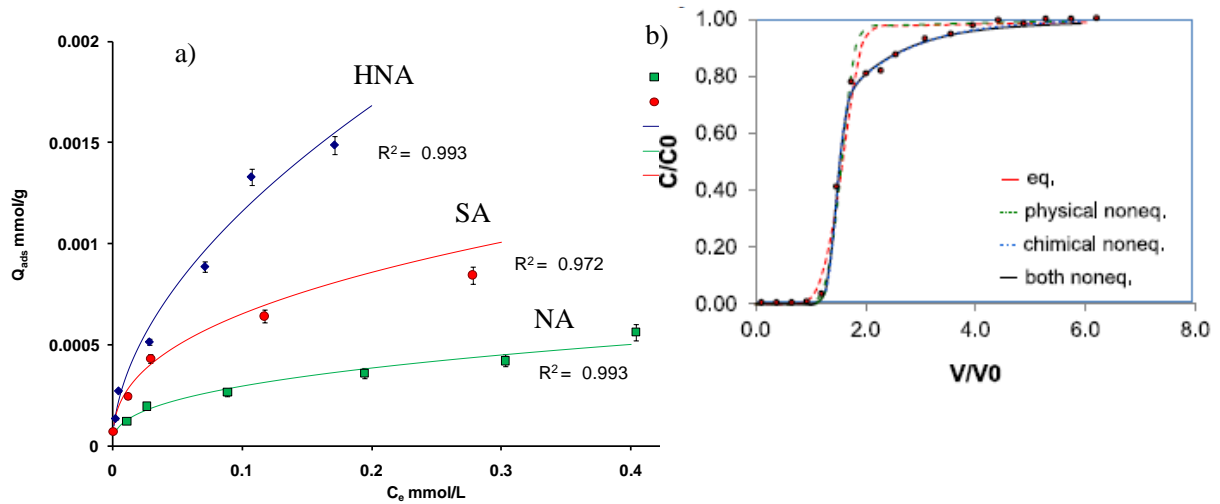
Les composés aromatiques carboxylés et hydroxylés à un ou deux cycles benzéniques sont des produits primaires et la dégradation des HAP à 3 cycles tels que le phénanthrène et l'anthracène. Ce sont aussi les métabolites de HAP à 4 cycles<sup>130</sup>. Pour notre étude, trois acides aromatiques ont été sélectionnés (1-Naphthoic Acide (NA), 1-Hydroxy-2-Naphthoic Acide (HNA) and le salicylate (SA)) pour étudier leur effet sur la désorption des métaux du sol de Houdan, à la fois par des expériences batch à l'équilibre, en faisant varier le pH et les concentrations en acides, et par des expériences en conditions dynamiques.

Le comportement à l'adsorption des trois acides est très dépendant de leur structure moléculaire et de leurs groupes fonctionnels. La simulation du transfert des métabolites, à l'aide de PHREEQC par un modèle hors équilibre Toutes les options de modélisation (équilibre, cinétique chimique, non-équilibre physique et

<sup>129</sup> Hanna K, Lassabatere L, Béchet B (2012) Transport of two naphthoic acids and salicylic acid in soil: experimental study and empirical modeling, *Water Research*, 46, 4457- 4467 [ACL13 et COM14 Annexe B] – stages de Claire Dupouiron et Anaïs La Porte

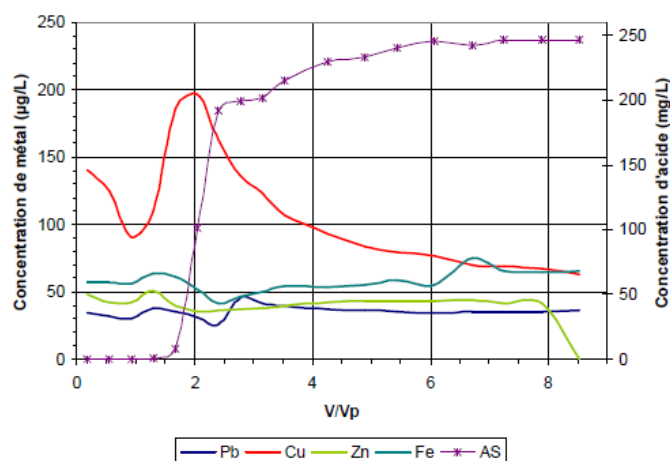
<sup>130</sup> Shuttleworth KL, Cerniglia CE (1995) Environmental aspects of PAH biodegradation. *Applied Biochemistry and Biotechnology* 54, 91-302

nonequilibrium chimique et physique) ont été testées pour décrire le comportement des composés organiques dans les colonnes homogènes. Les paramètres hydrodynamiques ont été déduits d'expériences de traçage non réactif. Dans tous les cas, les paramètres des isothermes diffèrent entre les expériences batch et colonne. Le meilleur modèle a été obtenu en considérant une cinétique physique et chimique, avec une variabilité de l'importance de ces mécanismes selon le type de molécules.



**Figure 43** a) Isothermes d'adsorption de NA, HNA et SA sur le sol (exp. et simulations) (pH  $7 \pm 0.2$  ; NaCl 10 mM comme solution de conditionnement) ; b) Points expérimentaux et simulation du transfert de l'acide salicylique dans le sol de bord de route avec les différents modèles à l'équilibre et hors équilibre

Une étude expérimentale complémentaire a été menée sur la mobilisation facilitée de trois métaux trace, le cuivre, le plomb et le zinc, par l'acide salicylique et a permis d'établir l'influence de l'acide salicylique sur la mobilisation d'au moins un contaminant du sol, le cuivre (Figure 44). Le cuivre complexé avec l'acide sort massivement avec le front de ce dernier puis un processus de mobilisation lent se met en place.



**Figure 44** Courbes de percée de trois métaux trace (Pb, Zn, Cu) lors de l'injection d'acide salicylique dans une colonne de sol de bord de route (concentrations totales)  $Q=1\text{mL}\cdot\text{min}^{-1}$



## Mobilisation des métaux trace sous forme colloïdale dans les sédiments de bassin d'infiltration en fonction des variations de salinité et de la vitesse d'infiltration de l'eau

### Devenir des métaux particuliers dans les bassins d'infiltration

Les métaux trace présents dans les eaux de ruissellement de chaussée ont une forte spéciation particulière, comme nous l'avons exposé au Chapitre 2 – page 58. Clozel et al. (2006)<sup>75</sup> ont de plus montré que cette spéciation variait très peu au sein des sédiments des bassins d'assainissement pluvial, allant dans le sens d'une spéciation acquise en environnement proche de l'émission ou stabilisée en entrée d'ouvrage. Au regard de cette fraction particulière, au demeurant peu étudiée finement dans la littérature des années 90 – 2000 par rapport à la biodisponibilité des métaux<sup>131</sup>, la question se posait donc d'appréhender sa mobilité après incorporation dans les sédiments et leur rôle dans le transfert des métaux trace<sup>132</sup>.

Ce questionnement était motivé par les données plus générales de la littérature sur la spéciation des métaux, indiquant par exemple le contrôle du comportement du cuivre et du zinc dans les sols par la matière organique. Ainsi, la fraction d'acides fulviques et les acides organiques de faible poids moléculaire forment principalement des complexes solubles et des chélates avec le zinc ce qui augmente sa mobilité, les complexes Zn-acides humiques ayant alors un comportement colloïdal.

Les études menées sur la mobilité des métaux traces dans les sédiments au laboratoire, exposées dans les parties précédentes de ce chapitre, montrent que les taux de désorption sont très variables selon l'extractant utilisé (EDTA, acide/base...) et sont souvent étudiés sous l'angle du transport sous forme de soluté<sup>45,133</sup>. Par ailleurs, Dechesne (2002)<sup>134</sup> a répertorié de nombreuses études sur des bassins d'âge différent qui montrent que les eaux souterraines sont très rarement contaminées par les eaux d'infiltration, la couche sédimentaire jouant alors le rôle de filtre. Dans ce cas, les polluants détectés sont souvent des hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) et du zinc, associés à une augmentation des concentrations en carbone organique total<sup>135</sup>. Cependant, l'épaisseur de la zone non saturée sous les bassins et les conditions physico-chimiques jouent un rôle important dans la rétention des polluants dans les cinquante premiers centimètres du sol.

---

<sup>131</sup> M.B. Lara-Cazenave, A. Castetbon, M. Potin-Gautier & M. Astruc (1994) Pollution d'eaux de ruissellement par les métaux lourds en zone urbaine. Deuxième partie: Spéciation, *Environmental Technology*, 15:12, 1149-1159

<sup>132</sup> Kretzschmar R, Borkovec M, Grolimund D, Elimelech M (1999) Mobile subsurface colloids and their role in contaminant transport. *Advances in Agronomy*, 6,6 1-94

<sup>133</sup> Yousef A, Yousef & Lin L Yu (1992) Potential contamination of groundwater from Cu, Pb, and Zn in wet detention ponds receiving highway runoff, *Journal of Environmental Science and Health*. Part A: Environmental Science and Engineering and Toxicology, 27:4, 1033-1044

<sup>134</sup> Dechesne M (2002) Connaissance et modélisation du fonctionnement des bassins d'infiltration d'eaux de ruissellement urbain pour l'évaluation des performances techniques et environnementales sur le long terme, Thèse de doctorat, INSA Lyon.

<sup>135</sup> Winiarski T, Delolme C, Bedell JP, Ghidini M, Perrodin Y (2001). Distribution spatiale des paramètres physico-chimiques et biologiques le long d'un profil de sol d'un bassin d'infiltration d'eaux pluviales de la ville de Lyon. *Novatech*, 2, 751-758

Ce sont donc ces variations de conditions physico-chimiques et de saturation en eau qui nécessitent une attention particulière vis-à-vis de la potentialité de migration des métaux traces au sein des ouvrages d'assainissement pluvial. Cette réflexion a été menée en analogie avec les études conduites sur les sols de bord de route<sup>105,136</sup>. Les sédiments des bassins, comme les sols de bord de route, sont soumis à des variations importantes de salinité des eaux d'infiltration lors des événements pluvieux succédant aux opérations de maintenance hivernale par salage des infrastructures. Les variations de force ionique associées induisent des modifications des forces d'interaction entre les particules colloïdales du milieu poreux et sa matrice solide, favorisant lors de la décroissance de salinité l'entraînement des colloïdes par l'écoulement<sup>118</sup>.

En fonction de la température et de la pluviométrie, le sédiment accumulé en fond de bassin subit des cycles de séchage-réhumidification, ainsi que des variations de charges hydrauliques, provoquant des alternances d'arrêt et de reprise de l'infiltration. Un entraînement de particules qui peut conduire à une réduction de la perméabilité du milieu poreux, accompagne ces mouvements d'eau. Par ailleurs, si l'arrêt puis la reprise du flux ont un impact, l'intensité du débit semble avoir moins d'importance. Ainsi, en présence de particules colloïdales argileuses, ce sont plus les variations de débit que la valeur du débit qui sont responsables des mécanismes physiques pouvant conduire à une déstabilisation du milieu poreux par mobilisation des colloïdes<sup>137</sup>.

De façon complémentaire à ce qui a été présenté dans le chapitre 2 sur les eaux et les sédiments, la thèse de Bertrand Durin (2002-2006) a été également été le support d'une expérimentation *in-situ* et en colonne de laboratoire pour

- 1) évaluer par des données terrain la mobilisation des métaux en surface et dans les sols des bassins sous forme particulaire ;
- 2) étudier l'influence de la variation de charge hydraulique et de salinité sur la mobilisation des éléments traces présents dans le sédiment du bassin de rétention-infiltration des eaux de ruissellement du pont de Cheviré.

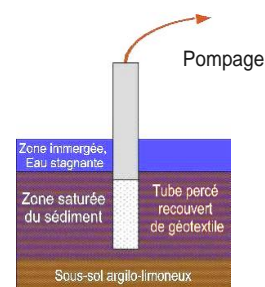
---

<sup>136</sup> **Béchet B**, Legret M (2003) Colloid-mediated transport of heavy metals from a contaminated roadside soil, , ICOBTE 7th, June 15-19, Uppsala, Sweden [COM 4, stage de N. Lucas]

<sup>137</sup> Gao B, Saiers JE, Ryan JN (2004). Deposition and mobilization of clay colloids in unsaturated porous media. *Water Resources Research*, 40, 6021-6028

## Distribution des métaux trace et des majeurs dans les eaux de surface et les eaux de pore du bassin de Cheviré<sup>138</sup>

En complément de l'échantillonnage des eaux de ruissellement (cf Chapitre 2), les eaux de surface du bassin de Cheviré ont été prélevées en deux endroits du bassin (n=11) et les eaux porales, dans un tube piézométrique installé près de l'exutoire du bassin (n=8).



**Figure 45** Schéma d'implantation du tube piézométrique

Les eaux de surface et les eaux porales ont été analysées de façon globale, après filtration à 0,45 µm et ultrafiltration selon le protocole décrit Chapitre 2 – p. 62 pour caractériser la spéciation de métaux (Zn, Cu et Pb) et évaluer son évolution depuis la chaussée jusque dans le sol du bassin.

La perte de MES (et diminution des teneurs en éléments majeurs associés) par décantation est observée mais une teneur en MES équivalente à celle des eaux de surface est notée pour les eaux porales, associée à une concentration en Al marquée et une concentration en carbone diminuée de moitié par rapport aux eaux de ruissellement (**Tableau 7**).

Une observation intéressante a été faite concernant les teneurs en éléments trace, équivalentes dans les eaux de surface et les eaux porales : tout se passe comme si, la fraction décantable des métaux était piégée dans le sédiment, mais que la fraction dissoute et colloïdale qui reste en suspension dans les eaux de surface s'infiltrait au travers du sédiment. Un bilan des masses dans les différents compartiments (entrée, surface, sédiment, sol sous-jacent) sur une période de temps pourrait être fait pour étayer cette hypothèse.

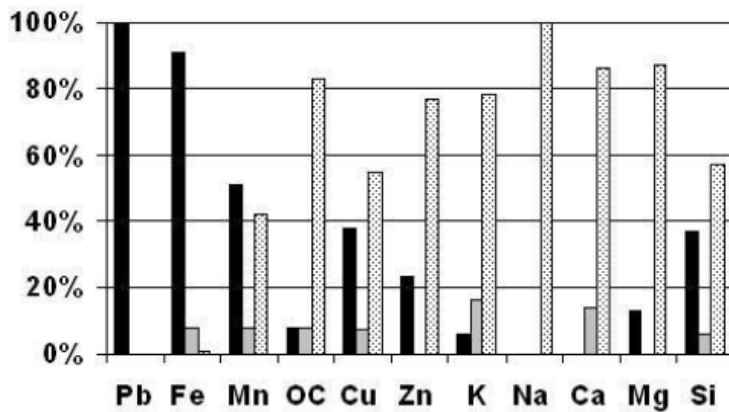
**Tableau 7** Paramètres physico-chimiques, concentrations totales en éléments majeurs et trace dans les eaux de ruissellement, de surface et eaux porales dans le bassin de Cheviré (valeur moyenne (max- min), limite de quantification en italique ; valeur du SEQ-Eau pour les eaux (remplacées par les NQE maintenant))

Type of waters	Runoff	Surface	Pore
pH	6.7 (6.2 – 7.1)	6.7 (6.3 – 7.2)	6.6 (6.2 – 7.2)
Conductivity (µS/cm)	436 (177-748)	316 (138-24000)	432 (133-1345)
Eh	84 (10-199)	136 (100-192)	150 (90-233)
Total Suspended Solids (mg.L <sup>-1</sup> )	407 (3-1340)	67 (3-184)	88 (11-254)
Si (mg.L <sup>-1</sup> )	3.8 (1.5 – 6.2)	1.6 (1.2 – 2.3)	1.7 (1.5 – 2.1)
TOC (mg.L <sup>-1</sup> )	18 (3 –40)	15 (4 - 26)	8 (6 - 13)
Fe (mg.L <sup>-1</sup> )	5.1 (0.2-17)	0.77 (0.2-1.8)	0.9 (0.1-2.7)
Al (µg.L <sup>-1</sup> )	1900 (100 – 5500)	380 (100 – 840)	550 (100 – 1450)
Mn (µg.L <sup>-1</sup> )	230 (10 – 645)	70 (10 – 340)	30 (10 – 83)

<sup>138</sup> Durin B, Béchet B, Legret M, Le Cloirec P (2007) Role of colloids in heavy metal transfer through a retention-infiltration basin, *Water Science & Technology*, 56 (11), 91-99. [ACL5]

Type of waters	Runoff	Surface	Pore	Medium quality
Zn ( $\mu\text{g.L}^{-1}$ )	1882 (225 – 3147)	530 (212 – 1842)	460 (220 – 980)	98
Cu ( $\mu\text{g.L}^{-1}$ )	341 (22 - 998)	63 (20 - 157)	63 (26 - 120)	15
Pb ( $\mu\text{g.L}^{-1}$ )	72 (1 -265)	18 (1 - 67)	24 (5 - 92)	250

Une augmentation de la phase colloïdale et des concentrations élevées en métaux trace a été observée dans les eaux interstitielles du sédiment. Jusqu'à 100 % de Pb et 60 % de Cu et de Zn peut être associé à des particules supérieures à 5 kDa (**Figure 46**), avec une variabilité très forte. Une analyse en composantes principales (PCA) a confirmé la proximité des caractéristiques des eaux de surface et porales. Toutefois, les groupes de variables corrélées ne sont pas identiques : (Zn, Mn, conductivité, Na, Mg et Ca) et (Pb, Fe, Al, Cu et MES) pour les eaux de surface ; (Cu, Ni, Zn, pH et Al) et (Na, conductivité, Si, K, Ca) pour les eaux porales.



**Figure 46** Répartition des métaux trace et des éléments majeurs entre les fractions dissoutes, colloïdales et particulaires d'une eau porale prélevée le 13 août 2004 sur le bassin de Cheviré

### Mobilisation colloïdale des métaux trace de sédiments de l'assainissement pluvial sous l'effet de variations de salinité et de charge hydraulique<sup>139</sup>

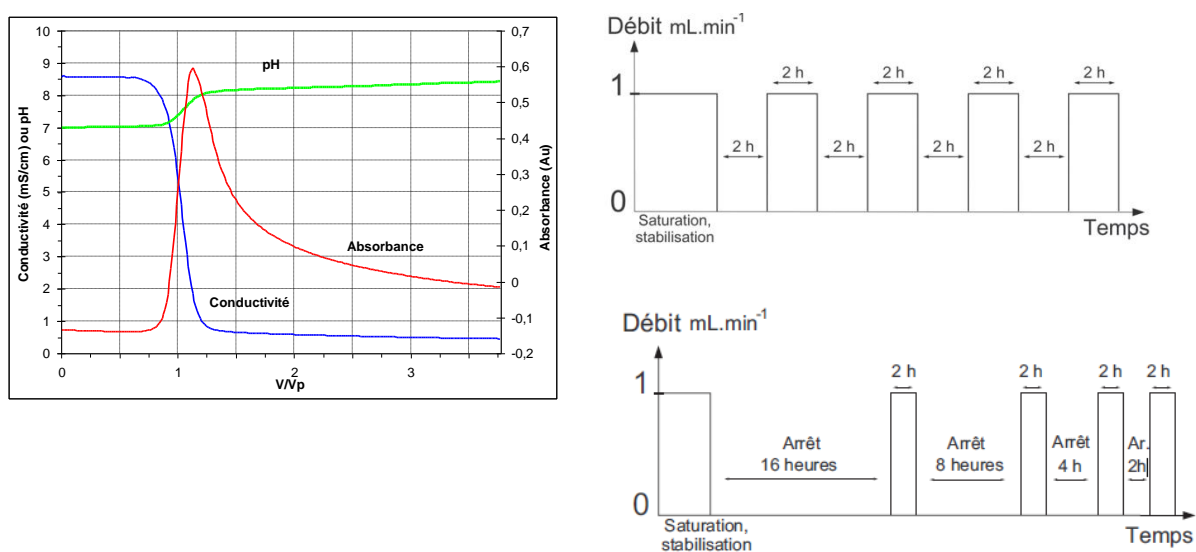
Les résultats présentés ci-dessous émanent des travaux expérimentaux sur le sédiment du bassin de Cheviré réalisés sur colonne de laboratoire, publiés lors de la thèse de B. Durin. D'autres expérimentations en colonne ouverte pour étudier la mobilisation en conditions plus représentatives d'une infiltration ont été menées sur trois sédiments dans le cadre de l'opération de recherche 11M063 « Caractérisation et gestion

<sup>139</sup> Durin B, Béchét B, Legret M, Le Cloirec P (2007). Arrêt-reprise de l'écoulement : influence sur la mobilisation des éléments traces d'un sédiment de bassin d'infiltration, *La Houille Blanche*- Revue internationale de l'eau, EDP Sciences, N°5, 120-126 [ACL4, ACTI2, COM6 et 7]

Durin B, Béchét B, Legret M, Le Cloirec P (2005) Mobilisation par changement de salinité des métaux lourds d'un sédiment de bassin d'infiltration, *La Houille Blanche* - Revue internationale de l'eau, EDP Sciences, N°5, 19-25.

des sédiments de l'assainissement pluvial » (2006-2009). Les résultats sont publiés dans le rapport de projet<sup>140</sup>.

Le montage expérimental décrit p 107 de ce Chapitre 3 a été utilisé pour appliquer a) des créneaux de salinité décroissants au sédiment (représentation des alternances de salage et d'épisodes pluvieux pendant les périodes hivernales) et b) une succession d'arrêt-reprise d'écoulement dans la colonne avec des temps d'arrêt variable (effet d'une infiltration variable en fonction de l'intensité de la pluie) (**Figure 47**). L'analyse du transport facilité des métaux par des phases colloïdales s'est faite à l'aide d'un fractionnement par filtration et ultrafiltration et dosages des métaux traces et des éléments majeurs dans les différentes fractions de l'éluat de colonne.

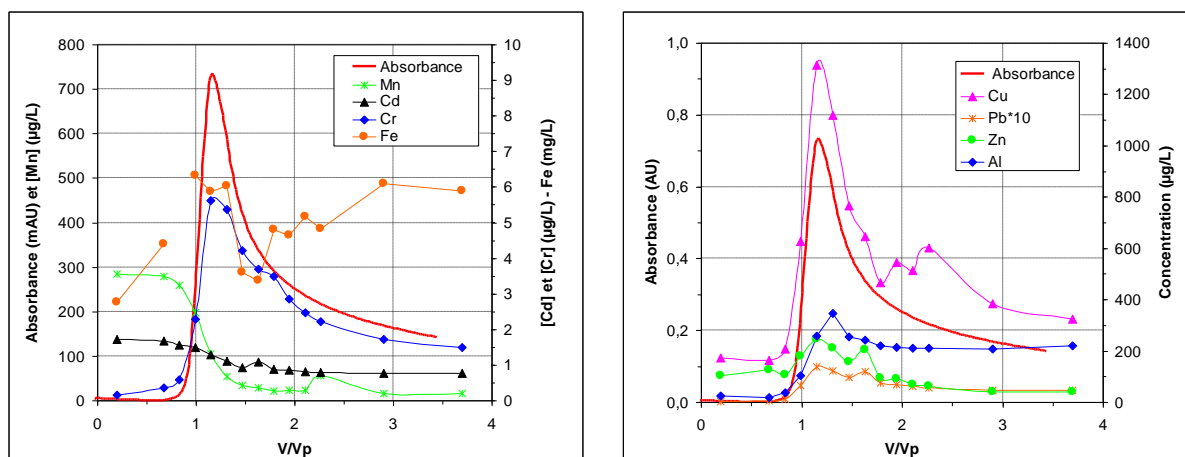


**Figure 47** Protocole des expérimentations en colonne a) créneau de salinité décroissant indiqué par la courbe de conductivité ; b) arrêt-reprise du débit avec arrêt de durée constant et arrêt de durée variable

### Influence d'une variation de salinité

La mobilisation des métaux trace (Cu, Cr, Pb, Zn), à l'exception du cadmium, à partir de la matrice sédimentaire contaminée est mise en évidence lors d'une variation de salinité de l'eau interstitielle (**Figure 48**). Les métaux les plus sensibles sont le plomb, le cuivre et le chrome (**Tableau 8**). Cependant, seule la concentration en cuivre dépasse les normes de qualité pour une eau de rivière (1,7 à 27 µg/L). On notera aussi que la concentration du zinc dans l'éluat de sédiment reste toujours supérieure aux limites de qualité pour le milieu naturel (23 à 140 µg/L). Cette conclusion reste valable pour l'eau *in-situ* dans le cas du zinc.

<sup>140</sup> Ruban V et al. (2009) Les sédiments de l'assainissement pluvial routier et urbain : caractérisation, risques pour l'environnement, traitement et valorisation, ERLPC, EG 23, LCPC, 152 p. [OS1]

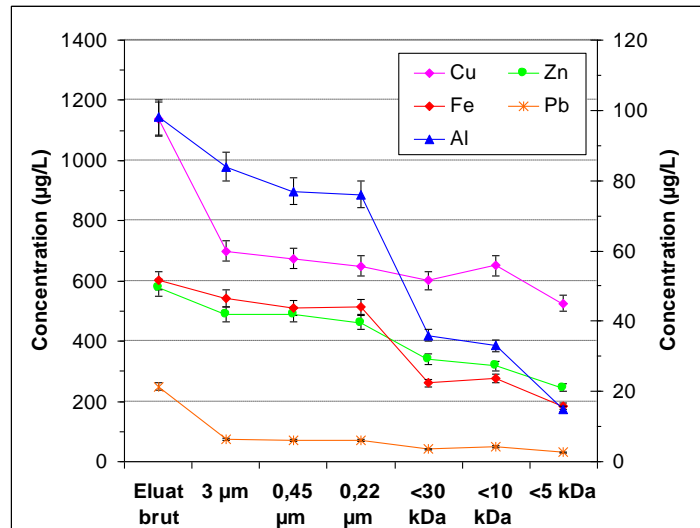


**Figure 48** Variation de l'absorbance et de la concentration en éléments majeurs et métaux en sortie de colonne de sédiment sous l'effet d'un changement de salinité ( $\text{NaCl } 8.10^{-2} \text{ M}$  à  $10^{-4} \text{ M}$ ) ;  $Q = 0,8 \text{ mL/mm}$  ; volume poreux ( $V_p$ ) =  $30 \text{ cm}^3$  – L'évolution de la teneur en carbone organique suit celle de l'absorbance ( $R^2 = 0,96$ )

**Tableau 8** Concentrations en métaux traces au cours des différentes phases de l'expérience type de créneau décroissant de salinité

Concentration ( $\mu\text{g/L}$ )	Pb	Cr	Cu	Zn	Cd
Phase de conditionnement (moyenne de concentration)	0,7	1,8	469	211	2,2
Pic d'absorbance	13,9	5,6	1313	247	1,3
Rapport	18,6	3,2	2,8	1,2	<1

Les expériences de filtration et ultrafiltration ont mis en évidence la répartition des métaux traces dans différentes fractions colloïdales, en association avec le fer et l'aluminium (**Figure 49**). Le cuivre apparaît comme colloïdal à 20% et dissous (<5 kDa) à 80% pour la fraction inférieure à  $3 \mu\text{m}$  qui représente 63% du cuivre total. Le zinc est plus présent sous forme colloïdale (65%) de la fraction inférieure à  $3 \mu\text{m}$ .



**Figure 49** Spéciation physique du Zn, Cu et Fe (axe de gauche) et Pb, Al (axe de droite) dans un éluat de colonne de sédiment recueilli lors d'un créneau de salinité décroissant

#### Influence des variations d'arrêt-reprise de l'écoulement

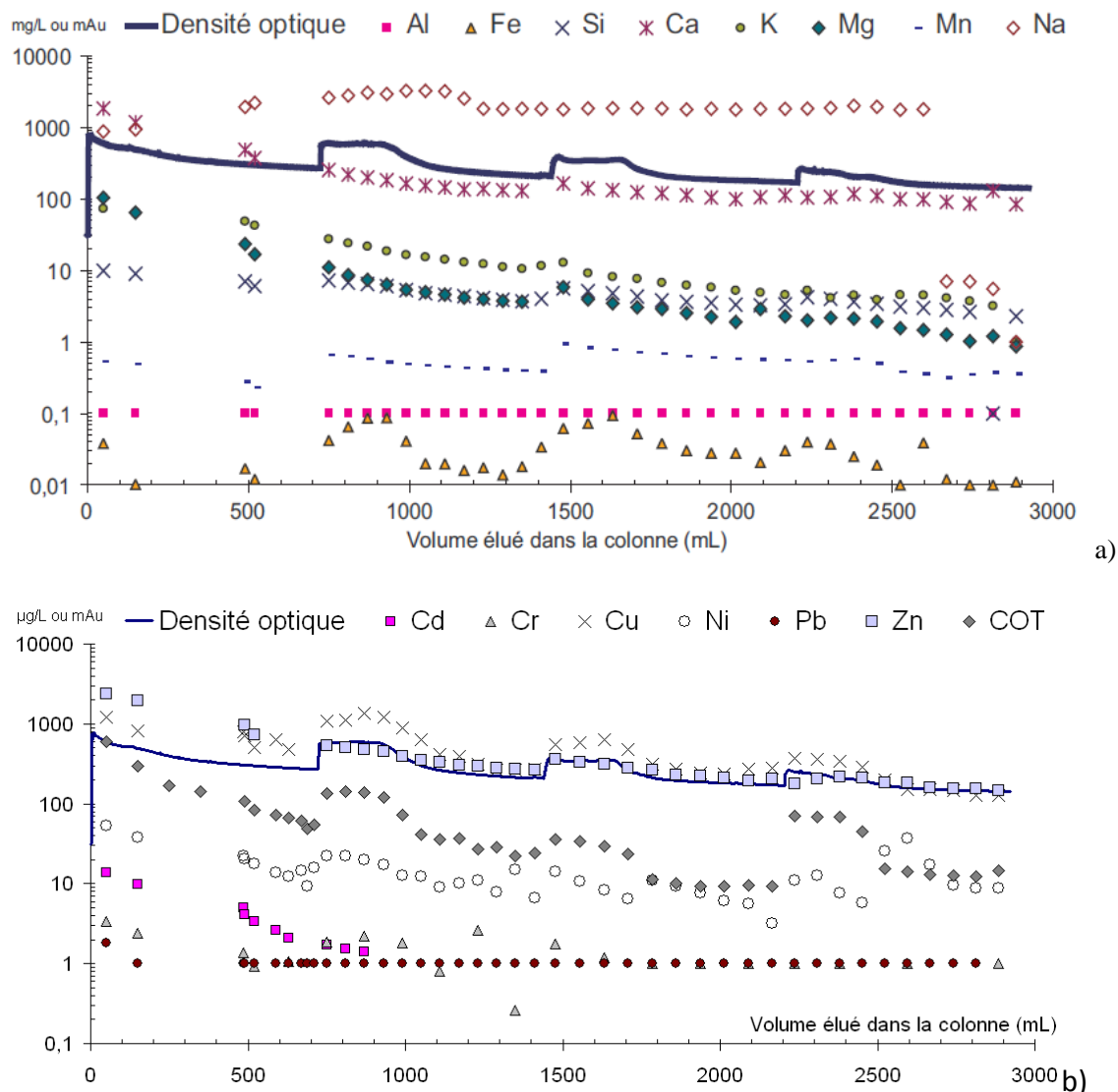
Les alternances d'arrêt et reprise de l'écoulement génèrent un relargage de particules qui peuvent avoir une origine organique ou minérale (**Figure 50**). Le fer est l'élément majeur qui présente la plus forte réactivité, avec le carbone organique. Les particules organiques sont à rechercher parmi les acides organiques issus de la dégradation de végétaux (substances humiques et acides fulviques) ou des débris biologiques (biofilm, virus, protozoaires, etc.) (bactéries vivantes et mortes mises en évidence par coloration dans l'éluat). La question de la nature de la matière organique présente dans les sédiments et de sa mobilisation est très complexe. Dans le contexte de l'assainissement routier, la matière organique est mixte, d'origine naturelle et anthropique<sup>141</sup>. Les particules minérales, en plus faible quantité, sont certainement, en raison de la spéciation du fer (Fe(III) dans les conditions expérimentales), des oxyhydroxydes.

Les résultats montrent une évolution similaire des teneurs en COT et en Cu. Ce résultat est en cohérence avec son affinité pour la matière organique naturelle, que l'on retrouve aussi pour les sédiments de bassin dans les extractions séquentielles. Le nickel pourrait montrer aussi une sensibilité aux variations d'écoulement.

La reprise du flux provoque systématiquement un relargage de particules de nature organique dans le milieu poreux mais on constate un « épuisement » de la quantité de particules disponibles lorsque la vitesse d'écoulement reste la même. En revanche, après un arrêt long (arrêt de 12 heures), une grande quantité de particules peut être mobilisée. Dans ce cas, l'hypothèse avancée est que le temps d'arrêt de l'écoulement a

<sup>141</sup> Durand C, Ruban V, Amblès A (2004). Characterization of organic matter of sludge : determination of lipids, hydrocarbons and PAHs from road retention/infiltration ponds in France, *Environmental pollution*, 132(3), 375-384.

permis une diffusion des particules colloïdales dans l'espace poral, depuis les agrégats du matériau. À la reprise du flux, sous l'effet du cisaillement, les particules sont mobilisées et transportées dans le sédiment.



**Figure 50** Variations de la densité optique, des concentrations en éléments majeurs et traces et en carbone organique total dans les éluats de colonne de sédiment soumise à des arrêts-reprises de l'écoulement à pas de temps constant ( $V_p = 200$  mL)

### Caractérisation des particules mobilisées à partir de sédiments de l'assainissement pluvial

Par les expériences en colonne sur le sédiment de Cheviré et parallèlement les premières visualisations au MET de la complexité particulaire des eaux de ruissellement <sup>142</sup>, nous avons les éléments pour poser l'hypothèse solide d'un transfert colloïdal de métaux trace dans le sédiment. Afin de conforter cette

<sup>142</sup> Projet de recherche EMMAUS ACI FNS/ECCO (2004 – 2006) ' Etude et modélisation du transfert de métaux lourds issus de l'assainissement pluvial urbain dans les sols' coordonné par C. Delolme ENTPE

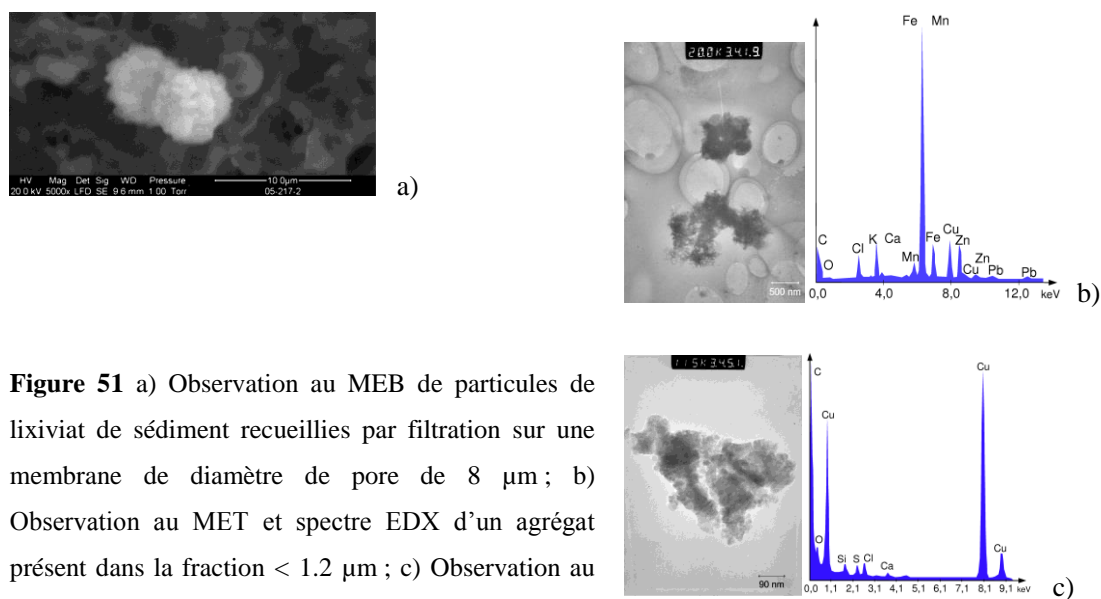


hypothèse, des **observations au MEB et au MET**, ainsi qu'un **fractionnement par couplage flux-force (FFF) couplée à de l'analyse chimique par ICP-MS** ont été réalisées sur quelques échantillons, en collaboration avec P. Le Coustumer (EA n° 4592 «Géoressources et Environnement» Univ. Bordeaux ENSEGD)<sup>143</sup>.

Ces premiers essais ont motivé d'autres visualisations par la suite avec le microscope environnemental de l'IFSTTAR Paris (appui de Myriam Duc GERS) mais sans que je puisse établir un protocole d'observation et de microanalyse systématique pour avoir des résultats qualitatifs solides. Cependant les résultats étaient prometteurs et le développement de la plateforme d'observation et de microanalyse sur Nantes offre maintenant de nouvelles opportunités, notamment par le facteur 10 gagné en terme de définition des images MEB.

### Images MEB/MET et microanalyses de particules

Les observations ont mis en évidence de nombreuses particules de nature organique et des minéraux siliceux (**Figure 51**). Le couplage avec la microanalyse a permis de visualiser la présence de cuivre sur des agrégats organiques et une association Fe/Mn avec Pb/Zn/Cu.

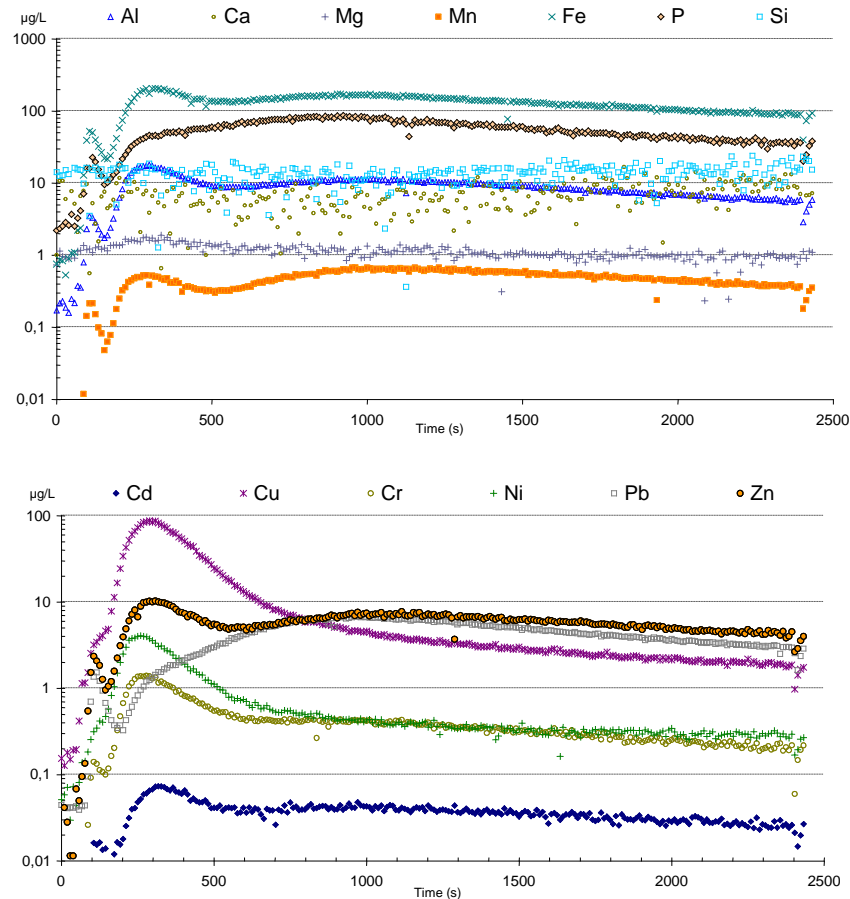


**Figure 51** a) Observation au MEB de particules de lixiviat de sédiment recueillies par filtration sur une membrane de diamètre de pore de 8 µm ; b) Observation au MET et spectre EDX d'un agrégat présent dans la fraction < 1.2 µm ; c) Observation au MET et spectre EDX d'un agrégat présent dans la fraction < 30 kDa

La FFF fractionne de façon continue les colloïdes et les macromolécules en fonction de leur coefficient de diffusion et de leur diamètre hydrodynamique (**Figure 52**). Une analyse chimique sur les fractions collectées permet d'établir des concomitances de présence.

<sup>143</sup> Durin B, Le Coustumer P, Stolpe B, Béchet B, Legret M and Le Cloirec P (2006). Colloidal characterisation of leachate from a contaminated retention pond sediment column. Conférence IAP Grenoble

En haute résolution, de très petits colloïdes sont séparés. Deux modes sont observés mais seul le premier mode à 25 nm est retenu. Le nickel et le chrome, puis le cuivre, le zinc et le cadmium sont présents dans ce mode colloïdal. Le mode basse résolution n'avait pas amené d'information supplémentaire. De façon générale sur ces ensembles d'observation et d'analyse, les colloïdes caractérisés sont majoritairement des oxydes d'aluminium, des silicates et des substances humiques distribuées selon 3 modes majeurs : 25 nm, 100 nm et 800 nm.



**Figure 52** Analyse ICP-MS après fractionnement par FFF des éléments majeurs et trace d'un éluat brut (filtré à 10 µm) de colonne de sédiment – Mode haute résolution : flux principal de 0,5 mL.min<sup>-1</sup> et perpendiculaire de 3 mL.min<sup>-1</sup>, fluide porteur NH<sub>4</sub>Cl 15 mM à pH 8

## **Transferts d'eau et de colloïdes dans des sols sableux hétérogènes : influence d'une macroporosité et d'une stratification par géotextile dans un système modèle**

### **Description et modélisation du transfert de colloïdes sous influence d'hétérogénéités structurales et de la non-saturation en eau**

Lors de la construction de bassins d'infiltration d'eaux de ruissellement urbaines, les caractéristiques des sols de fond de bassin doivent être prises en compte tant du point de vue du risque de colmatage que de celui du transfert de polluants sous forme dissoute ou particulaire colloïdale. L'hétérogénéité (structure, texture) des sols servant de support aux bassins d'infiltration peut influencer les écoulements d'eau car ils sont souvent constitués de divers matériaux, de granulométrie et porométrie hétérogènes, stratifiés (présence de strates « naturelles » ou artificielles « géotextiles »), favorables à l'infiltration d'eau et au transfert de matière. Les hétérogénéités et notamment l'introduction d'un géotextile en fond de bassin d'infiltration peuvent cependant modifier l'écoulement et le transfert colloïdal dans les ouvrages d'infiltration et influencer de manière significative le transfert des contaminants vers des horizons géo-pédologiques plus profonds. Lassabatere et al.<sup>144</sup> ont mis en évidence la modification de la rétention de métaux lourds en présence d'un géotextile dans un sol réactif, par homogénéisation de l'écoulement, le contact entre les métaux lourds et les particules réactives du sol étant augmenté. De même, un piégeage des polluants particuliers est souvent observé dans les géotextiles.

Les particules colloïdales sont mobilisées et migrent dans les sols par une grande variété de processus hydrologiques, physico-chimiques, géochimiques et microbiologiques<sup>145</sup>. Ce phénomène complexe en milieu poreux est constitué d'un ensemble de mécanismes contrôlant le mouvement des particules à travers l'espace interstitiel (advection, dispersion, diffusion brownienne) et le processus de libération et de capture par rapport aux surfaces solides ou au niveau de constriction entre les grains<sup>146</sup>. La capture des particules colloïdales dans les milieux poreux saturés est attribuée à trois mécanismes principaux : attachement physico-chimique, filtration mécanique (non pénétration dans un pore) et piégeage entre deux grains (straining). Les interactions physico-chimiques se produisent lorsque les colloïdes s'approchent des surfaces par diffusion, sédimentation ou forces inertielles<sup>148</sup>. Le 'straining' a été reconnu comme étant un mécanisme important de rétention des colloïdes<sup>147</sup>. La présence d'une phase gazeuse dans les milieux partiellement saturés induit des mécanismes supplémentaires de rétention, comme l'attachement à

---

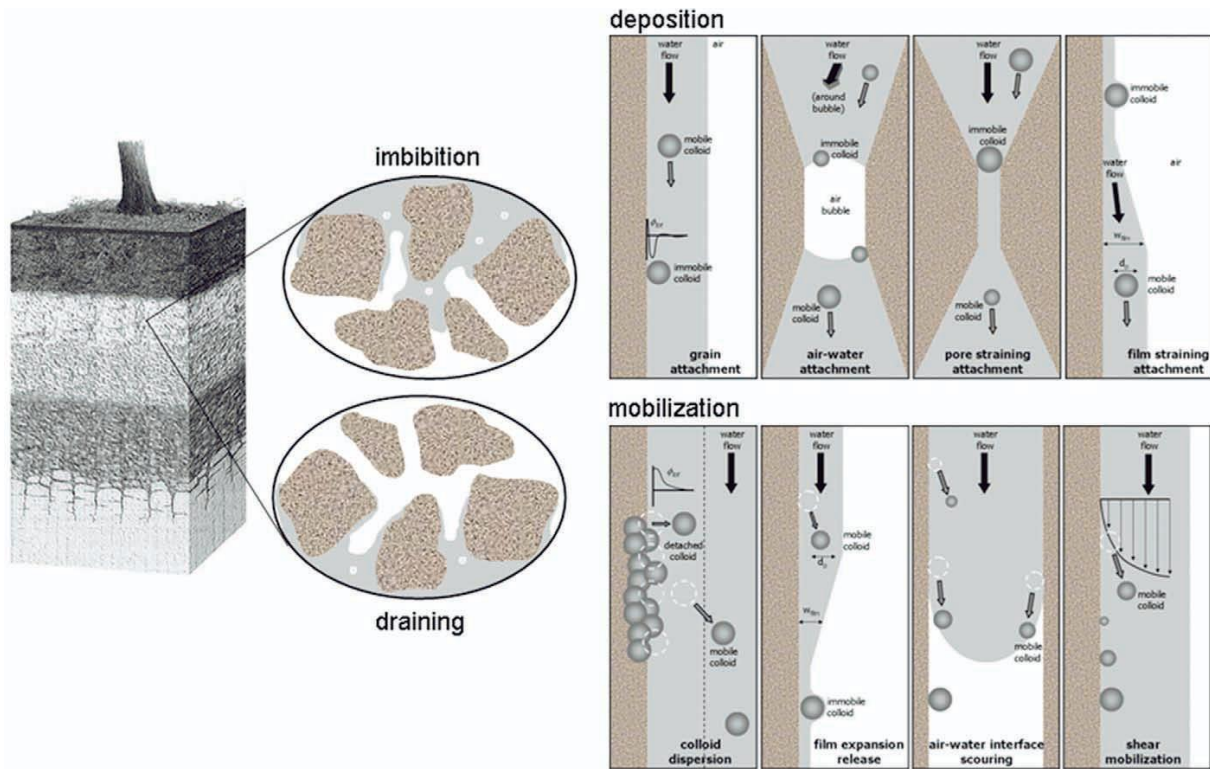
<sup>144</sup> Lassabatere L, Winiarski T, Galvez Cloutier R (2004) Retention of three heavy metals (Zn, Pb and Cd) in a calcareous soil controlled by the modification of flow with geotextiles. *Environ. Sci. Technol.* 38(15) 4215-4221

<sup>145</sup> Ryan JN, Elimelech M (1996) Colloid mobilization and transport in groundwater. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects* 107, 1-56.

<sup>146</sup> DeNovio NM, Saiers JE, and Ryan JN (2004) Colloid Movement in Unsaturated Porous Media: Recent Advances and Future Directions, *Vadose Zone Journal* 3(2):338-351

<sup>147</sup> Molnar IL, Johnson WP, Gerhard JI, Willson CS, and O'Carroll DM (2015) Predicting colloid transport through saturated porous media: A critical review, *Water Resour. Res.*, 51, 6804-6845

l'interface air-eau. Le 'film straining' en milieu non saturé représente le mécanisme de restriction physique du transport de particules au niveau des films d'eau moins épais que le diamètre des particules.



**Figure 53** Schéma extrait de DeNovio et al (2004)<sup>146</sup> présentant l'ensemble des mécanismes qui agissent sur les particules colloïdales lors de leur transfert dans un milieu poreux non saturé (processus d'attachement et de détachement)

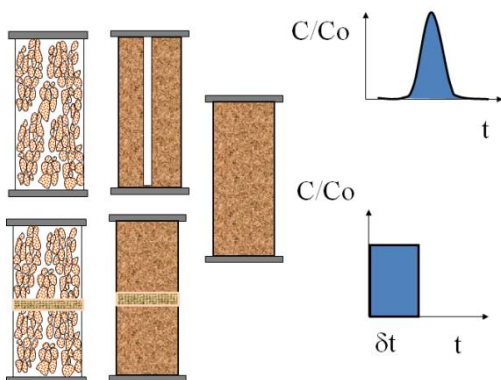
Les modèles mathématiques de transport de colloïdes se fondent habituellement sur l'équation unidimensionnelle d'advection et de dispersion (ADE), couplée à différents types de modèles pour décrire les interactions des colloïdes avec la matrice solide. La mobilisation et la capture des colloïdes sont généralement décrites au moyen de la théorie de la filtration, dans laquelle le processus global est formulé comme une cinétique du premier ordre. Les modèles récents considèrent plusieurs sites de fixation : cinétique de type Langmuir, blocage sur site de sorption et hétérogénéité de physiques et chimiques en phase solide<sup>148</sup>. L'ADE classique a été appliquée avec succès pour analyser le transport colloïdal des expériences en milieu poreux homogène, tels que des matériaux sableux en conditions hydriques saturées ou insaturées. Mais les sols naturels ou artificiels, tels que des sols des bassins de recharge, présentent souvent une variété de petites hétérogénéités à petite échelle tels que des agrégats, des fissures, des macropores....Une conséquence de cette hétérogénéité physique (échelle de pore) est la variation dans la

<sup>148</sup> Sen T.K. and Khilar K. C. (2006). Review on subsurface colloids and colloid-associated contaminant transport in saturated porous media, *Adv. Colloid Interface Sci.*, 119 (2-3), 71-96

vitesse du fluide à l'échelle du pore. Une approche commune pour faire face à cette difficulté est d'appliquer le concept de flux de deux régions, en tenant compte du transport hors équilibre physique. Cette approche a été appliquée, par exemple, pour décrire le transfert des colloïdes modèle dans les milieux sableux saturés<sup>149</sup>. Plusieurs études ont mis l'accent sur les facteurs physico-chimiques (y compris le degré de saturation de l'eau) qui pourraient influencer la rétention de colloïdes dans un milieu à simple porosité, mais les processus de transfert colloïdal en milieux poreux hétérogènes, même si l'hétérogénéité de la structure des matériaux poreux, comme la porométrie, a été soulignée comme l'un des paramètres majeurs de contrôle du transfert d'eau et de polluants. De plus, il est important de continuer à apporter des éléments de compréhension sur le devenir des colloïdes en zone non saturée.

## Système expérimental

Les expériences menées dans le cadre de la thèse de E. Lamy consistent en l'injection d'un traceur de l'eau (KBr) ( $5 \times 10^{-2} \text{ mol.L}^{-1}$ ) et d'une suspension de particules de latex ( $1 \text{ }\mu\text{m}$  de diamètre,  $200 \text{ mg.L}^{-1}$ ), dans 4 types de milieux poreux, en condition saturée et pour une condition de saturation partielle (**Figure 54**): milieu sableux témoin (sable d'Hostun), milieu sableux macroporé (introduction d'un macropore métallique de mm de diamètre), milieu sableux stratifié (introduction d'un géotextile aiguilleté à fibres longues humide au milieu du lit), milieu granulaire (à base de quartz et de tobermorite



$\text{Ca}_5(\text{OH})_2\text{Si}_6\text{O}_{16}(\text{H}_2\text{O})_4$ ).

**Figure 54** Schéma des colonnes et du protocole d'injection du traceur et des colloïdes

Le matériau granulaire a été choisi en raison de sa double porosité: une porosité inter-granulaire ou macroporosité (environ 50 % de la porosité totale soit, 39 %) et une porosité intra granulaire ou microporosité, dite aussi porosité matricielle. L'analyse granulométrique a donné

une distribution minimale et maximale de diamètre des grains de 0,4 et 5 mm respectivement et un diamètre médian  $d_{50}$  de 1,5 mm. Le géotextile a les propriétés suivantes : épaisseur de 8 mm, porosité de 86,5%, conductivité hydraulique de  $3,5 \times 10^{-3} \text{ m.s}^{-1}$  et ouverture de filtration de  $50 \text{ }\mu\text{m}$ . Les colonnes en PVC ont un diamètre intérieur de 10 cm et une hauteur de lit poreux de 24 cm. Les colonnes ont été saturées avec une solution de NaCl ( $5 \times 10^{-4} \text{ mol.L}^{-1}$ ), également solution de fond. L'injection est réalisée à une vitesse darcienne constante de  $0,12 \text{ cm.min}^{-1}$  en saturé et non saturé. Le volume d'eau moyen  $V_0$  dans chaque colonne en conditions saturées est de  $1495 \text{ cm}^3 \pm 1,5\%$ . Dans le cas des expériences en conditions non saturées, les colonnes préalablement saturées sont drainées pendant 24 heures. La teneur en eau dans

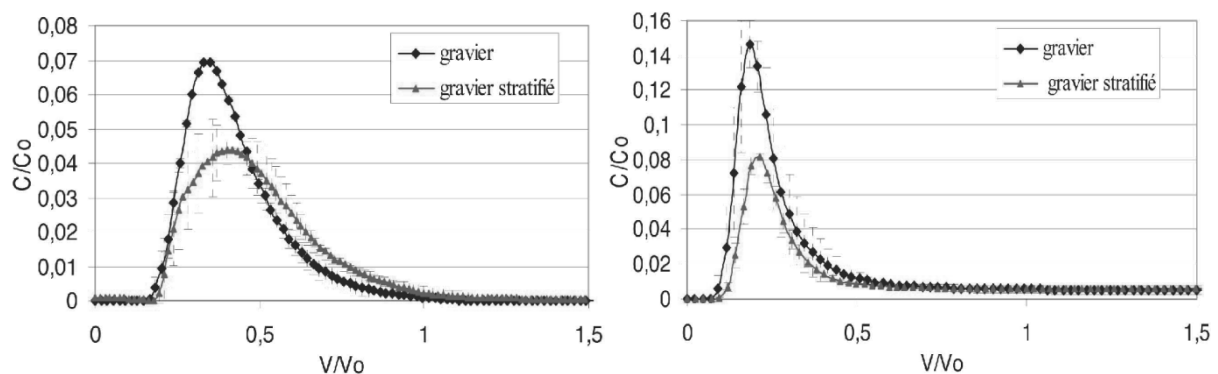
<sup>149</sup> **Harmand B**, Rodier E, Sardin M, Dodds J (1996) Transport and capture of submicron particles in a natural sand : short column experiments and a linear model, *Colloids and Surfaces A*, 107, 233-244.

chaque colonne a été fixée en injectant, par le haut, une solution de NaCl ( $5 \times 10^{-4} \text{ mol.L}^{-1}$ ). Au moment de l'apparition de la première goutte de solution en bas de la colonne, un pompage avec une deuxième pompe est enclenché en sortie de colonne afin d'assurer un régime hydraulique permanent. Le volume  $V_0$  en conditions non saturées est de  $1005 \text{ cm}^3 \pm 4 \%$ , soit un taux de saturation de 66 %. Le volume de KBr injecté est de 200 mL, celui des particules de 80 mL. La force ionique de la suspension colloïdale a été fixée à  $5.10^{-4} \text{ mol.L}^{-1}$  par ajout de NaCl. La concentration en particules est calculée après mesure de l'absorbance en continu de l'éluat à 254 nm.

### Influence d'un géotextile sur la rétention de colloïdes dans un milieu poreux à double porosité<sup>150</sup>

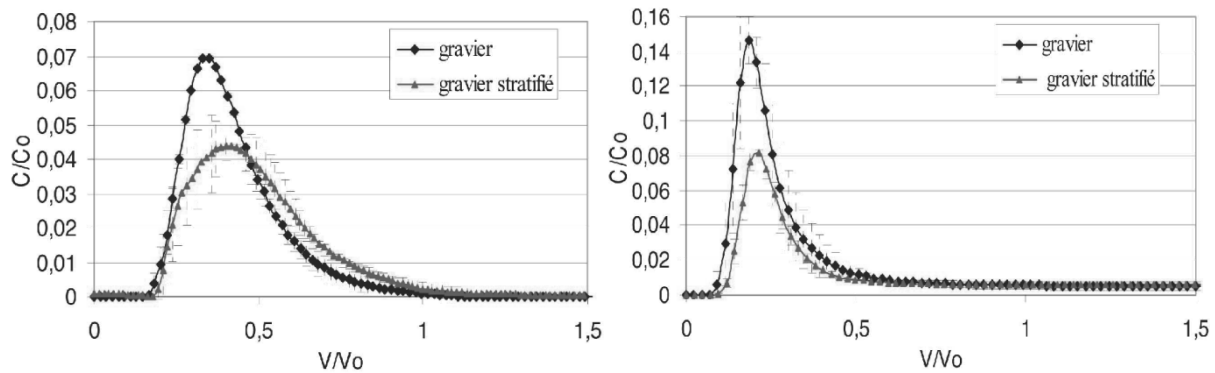
Une série d'expériences a été réalisée sur le milieu poreux à double porosité en présence ou non d'un géotextile pour étudier l'influence des conditions hydriques (saturées et non saturées) et de la présence du géotextile sur l'écoulement et le transfert colloïdal. L'analyse des courbes d'éluion du traceur de l'eau a montré un écoulement hétérogène dans le gravier. Le degré d'homogénéité de l'écoulement a été augmenté par la présence du géotextile dans les deux conditions hydriques du fait d'une modification de l'écoulement dans la zone proche du géotextile.

La rétention colloïdale a été modifiée également en présence du géotextile dans les deux conditions hydriques étudiées (



**Figure 55).** Il est montré que l'introduction d'une strate artificielle dans les bassins d'infiltration peut diminuer le transfert colloïdal en augmentant la capacité filtrante du sol. En conditions saturées, la rétention augmente de 11 % par ajout du géotextile. Les facteurs de retard  $R$  nettement inférieurs à 1, quelque soit la configuration, mettent en évidence le transfert préférentiel des particules colloïdales dans le milieu granulaire, avec un transfert colloïdal plus rapide dans les colonnes sans géotextile. En conditions non saturées, le même comportement qu'en conditions saturées est remarqué : la présence du géotextile entraîne une augmentation de la rétention de 9 % et un retard du transfert colloïdal (environ 10 % de temps de séjour en plus en présence du géotextile).

<sup>150</sup> Lamy E, Lassabatere L, Béchet B, Andrieu H (2010). Ecoulement et transfert colloïdal dans un milieu modèle à double porosité, *La Houille Blanche*, 2, 86-92



**Figure 55** Courbes moyennes d'éluion des colloïdes en milieu granulaire avec et sans strate en conditions saturées (à gauche) et non saturées (à droite) avec les écarts types entre 2 répliquats.

Deux différences majeures sont notées entre le comportement du traceur de l'eau et celui des particules : une sortie très précoce des colloïdes par rapport au traceur et une rétention de plus de 50 % des particules dans les différentes configurations. La sortie précoce des colloïdes est interprétée comme une indication d'une diminution notable du volume exploré par les colloïdes par rapport au traceur. Plusieurs hypothèses sont proposées dans la littérature pour expliquer ce phénomène : coefficient de diffusion moléculaire plus faible donc exclusion des zones à vitesse d'écoulement faible, exclusion d'une partie de la micro-porosité de dimension plus faible que leur taille, profil de vitesse parabolique dans les pores les plus gros. En conditions saturées, le volume non exploré par les colloïdes, correspond à un volume d'exclusion de 60 % du volume total d'eau de la colonne. En supposant que les colloïdes sont entièrement exclus de l'eau immobile, cela revient à considérer qu'ils sont exclus de 32,3 % du volume d'eau. En conditions non saturées, aucune relation du même type n'a pu être établie entre le processus d'exclusion et la présence des régions immobiles, probablement du fait de la complexité des processus concernés (présence de l'interface eau-air, diminution de la teneur en eau et comportement hydrodynamique particulier de ce milieu en conditions non saturées).

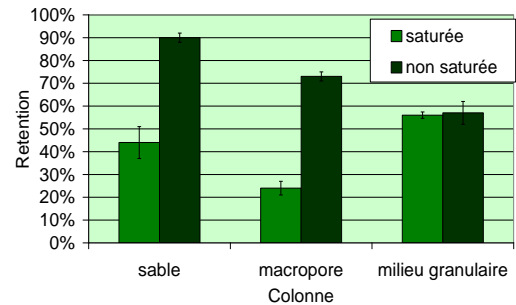
Le mécanisme de rétention des colloïdes dans les milieux poreux granulaires qui intervient en conditions saturés et non saturés est le piégeage mécanique aux jonctions entre grains et dans les très petits pores. En milieu non saturé s'ajoutent des phénomènes de piégeage à l'interface air- eau et de piégeage dans les films d'eau autour des grains en fonction du diamètre des particules. Ces phénomènes sont vraisemblablement responsables, de façon couplée, de la rétention des particules de latex dans les expérimentations présentées, la rétention de type physico-chimique étant très réduite pour les conditions de force ionique régnant dans l'eau interstitielle. En présence du géotextile, la rétention augmente, par le biais de la modification du degré d'homogénéité de l'écoulement, le piégeage dans le géotextile ayant été écarté par sa porosité.

## Influence des conditions hydriques sur la rétention de colloïdes dans un milieu poreux hétérogène <sup>151</sup>

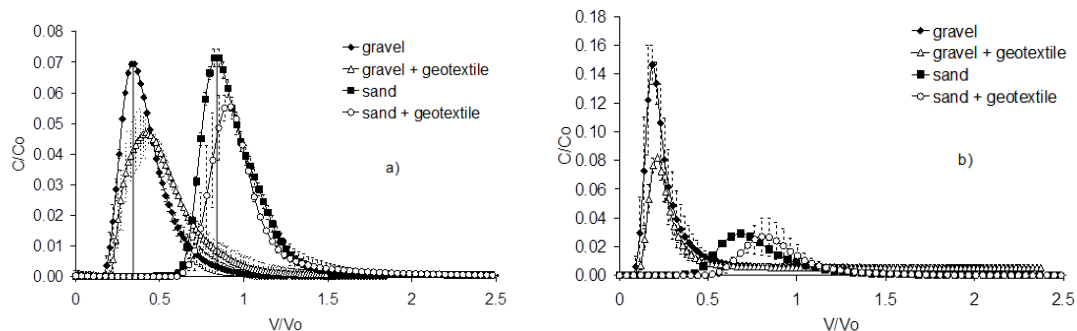
Une série d'expériences a été réalisée en condition de saturation partielle pour étudier son effet dans les différents milieux vis-à-vis de la rétention des particules de latex.

**Tableau 9** Moyenne des taux de rétention des particules de latex dans les 3 milieux poreux et en conditions de saturation/non saturation.

Les pourcentages de rétention colloïdale dans les différents milieux, confirment le rôle de la saturation partielle du sol; comme vecteur d'une meilleure rétention des particules, ainsi que la microporosité du gravier.



L'effet des conditions hydriques est présenté pour le sable et le gravier. Les courbes de percée sont caractérisées par une forme étroite relativement symétrique, ce qui indique une faible dispersion des colloïdes et une percée plus rapide que le traceur dans les deux conditions hydriques (**Figure 56**). La capacité de piégeage des colloïdes augmente avec la diminution de la teneur en eau.



**Figure 56** Courbes de percée moyennes des particules de latex injectées dans le sable et le gravier sous: a) conditions saturées et b) conditions de saturation partielle

Le modèle utilisé sous Hydrus considère un fractionnement de l'eau porale entre une fraction d'eau mobile,  $\theta_m$ , et une fraction immobile stagnante,  $\theta_{im}$ , accessible par diffusion des solutés ou des particules. L'échange de solutes entre les deux régions est modélisé par un processus du 1er ordre :

<sup>151</sup>Lamy E, Lassabatere L, Bêchet B, Andrieu H (2013). Effect of a nonwoven geotextile on solute and colloid transport in porous media under both saturated and unsaturated conditions, *Geotextiles and Geomembranes*, 36, S. 55-65 [ACL18]



$$\begin{cases} f_m \theta \frac{\partial C_m}{\partial t} + f_{im} \theta \frac{\partial C_{im}}{\partial t} + f_{rac,m} \rho_d \frac{\partial S_m}{\partial t} + f_{rac,im} \rho_d \frac{\partial S_{im}}{\partial t} = f_m \theta D_m \frac{\partial^2 C_m}{\partial z^2} - q \frac{\partial C_m}{\partial z} \\ f_{im} \theta \frac{\partial C_{im}}{\partial t} + f_{im} \rho \frac{\partial S_{im}}{\partial t} = \alpha (C_m - C_{im}) \end{cases} \quad (1)$$

Où  $f_m$  et  $f_{im}$  sont les fractions occupées par l'eau mobile ( $\theta_m/\theta$ ) et immobile ( $\theta_{im}/\theta$ ),  $f_{rac,m}$  et  $f_{rac,im}$  sont les fractions de sites d'adsorption qui s'équilibrent avec les phases liquides mobile et immobile,  $\rho_d$  est la densité du matériau ( $\text{g cm}^{-3}$ ),  $C_m$  et  $C_{im}$  sont les concentrations dans les zones mobile et immobile ( $\text{mol l}^{-1}$ ),  $S_m$  et  $S_{im}$  sont les concentrations relatives sur les phases solides en contact avec l'eau mobile et immobile ( $\text{mol g}^{-1}$ ),  $q$  est la vitesse de Darcy dans la zone mobile ( $\text{cm min}^{-1}$ ),  $\alpha$  est le taux d'échange entre  $\theta_m$  et  $\theta_{im}$  ( $\text{min}^{-1}$ ) et  $D$  le coefficient de dispersion. Ce coefficient est calculé en multipliant le coefficient de dispersivité,  $\lambda$  (cm) par la vitesse de pore ( $q/\theta_m$ ), en posant que la diffusion moléculaire est négligeable.

Pour décrire la rétention des colloïdes dans les milieu poreux, un modèle de rétention par processus d'attachement/détachement est utilisé

$$\rho \frac{\partial S}{\partial t} = \theta k_a \psi C - k_d \rho S \quad (2)$$

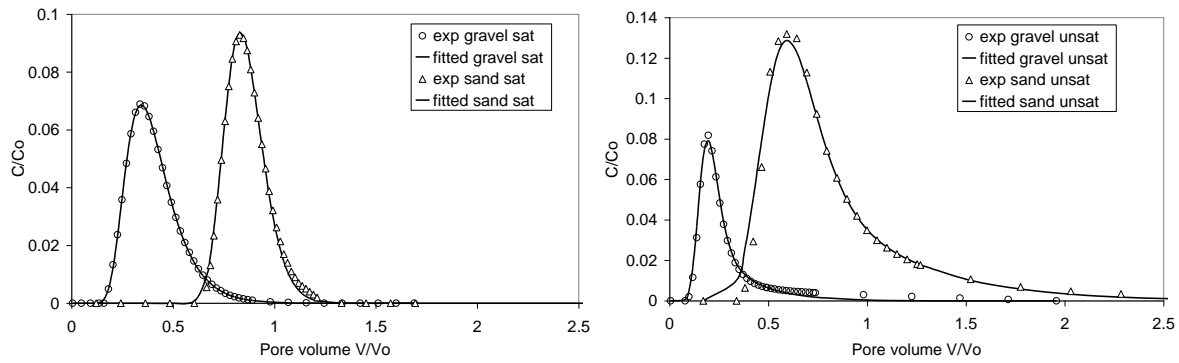
où  $S$  représente la concentration totale en particules sur la phase solide,  $k_a$ , le coefficient cinétique d'attachement ( $\text{min}^{-1}$ ),  $k_d$ , le coefficient cinétique de détachement ( $\text{min}^{-1}$ ) et  $\psi$  est une fonction sans dimension de la rétention des colloïdes.

Dans le milieu sableux, en conditions saturées, la fraction d'eau mobile  $\theta_m/\theta$  explorée par les colloïdes est plus faible que celle explorée par le traceur. Cela indique une exclusion des colloïdes de certaines zones d'eau mobile. Cependant, cette tendance n'est pas confirmée en cas d'insaturation. Comme dans la littérature <sup>152</sup>, le coefficient de détachement n'influe pas sur le transfert. Il est donc considéré comme négligeable (**Tableau 10**).

En terme de rétention, les valeurs du coefficient de deposition ( $\mu$ ) sont plus forts dans le milieu à double porosité que dans les autres milieux. Ce résultat souligne la différence de capacité de rétention des milieux. La porosité intra-grains du gravier offer des sites de rétention supplémentaires pour le piégeage par rapport au milieu sableux. Comme pour le sable;  $\mu$  augmente significativement quand la teneur en eau décroît (environ 3 fois plus élevé).

---

<sup>152</sup> Torkezaban et al. (2008)



**Figure 57** Modélisation du transfert de colloïdes dans les colonnes de sable et gravier et pour les deux conditions hydriques

**Tableau 10** Bilan de masse et paramètres du modèle Hydrus pour les injections de latex dans les colonnes de milieu granulaire et macroporé

	$S$	$q$	$MB$	$R$	$PV$	$\theta$	$\theta_m/\theta$	$\alpha$	$\lambda$	$\mu$	$R^2$
Colloids.	(%)	( $\text{cm}\cdot\text{min}^{-1}$ )	(%)	(-)	(-)	(-)	(%)	( $\text{min}^{-1}$ )	(cm)	( $\text{min}^{-1}$ )	(-)
	99	0.117	81	0.69	0.04	0.44	37.2	$3.43\cdot 10^{-3}$	1.1	$1.54\cdot 10^{-3}$	0.97
Sand + macropore	101	0.101	78.6	0.74	0.04	0.45	35.9	$5.37\cdot 10^{-3}$	1.0	$3.36\cdot 10^{-3}$	0.99
	42	0.111	22	0.71	0.11	0.17	54.9	$5.19\cdot 10^{-3}$	0.45	$5.78\cdot 10^{-2}$	0.99
	42	0.111	28	0.83	0.11	0.17	60.9	$9.59\cdot 10^{-3}$	0.43	$3.92\cdot 10^{-2}$	0.99
Granular media	100	0.102	44	0.39	0.06	0.66	34.4	$2.26\cdot 10^{-3}$	1.30	$1.17\cdot 10^{-2}$	0.99
	98	0.124	41	0.40	0.05	0.71	31.2	$5.06\cdot 10^{-3}$	1.00	$1.25\cdot 10^{-2}$	0.99
	69	0.121	23	0.35	0.06	0.55	10.1	$6.11\cdot 10^{-3}$	1.50	$3.44\cdot 10^{-2}$	0.99
	77	0.116	23	0.41	0.06	0.55	16.5	$4.33\cdot 10^{-3}$	2.10	$4.39\cdot 10^{-2}$	0.98

a Parameters obtained from transport experiments: Saturation degree ( $S$ ), darcian velocity ( $q$ ), mass balance ( $MB$ ), retardation factor ( $R$ ), pore volume of tracer and colloid injected, ( $PV$ ) and water content ( $\theta$ ).

b Fitted HYDRUS-1D model transport parameters: mobile water fractions, ( $\theta_m/\theta$ ), solute exchange rate ( $\alpha$ ), dispersivity ( $\lambda$ ), deposition coefficient ( $\mu$ ) and regression linear parameters ( $R^2$ ).

Toutefois, la modélisation des transferts de colloïdes basée sur un modèle non linéaire d'adsorption multisite n'a pas été validée par les pairs, la critique reposant sur le manque de données intrinsèques au milieu pour confirmer la répartition des colloïdes à l'intérieur des colonnes. Ce problème de 'colonne équivalente à une boîte noire' a été partiellement levé lors des travaux de S. Batany, par l'utilisation de la RMN pour tracer les déplacements de l'eau et valider ainsi des hypothèses sur les zones explorées par les solutés [ACL24]. Cette méthode sera également utilisée dans la thèse de J. Raimbault.

## Synthèse

### Des teneurs mobilisées en cuivre et zinc toujours très supérieures à la recommandation 'eau douce'

La mobilisation sous forme dissoute des métaux trace contenus dans un sol de bord de route ou un sédiment a été étudié sous l'effet de différents complexants (EDTA, acide salicylique) ou d'une diminution de pH (solubilisation de phases carbonatées et/ou réactivité des oxydes). Des variations de salinité et des séries d'arrêt-reprise du débit sont appliquées avec l'objectif de mobiliser les formes particulières colloïdales des métaux.

Dans les deux cas, les métaux les plus mobilisés sont le cuivre et le zinc, avec un facteur 10 lorsque l'on mobilise la fraction colloïdale (pour le cuivre passage de 100 à 1000 µg/L en concentration maximale, pour le zinc de 10 à 100 µg/L). Les valeurs INERIS 'eau douce' étant respectivement pour le cuivre et le zinc, de 1 et 7,8 µg/L. Les eaux interstitielles prélevées in-situ sont elles aussi très chargées en Cu et Zn et le sédiment semble jouer à la fois un rôle de filtre et un rôle de source pour les polluants métalliques. Vis-à-vis de la question du rôle de la fraction colloïdale, nous pouvons confirmer que même si cette fraction est faiblement présente dans les eaux, elle est bien remobilisée lors de la variation des paramètres physico-chimiques et augmente nettement les concentrations de Cu et Zn en solution. Les complexants organiques (EDTA mais aussi les métabolites de HAP) jouent aussi un rôle de vecteur des métaux piégés dans le sédiment, notamment pour le cuivre.

Les particules mobilisées qui ont pu être observées au regard des limites des techniques disponibles appartiennent à une gamme entre 300 nm et quelques µm. Les particules observées sont des oxydes métalliques et des agrégats organiques.

### La réactivité des phases 'oxydes' apparaît comme prédominante dans le transfert du zinc et plomb

Dans les différentes expérimentations modélisées, un modèle de complexation de surface pour le zinc et le plomb a été introduit conformément aux résultats des extractions séquentielles et à la littérature. Ce modèle a été couplé à de l'échange d'ions pour tenir compte de la réactivité des cations majeurs présents en forte concentration dans le milieu poreux. Les résultats montrent que l'allure générale des courbes de percée des métaux peut être reproduite de façon satisfaisante par la prise en compte des réactions de complexation, avec peu de données ajustées. L'introduction de la réactivité d'une phase 'carbonates' est à prévoir du fait de l'évolution du pH.

### Les hétérogénéités structurales augmentent la rétention particulière par homogénéisation des écoulements d'eau et par piégage dans la microporosité

De façon synthétique, en conditions saturées et physico-chimiques défavorables vis-à-vis de l'attachement, nous pouvons conclure que, à l'échelle d'un colloïde, plus l'espace poral qui s'offre à lui pour sa migration

est vaste, moins la quantité de colloïdes piégés sera importante, ce qui donne vis-à-vis d'un taux de rétention macroscopique (échelle colonne), le classement suivant macropore < sable < matériau granulaire.

En conditions de non saturation, le piégeage à l'interface air-eau influence fortement le résultat pour le sable et le milieu macroporé. Mais pour le milieu granulaire, aucune différence n'est notée. Cela est vraisemblablement dû à un processus de transfert identique dans la microporosité, via le film d'eau à la surface des grains. Le modèle utilisé fournit des ajustements satisfaisants mais la non-unicité dans le choix du modèle le rend peu robuste, en l'absence de données de visualisation des particules dans le milieu poreux.

## **Perspectives de recherche sur le transfert des métaux dans les ouvrages de gestion des eaux pluviales**

L'étude du transfert des métaux trace en assainissement pluvial fait appel à un ensemble de connaissances sur les sources de métaux - les eaux en elles-mêmes et les sédiments formés dans les ouvrages- et le relargage des métaux à partir des sédiments, pour comprendre comment ils se transfèrent ensuite dans les milieux poreux sous-jacents. Mes contributions sur ces sujets, exposées aux Chapitres 2 et 3, ont mis en évidence, les besoins analytiques complémentaires et la nécessité d'échantillons représentatifs pour intégrer la variabilité des paramètres environnementaux dans la caractérisation des particules des eaux pluviales et l'évaluation de la spéciation physique des métaux trace. Les expérimentations sur le transfert des métaux ou de colloïdes modèles dans des matériaux sableux nous ont renseignées sur les taux de transfert en fonction des hétérogénéités des milieux. Mais la modélisation des transferts de particules reste cantonnée à une approche sur système modèle (milieu poreux hétérogène – latex).

Par rapport à ces besoins de connaissances et de modélisation complémentaires en assainissement pluvial sur lesquels la littérature scientifique est peu abondante, et aux problématiques actuelles, comme par exemple l'introduction dans l'environnement urbain de nanomatériaux liée à leur utilisation de façon croissante depuis une vingtaine d'années, deux sujets de recherche sont proposés :

- 1) l'étude de l'influence d'une hétérogénéité structurale sur le transport de nanoparticules modèles en milieu poreux ;
- 2) l'analyse du transfert réactif des métaux dans les ouvrages d'infiltration par modélisation couplée hydrodynamique-géochimie.

Ces activités sur la description fine des systèmes et des processus seront menées à l'échelle du laboratoire et de l'ouvrage. Elles s'inscrivent dans le cadre de collaborations locales et avec les équipes spécialisées en hydrologie urbaine du réseau URBIS (LEHNA et LEESU, le thème 'transfert de polluants' étant inscrit dans les thématiques de la future ERC LEESU - LEE).

### **Influence d'une hétérogénéité structurale sur le transport de nanoparticules modèles en milieu poreux**

#### Questions scientifiques sur les processus de transfert d'eau et de NPs en milieu poreux hétérogène

Les sols urbains sont caractérisés par de fortes hétérogénéités structurales, de faciès et chimiques<sup>153</sup>, hérités des usages que l'Homme en a fait et des transformations qu'ils ont subies au cours des temps. Les sols des

---

<sup>153</sup> Cheverry C. et Gascuel C. (2009) *Sous les Pavés, la Terre*, Omniscience, 208 p. - Morel JL, Schwartz C, Florentin L, de Kimpe C (2005): Urban soils. In: Hillel D (ed), *Encyclopedia of Soils in the Environment*. Elsevier Ltd., Academic Press, London, pp 202–208 - Levin M. J.; John Kim K-H; Morel J L; Burghardt W; Charzynski P; Shaw R K. (2017) *Soils within*

ouvrages d'infiltration sont constitués d'un matériau parent caractérisé par une forte perméabilité et d'une couche de sédiment formée de matière minérale et organique apportée par les eaux pluviales et l'atmosphère et par le développement de végétation endogène implantée ou spontanée. Ces matériaux évoluent en fonction des apports, des cycles végétatifs et des processus physico-chimiques liés aux cycles de séchage- humidification et leur texture et structure s'en trouvent modifiées<sup>156</sup>. Une zone de transition entre sédiment et matériau sous-jacent est souvent observée, attribuée à un transfert de matière et à son évolution en profondeur<sup>154</sup>. A partir de la description de ce système, le qualificatif de 'technosol' ou 'anthropols' a été attribué aux sols des ouvrages d'infiltration<sup>155</sup>.

Les eaux pluviales vont donc s'infiltrer dans ce système sol-sédiment, le sédiment étant à la fois source et récepteur de contaminants. Le sédiment présente des hétérogénéités physiques, chimiques et biologiques, sur des épaisseurs ne dépassant pas une cinquantaine de cm<sup>156</sup>. Le sol sous-jacent est quant à lui constitué d'un ensemble de différents lithofaciès avec des propriétés de transfert et géochimiques qui peuvent être contrastées<sup>157</sup>. L'échelle de ces hétérogénéités spatiales va du mm-cm (ex. macropores et fissures) à la dizaine de mètres (ex. variation de faciès)<sup>158</sup>. Les macropores, les fissures, les fentes de dessiccation, les traces de racines et les trous créés par la faune (ex. vers de terre) et les plantes constituent autant de micro-hétérogénéités, essentiellement dans les couches superficielles<sup>159</sup>. Des matériaux spécifiques (ex. zéolites, biochar (charbon de biomasse)<sup>160</sup>, géotextiles), mis en place pour améliorer le traitement de l'eau ou inclus dans la conception des bassins, sont des éléments qui induisent une hétérogénéité supplémentaire.

L'ensemble de ces hétérogénéités fait de ces sols des lieux propices aux écoulements préférentiels d'eau et de matière. L'existence de chemins préférentiels d'infiltration de l'eau dus à une juxtaposition de faciès sableux et graveleux a été mise en évidence à l'échelle d'un bassin d'infiltration sur Lyon par

---

*Cities - Global approaches to their sustainable management - composition, properties, and functions of soils of the urban environment*, on behalf of IUSS Working Group SUITMA, Catena-Schweizerbart, 253 p.

<sup>154</sup> [ACT13] **Béchet B. et al.** (2007), Rôle des bassins de rétention-infiltration dans l'épuration des eaux de ruissellement péri-urbaines, *Récents Progrès en Génie des Procédés*, N°96, Ed. SFGP, Paris, France.

<sup>155</sup> [ACL8] Badin A.-L., Méderel G., **Béchet B.**, Borschneck D., Delolme C. (2009). Study of the role of organic matter in the aggregation of the surface layer of Technosols from stormwater infiltration basins by using grain size analyses with laser diffractometry, *Geoderma*, 153, 163-171.

Winiarski, T. (2014). Fonction filtration d'un ouvrage urbain - conséquence sur la formation d'un anthroposol. Technical Report #190.

<sup>156</sup> [ACL22] El-Mufleh A., **Béchet B.**, Ruban V., Legret M., Clozel B., Barraud S., Gonzalez-Merchan C., Bedell J.P., and Delolme C. (2014). Review on Physical and Chemical Characterizations of Contaminated Sediments from Urban Stormwater Infiltration Basins within the Framework of the French Observatory for Urban Hydrology (Soere Urbis), *Environmental Science and Pollution Research*, 21 (8): 5329-5346.

<sup>157</sup> Goutaland, D., Winiarski, T., Dubé, J.-S., Bièvre, G., Buoncristiani, J.-F., Chouteau, M. and Giroux, B. (2008). *Vadose Zone J.* 7(1), 194–207.

<sup>158</sup> Beven, K. and Germann, P. 2013. Macropores and water flow in soils, *Water Resources Research*. 49, 6 (2013), 3071–3092

<sup>159</sup> Ben Slimene, E., Lassabatere, L., Winiarski, T. and Gourdon, R. (2015). *Journal of Water Resource and Protection*. 7, 13, 1017–1028

<sup>160</sup> Ulrich B., Im E, Werner D., Higgins C. (2015). Biochar and Activated Carbon for Enhanced Trace Organic Contaminant Retention in Stormwater Infiltration Systems, *Environ. Sci. Technol.* 49(10), 6222-6230.

modélisation<sup>161</sup>. Ces écoulements préférentiels sont sensibles à l'état de saturation du système et au flux d'eau imposé en surface. De plus, ils peuvent agir sur le transfert des polluants, tant en terme de vitesse de propagation moyenne que de rétention aux interfaces liquide-solide, influençant de façon globale la capacité de filtration du sol.

Ces éléments bibliographiques explicitent que l'hétérogénéité structurale des milieux poreux (de type macropore ou strate) et le couplage entre transfert de solutés et transfert particulaire sont des composantes non négligeables de la performance des ouvrages d'infiltration. Pourtant les publications récentes au niveau international, et en particulier avec des applications en gestion des eaux pluviales, restent peu nombreuses et sont soit théoriques (très nombreuses revues de la littérature), soit dédiées à des expérimentations sur système modèle homogène. Nous avons dégagé trois questions auxquelles le sujet de recherche vise à apporter des réponses :

- 1) comment la macroporosité d'un sol agit-elle sur le transport de nanoparticules métalliques ? Quels paramètres vont agir sur leurs interactions avec le milieu poreux ?
- 2) peut-on acquérir des données spatialisées sur la répartition des particules dans le milieu poreux, pour dépasser la vision 'boîte noire' ?
- 3) peut-on modéliser le transfert couplé de l'eau et des NPs dans un milieu poreux hétérogène macroporé ?

#### Objectifs du sujet de recherche

Le sujet de recherche vise à étudier le transfert de nanoparticules modèles dans un milieu sableux macroporé en colonne de laboratoire. Ces conditions de géométrie particulières n'ont pas encore été étudiées dans la littérature et elles correspondent à des configurations fréquemment rencontrées dans les ouvrages d'infiltration. Les nanoparticules seront choisies de façon à être des traceurs représentatifs des NPs présentes dans les eaux de ruissellement en lien avec le sujet 1 de mon projet de recherche (cf Chapitre 2 p.93). L'objectif du travail est

- 1) de modéliser le transfert d'eau dans un système macroporé sur la base des travaux antérieurs<sup>19,20</sup> et de traçages non réactifs ;
- 2) de réaliser des expériences d'injection de nanoparticules modèles et de qualifier les processus physiques et physico-chimiques régulant leur transfert dans le milieu poreux macroporé.

La connaissance précise des mécanismes physico-chimiques qui s'appliquent aux suspensions particulières couplée à celle des processus physiques d'écoulement, dans les milieux poreux qui présentent des

---

<sup>161</sup> Coutinho, A.P., Lassabatere, L., Winiarski, T., Cabral, J.J.S.P., Antonino, A.C.D. and Angulo-Jaramillo, R. (2015). *Journal of Water Resource and Protection*. 7(4), 353–368

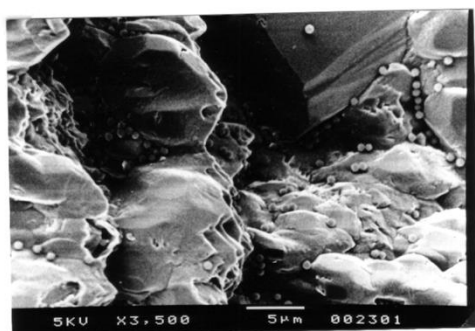
hétérogénéités structurales (macropores, porosité multimodale, etc.) favorables à l'établissement d'écoulements et transferts préférentiels, est en effet la clé de la compréhension globale du transfert des NPs. Cependant, les avancées dans ce domaine ne pourront s'effectuer que si on peut accéder à une description fine des processus à l'échelle des pores en utilisant par exemple des outils de type IRM ou tomographie.

### Méthodologie générale

Le caractère innovant de la démarche sera fondée sur la combinaison de méthodes expérimentales, de techniques à différentes échelles et de modélisations. Certaines ont été validées et ont prouvé leur efficacité (colonnes de laboratoire) et d'autres sont en développement et en plein essor dans le domaine de la recherche (IRM et imagerie 3D), pour cartographier en 3D les écoulements et les transferts de polluants dans les milieux poreux. La compréhension du système sera basée sur la confrontation entre données expérimentales et données simulées à partir d'hypothèses formulées sur les processus de transfert de l'eau d'une part et des NPs d'autre part pour aboutir à un modèle conceptuel de transfert des NPs en milieu hétérogène.

A l'échelle de la colonne, des essais de traçage non réactif (traceur de l'eau) et réactif (traceur de NPs) seront conduits pour mettre en évidence des écoulements préférentiels, des processus diffusionnels, la rétention de NPs dans la matrice poreuse.... L'analyse chimique fournira les données nécessaires au calcul des bilans de masse des traceurs. Des mesures de taille de particules et de charge de surface seront réalisées en entrée/sortie du système pour détecter d'éventuelles modifications. L'imagerie en résonance magnétique sera mise en œuvre pour accéder à une visualisation en 3D de la distribution de l'eau dans le macropore et la matrice, et si possible en fonction des limites expérimentales de la répartition des NPs, l'objectif étant de pouvoir identifier la localisation des sites de dépôts des NPs au voisinage du macropore. Ces données nous ont fait défaut lors des travaux de E. Lamy sur le transfert de particules colloïdales de latex.

A l'échelle d'une section de colonne ('tranche' de milieu poreux), la microscopie électronique à balayage couplée à une sonde EDX sera testée pour accéder, au niveau d'ensemble de grains, à une visualisation du dépôt de NPs (par exemple, agrégation de NPs ou adsorption de NPs uniquement en surface (ex. pour des microparticules **Figure 58**)).



**Figure 58** Rétention de particules de latex de 0,79  $\mu\text{m}$  dans un sable quartzeux (image MEB, thèse B. Harmand<sup>162</sup>)

<sup>162</sup> [RAPP 5] Harmand B (1996) Contribution à la compréhension des processus de transport de colloïdes en milieu naturel poreux ou fracturé – Application à la rétention de particules de latex dans un sable, Thèse de doctorat de l'INPL (Nancy)



Différents outils de modélisation numérique sont envisagés pour tester diverses conceptualisations des processus physiques d'établissement des écoulements préférentiels dans le macropore et son voisinage et leur couplage avec les mécanismes physico-chimiques de transfert des NPs dans le milieu poreux.

Le travail numérique envisagé fera suite aux travaux sur la simulation numérique des écoulements préférentiels dans un sol modèle macroporé réalisés dans plusieurs thèses du LEHNA dirigées par L. Lassabatere et co-dirigées au LEE (thèses S. Batany (co-direction P.E. Peyneau), E. Lamy (co-direction B. Béchet)). Le code Hydrus 1D/2D<sup>18</sup> a été préférentiellement utilisé. Un développement numérique de type Lattice Boltzmann sur Réseau a aussi été réalisé par S. Batany et P.E. Peyneau<sup>20</sup>.

### Moyens et collaborations prévus

Ce sujet de recherche bénéficie du financement des projets ANR INFILTRON et régional POLLUSOLS, comme le sujet sur la caractérisation des NPs dans les eaux de ruissellement. Il s'inscrit dans la tâche 3 « Validation des propriétés de transfert des nano-traceurs » du projet INFILTRON, dans laquelle le LEE a pour mission de mener une expérimentation sur milieu poreux macroporé modèle en colonne de laboratoire et de développer la modélisation du transfert d'eau et de nanoparticules dans ce système hétérogène. Le choix des nanoparticules est basé à la fois sur les résultats de caractérisation des eaux de ruissellement réalisés dans cette même tâche et explicité dans le sujet précédent. L'ensemble des résultats aideront à la validation de l'infiltromètre de terrain.

Ce travail expérimental et de modélisation fait partie de la thèse de J. Raimbault. Il sera appuyé par un ou deux stages de master 2. Une collaboration est prévue avec un post-doctorant qui travaillera sur la validation de la méthodologie sur l'infiltromètre terrain (co-encadrement LEHNA LEE). L'encadrement scientifique est assuré par quatre personnes :

- Laurent Lassabatere (LEHNA) (directeur de thèse) supervise la modélisation des transferts d'eau en milieu poreux (homogène et hétérogène) à l'aide du code Hydrus ;
- Moi-même (LEE) (conseillère de thèse 'principale') qui intervient sur le dimensionnement des expérimentations (choix et caractérisation des nanoparticules), sur l'interprétation des expériences pour la partie 'interactions milieu poreux- NPs' et la modélisation des processus d'interaction
- Pierre-Emmanuel Peyneau (conseiller de thèse LEE) conseille sur le dimensionnement expérimental et les processus de transfert d'eau et de solutés, accompagne la modélisation de l'hydrodynamique avec Hydrus et potentiellement avec le modèle Lattice-Boltzmann qu'il a développé avec S. Batany.
- Denis Courtier-Murias (Institut Navier, Ifsttar Marne La Vallée) conseille et réalise les expérimentations par résonance magnétique nucléaire.

Ce travail s'inscrit dans le cadre de l'axe 'Sols urbains' de l'IRSTV. Il bénéficie d'un complément de financement par le programme de recherche régional des Pays de Loire POLLUSOLS.

#### Quelques contraintes de l'expérimentation en colonne de laboratoire

Les transferts d'eau, de traceur et de particules de latex dans des milieux poreux macroporés à l'échelle du laboratoire ont été étudiés dans différentes configurations au sein du LEE et du LEHNA (cf. ce Chapitre p. 126). Les configurations modèles étaient les suivantes : macropore métallique dans un lit sableux, matériau fluvioglaciaire, canal percé dans un lit de billes de verre collées. Dans l'optique de l'étude du transfert de NPs, ces milieux présentent un certain nombre de limites : présence d'un matériau métallique, instabilité chimique de la colle préjudiciable à la stabilité d'une suspension colloïdale, manque de continuité physique entre porosité du macropore et de la matrice sableuse, complexité trop importante des écoulements pour le matériau fluvioglaciaire. Un développement expérimental est donc nécessaire pour concevoir un système comportant un matériau naturel pour être dans des conditions de réactivité surfacique réalistes et un macropore perturbant le moins possible les écoulements internes. Cette première étape de l'expérimentation est en voie d'achèvement avec le dimensionnement et la réalisation d'un macropore par impression 3D qui sera inséré dans un lit de sable d'Hostun.

La technique IRM consiste à suivre l'écoulement par résonance magnétique des protons de l'eau. Pour obtenir des profils de colonne à différents moments, on exploite le fait que la relaxation longitudinale ou transversale des spins dépend de leur environnement et notamment de la présence d'interface solide/liquide, ce qui permet de produire un effet de contraste au signal dans le cas de l'imagerie<sup>163</sup>. De plus, certains agents chimiques ayant des propriétés super-paramagnétiques entraînent également une diminution des temps de relaxation et ajoutent un effet contrastant ce qui permet de suivre indirectement des substances ayant ces propriétés. Cette possibilité offerte par l'IRM sera mise à profit pour étudier la répartition spatiale de NPs, mais cela implique de sélectionner judicieusement les NPs ou de leur greffer un élément paramagnétique. Le gadolinium s'est révélé être un très bon traceur des écoulements de l'eau en macropore (thèse de S. Batany).

La sélection des NPs modèles est donc complexe car sous contrainte :

- Elles doivent être représentatives des NPs présentes dans les eaux de ruissellement : au moins en terme de dimension moyenne et de charge de surface, si possible en terme de composition ;
- Elles doivent être détectables en continu en entrée et sortie de milieu poreux. Le volume des fractions nécessaires pour l'analyse chimique en ICP-MS ne nous permet pas en effet d'avoir une précision suffisante de description des courbes de percée par rapport à celle requise pour les calculs de bilan de masse. Nous nous orientons vers une détection par fluorescence ou par spectrométrie UV-Vis ;

---

<sup>163</sup> Pamela F. Faure et al., « Magnetic Resonance Imaging and Relaxometry as Tools to Investigate Water Distribution in Soils », *AIP Conference Proceedings* 1330, n° 1 (29 mars 2011): 69-72, <https://doi.org/10.1063/1.3562235>.

- Elles doivent répondre à des critères spécifiques de stabilité chimique et de faible solubilité en solution aqueuse<sup>164</sup> ;
- Elles doivent présenter des propriétés para-magnétiques contrastantes pour la technique IRM.

Nous avons écarté la contrainte de l'inocuité des NPs pour l'environnement qui s'applique au volet 'expérimentation terrain' du projet Infiltron. Après définition des NPs, elles seront manufacturées par Nano-H (partenaire de Infiltron) et caractérisées en distribution de taille et propriétés de surface (ex. potentiel zéta). L'acquisition d'un fluorimétrie est budgétée. La littérature mentionne aussi la performance de la cytométrie à flux pour détecter les particules fluorescentes (limite de détection 1 particule /ml).

#### Proposition pour la modélisation des transferts de NPs

Mon objectif sur le volet 'modélisation' du travail qui doit être menée dans le projet Infiltron, est de proposer, selon les résultats expérimentaux obtenus (élutions et profils), un modèle conceptuel de transfert des NPs incluant les processus prépondérants de rétention des NPs dans le milieu poreux. Je m'appuierai pour cela sur une confrontation entre les mécanismes que j'ai pu proposer dans nos travaux antérieurs sur les colloïdes (thèse E ; Lamy, mon doctorat) et ceux proposés actuellement dans la littérature<sup>165</sup>. Les articles les plus récents mentionnent par exemple la nécessité de prendre en compte les interactions de Born dans la théorie DLVO dans un modèle d'interactions physico-chimiques<sup>166</sup>, d'exclure définitivement les modèles d'interaction linéaire<sup>167</sup>, de tenir compte du 'straining' comme processus prépondérant<sup>168</sup>. Nous devons par ailleurs être attentifs, au niveau de l'expérimentation, mais aussi au niveau de l'interprétation des résultats colonne, à la présence fréquente des adjuvants et agents hydrophiles enrobant les MNPs<sup>169</sup> utilisés comme agent stabilisant des suspensions.

L'information spatialisée à petite échelle obtenue par microscopie et imagerie IRM 3D<sup>170</sup>, devrait permettre une vraie avancée en terme de validation des processus de piégeage aux interfaces solide-liquide.

#### Indicateurs de performance des ouvrages : doit-on tenir compte de la complexité des transferts de polluants et comment ?

<sup>164</sup> INRS (2013) Dioxyde de titane, Fiche toxicologique n° 291, [http://www.inrs.fr/publications/bdd/fichetox/fiche.html?refINRS=FICHETOX\\_291](http://www.inrs.fr/publications/bdd/fichetox/fiche.html?refINRS=FICHETOX_291).

<sup>165</sup> Babakhani P et al. (2017) Continuum-based models and concepts for the transport of nanoparticles in saturated porous media: A state-of-the-science review, *Advances in Colloid and Interface Science* 246: 75-104,

<sup>166</sup> Tufenkji N, Elimelech M (2004) Deviation from the Classical Colloid Filtration Theory in the Presence of Repulsive DLVO Interactions, *Langmuir* 20, 10818-10828

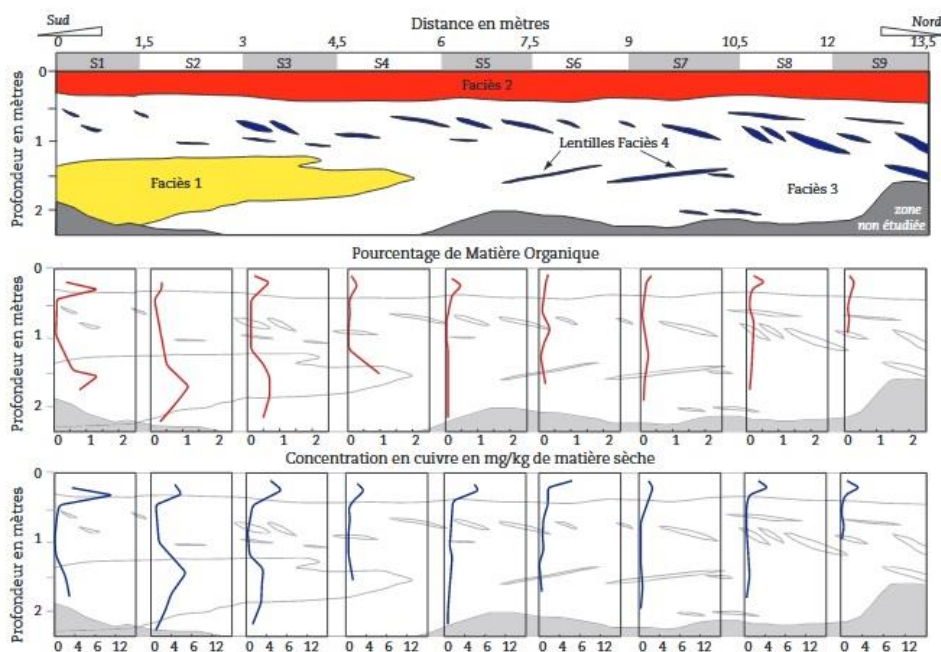
<sup>167</sup> Praetorius A, Tufenkji N, Goss K, Scheringer M, von der Kammer F and Elimelech M (2014) The road to nowhere: equilibrium partition coefficients for nanoparticles Environ. Sci.: Nano, 1, 317-323

<sup>168</sup> Raychoudhury T, Tufenkji N, Ghoshal S (2014) Straining of polyelectrolyte-stabilized nanoscale zero valent iron particles during transport through granular porous media, *Water Research*, 50, 80-89

<sup>169</sup> Jérôme Labille et al. (2010) Aging of TiO2 nanocomposites used in sunscreen. Dispersion and fate of the degradation products in aqueous environment, *Environmental Pollution* 158, 12, 3482-89.

<sup>170</sup> Alizée Lehoux (2016) Mécanismes de transport et de rétention des colloïdes dans les milieux poreux : étude en Imagerie par Résonance Magnétique et modélisation, <http://www.theses.fr/s135673>.

L'une des problématiques associées à la gestion des eaux pluviales par des techniques alternatives concerne l'évaluation de la performance de ces systèmes dorénavant multifonctionnels. Des indicateurs sont en cours de développement dans des projets financés par l'ONEMA (Matriochkas, Roulepur, Micromegas) ou par l'UE (e.g. N4C). De façon complémentaire à la fonction d'écrêtage des événements pluvieux intenses et d'épuration des eaux par décantation de la fraction particulaire, la fonction d'infiltration de l'eau dans le sol, ainsi que la fonction de filtration du sol vont être mises à profit pour réduire les volumes d'eau rejetés au milieu naturel et épurer les eaux. Les indicateurs de performance vis-à-vis de ces fonctions touchent donc la question du transfert de polluants dans les sédiments et les sols vers les ressources en eaux souterraines. Hors, du fait des conditions d'investigation in-situ complexes, le transfert de métaux vers les eaux souterraines est peu documenté. Citons cependant les résultats que nous avons obtenus sur la migration de matière (métaux et particules) à partir d'un sédiment en place<sup>154, 171</sup> et le projet GESSOL FAFF (2014)<sup>172</sup> (Figure 59).



**Figure 59** Répartition des lithofaciès sur un profil de sol en 2 dimensions et profil de teneur en matière organique et en cuivre total le long de la tranchée réalisée sur le bassin de Django Rheinart (Lyon) (Winiarski et al. (2014))

Si ces travaux ont le mérite d'apporter des connaissances sur la géométrie et la nature des matériaux constitutifs des sols et sur l'ordre de grandeur des substances présentes les sols, ils ne fournissent pas

<sup>171</sup> [ACL3] Béchet B, Durin B, Legret M, Le Cloirec P (2006). Colloidal speciation of heavy metals in runoff and interstitial waters of a retention/infiltration pond, *Water Science & Technology*, Vol. 54, N° 6-7, 307-314

<sup>172</sup> Winiarski et al. (2014) Fonction de filtration d'un ouvrage urbain – Conséquences sur la formation d'un anthroposol, Synthèse du rapport final du projet FAFF Programme GESSOL, 15 p.

d'informations sur les flux de polluants ayant transité dans le milieu. En d'autres termes, les concentrations observées sont-elles le résultat d'une rétention très partielle ou quasi-complète des substances ?

La formulation des indicateurs de filtration dans les sols des ouvrages se base donc actuellement sur une approche simplifiée ne tenant pas compte des différentes hétérogénéités : la diversité de nature et de spéciation des polluants présents dans les eaux pluviales entrant dans les ouvrages, les hétérogénéités structurales, texturales et stratigraphiques des matériaux sous-jacents, la diversité des processus hydrodynamiques et physico-chimiques gouvernant le devenir et le transfert des polluants dans les sols.

La validation des indicateurs simplifiés est nécessaire sur des cas tests expérimentaux. Les projets ONEMA en cours au sein du réseau URBIS devraient apporter des éléments dans ce sens.

### **Analyse du transfert réactif des métaux dans les ouvrages d'infiltration par modélisation couplée hydrodynamique-géochimie**

Dans un objectif d'évaluation des performances des ouvrages d'infiltration (de façon compréhensive ou prédictive), la représentation des états ou des processus par des modèles est un exercice complémentaire des expérimentations menées à l'échelle du laboratoire, du pilote ou in-situ.

#### Questions scientifiques et besoins en modélisation du transfert réactif des métaux trace en milieu poreux

Besoins en données expérimentales - La littérature spécifique sur les transferts de métaux trace dans les ouvrages d'infiltration (expérimentations, modèles) est relativement fournie en ce qui concerne les processus de surface et les comparaisons entrée/sortie. Par contre, les études sur l'infiltration et la filtration dans les sols le sont beaucoup moins, avec toutefois ces dernières années un grand nombre de publications sur le suivi de systèmes pilotes<sup>173</sup> (noues et systèmes de biofiltration). Les systèmes utilisés sont essentiellement des systèmes modèles pouvant présenter des degrés d'hétérogénéités structurales ou de texture importantes et une large variété de conditions physico-chimiques expérimentales, ainsi que de nature de suspensions (ex. colloïdes modèles, substances organiques et NPs, argiles et NPs...).

Les expérimentations sur système pilote ou réel sont plus rares car très coûteuses en temps et financièrement, et très contraignantes (conditions d'entrée et aux limites non contrôlées). Les expérimentations in-situ réalisées sur ouvrage d'infiltration tout dernièrement au cours des travaux de thèse de D. Tedoldi, K. Flanagan au LEESU sont remarquables, en ce sens où elles comportent l'acquisition de données sur un nombre significatif d'évènements en entrée et sortie des systèmes étudiés. La thèse de L. Barbier (CEREMA, Nancy) (achèvement fin 2018) apportera aussi un jeu de données important sur les métaux trace dans les eaux de ruissellement dans leur contexte géochimique (éléments majeurs, paramètres

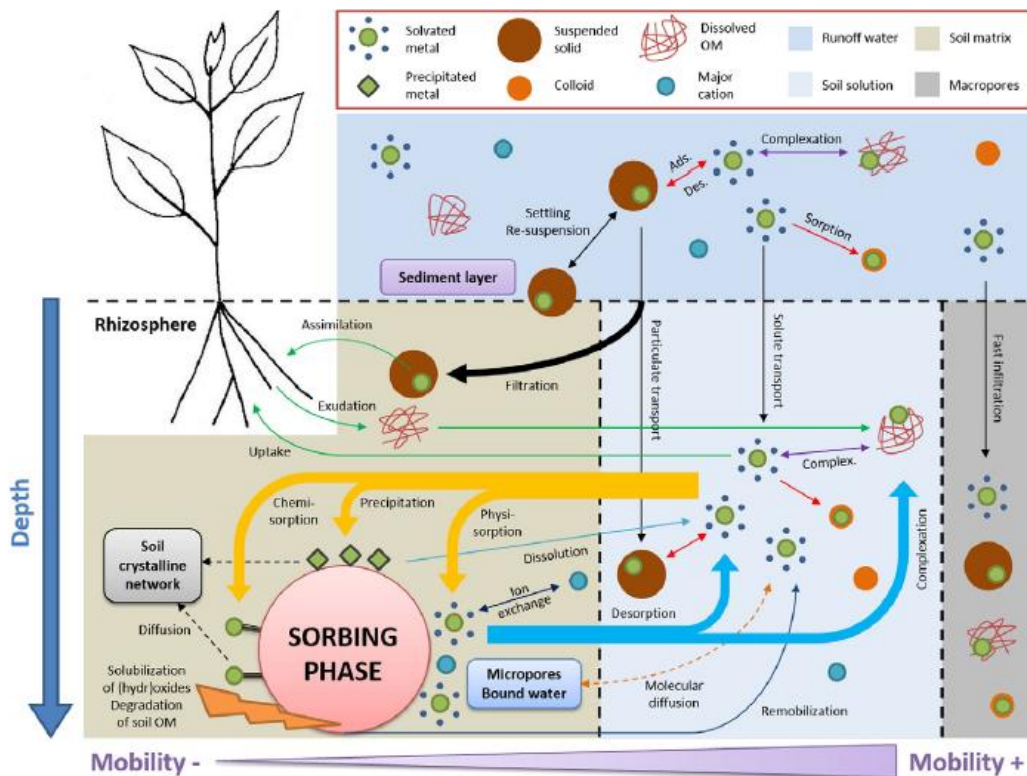
---

<sup>173</sup> Hatt B. E., Fletcher T. D. and Deletic A. (2009) Hydrologic and pollutant removal performance of stormwater biofiltration systems at the field scale, *J. Hydrol.*, 365(3), 310–321

physico-chimiques). Le pilote de A. Fardel (CSTB – projet Onema Matriochkas) est aussi un outil remarquable, équipé de capteurs de mesures en continu (paramètres hydrologiques, physico-chimiques).

*Les jeux de données acquises dans ces différents travaux constituent une base qui pourrait être exploitée pour valider une modélisation des systèmes d'infiltration qu'il reste à développer.*

Définir les processus de transfert hydrodynamique, géochimiques et d'interaction polluants/matrice solide prépondérants - La capacité de filtration d'un sol résulte de divers mécanismes i) d'interactions entre les polluants et les surfaces solides constitutives du sol (soil particles) (échange d'ions, complexation de surface, précipitation de surface<sup>174</sup>...), ii) des processus aux interfaces air-liquide et air-solide, iii) des processus de dégradation et de transformation des substances (ex.précipitation en phase liquide, oxydo-réduction, adsorption récinnaire...). Tedoldi et al.<sup>175</sup> ont proposé dernièrement une revue synthétique des processus agissant sur le transfert des polluants et des matières en suspension dans le système eau-sol-plantas des ouvrages d'infiltration, mettant en évidence la très grande complexité des systèmes (**Figure 60**).



**Figure 60** Processus de transfert de substances sous forme de soluté et particulaire dans le système eau-sol- plante en infiltration des eaux pluviales (source Tedoldi et al. 2016)

<sup>174</sup> Lassabatere L, Spadini L, Delolme C, Février L, Galvez Cloutier R and Winiarski T (2007). *Chemosphere*, 69(9), 1499–1508

<sup>175</sup> Tedoldi D. et al. (2016). Impact of runoff infiltration on contaminant accumulation and transport in the soil/filter media of Sustainable Urban Drainage Systems: A literature review, *Science of The Total Environment* 569-570: 904-26, <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2016.04.215>.

Les particules colloïdales, et les nanoparticules en particulier, subissent lors de leur transfert dans le milieu poreux, un ensemble de mécanismes<sup>145,165</sup> spécifiques qui vont affecter leur spéciation en solution<sup>176</sup> et des mécanismes d'attachement/détachement, incluant les réactions aux interfaces solide-eau et air-eau<sup>177</sup>, l'agrégation, le piégeage mécanique..... Tous ces mécanismes sont en fait très dépendants de l'état de saturation en eau du système et de la régionalisation des écoulements (existence d'écoulements préférentiels, de zones stagnantes, de pores fermés...).

En milieu homogène, les solutés et les particules vont être transférés par processus de convection et de dispersion en suivant l'écoulement de l'eau, dans la majeure partie de la porosité du milieu poreux (contenant l'eau qualifiée de 'libre'). Ils sont aussi susceptibles de migrer par diffusion vers des zones d'eau stagnante. Toutefois, les petites particules telles que les micro- et nanoparticules peuvent être exclues des plus petits pores (exclusion de taille), de même si elles sont chargées négativement, une répulsion électrostatique avec les particules du sol chargées elles aussi négativement, sera observée<sup>148</sup>.

Les mécanismes de rétention des polluants sous forme de soluté ou particulaire sont très dépendants de l'accessibilité à l'eau des surfaces et donc de la régionalisation des écoulements d'eau<sup>151</sup>. Ce phénomène est particulièrement sensible dans les milieux à écoulement hétérogène. La présence d'hétérogénéité structurale augmente les écoulements préférentiels et diminue l'accès des solutés et/ou particules à l'ensemble des surfaces réactives, tout en augmentant la vitesse de transfert du polluant dans les zones d'écoulement. Les conditions hydrodynamiques sont de ce fait moins favorables à la rétention des substances dans ces zones<sup>178</sup>. Etat de saturation et variation du taux de saturation en eau du milieu poreux sont également des paramètres influençant le transfert et le devenir des substances réactives<sup>179</sup>. Durant des cycles d'infiltration successifs de l'eau dans un milieu hétérogène, la modification de la chimie de l'eau porale peut avoir un effet sur le relargage des colloïdes du sol<sup>180</sup>. La durée des cycles de séchage entre des évènements pluvieux aura aussi un impact sur la re-mobilisation des colloïdes<sup>181</sup> (**Figure 61**).

---

<sup>176</sup> Bottero J.Y. et al. (2015). Nanotechnology, global development in the frame of environmental risk forecasting. A necessity of interdisciplinary researches, *Comptes Rendus Geoscience* 347(1): 35-42, <https://doi.org/10.1016/j.crte.2014.10.004>.

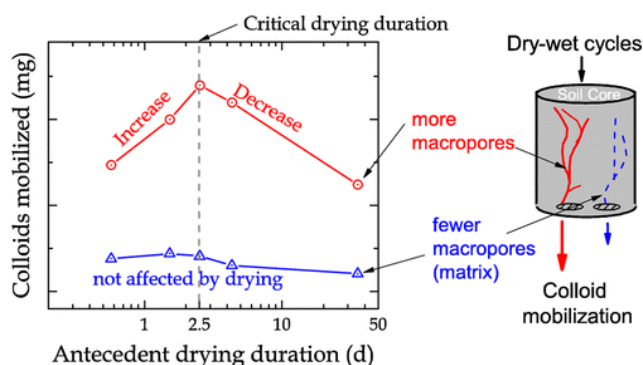
<sup>177</sup> Mitropoulou P.N., Syngouna V. I., Chrysikopoulos C. V. (2013) Transport of colloids in unsaturated packed columns: Role of ionic strength and sand grain size, *Chemical Engineering Journal* 232: 237-48, <https://doi.org/10.1016/j.cej.2013.07.093>.

<sup>178</sup> Winiarski T., Lassabatere L., Angulo-Jaramillo R. and Goutaland D. (2013) Characterization of the heterogeneous flow and pollutant transfer in the unsaturated zone in the fluvio-glacial deposit, *Procedia Environ. Sci.*, vol. 19, pp. 955-964.

<sup>179</sup> Cey E. E., Rudolph D. L., et Passmore J. (2009) Influence of macroporosity on preferential solute and colloid transport in unsaturated field soils, *Journal of Contaminant Hydrology* 107(1): 45-57, <https://doi.org/10.1016/j.jconhyd.2009.03.004>.

<sup>180</sup> Mohanty S. K., Saiers J. E., Ryan J. N. (2016). Colloid mobilization in a fractured soil: effect of pore water exchange between preferential flow paths and soil matrix, *Environ. Sci. Technol.*, 50 (5), 2310-2317

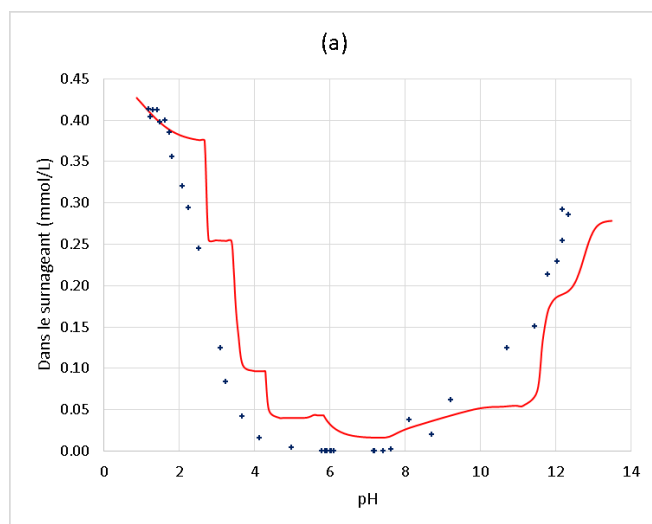
<sup>181</sup> Mohanty S.K., Saiers J, et Ryan J.N. (2015) Colloid Mobilization in a Fractured Soil during Dry-Wet Cycles: Role of Drying Duration and Flow Path Permeability, *Environ. Sci. Technol.* 49(15): 9100-9106, <https://doi.org/10.1021/acs.est.5b00889>.



**Figure 61** Influence du temps de séchage sur la mobilisation des colloïdes du sol en fonction de la macroporosité

*Face à cette diversité de mécanismes tant hydrodynamiques que physico-chimiques, dépendant de l'hétérogénéité des systèmes et de la variation de saturation en eau, une approche de modélisation basée sur la recherche de mécanismes prépondérants sera alors pertinente.*

L'enjeu de la modélisation des matrices complexes - Depuis une dizaine d'années – et nos travaux sur la modélisation des eaux de ruissellement et de la mobilité des métaux dans les sédiments et sols de bord de route- (cf Chapitre 3 p.117), peu d'articles de modélisation ont concerné soit la spéciation des métaux trace dans les eaux de ruissellement, soit le transfert de métaux dans les ouvrages. Les articles produits par nos collègues du LEHNA ressortent essentiellement, on peut mentionner le travail novateur de C. Drapeau en modélisation géochimique du relargage de métaux contenus dans un sédiment d'assainissement à l'aide du code Phreeqc<sup>182</sup> (**Figure 62**).



**Figure 62** Relargage du cuivre en fonction du pH, Expérimental : croix, modélisation : ligne (figure extraite de « Méthodologie d'évaluation du relargage du cuivre piégé dans des sédiments de l'assainissement urbain » Drapeau C, Laurent Lassabatère L, Blanc D, Delolme C, actes de la conférence Novatech, Lyon

Parmi les difficultés auxquelles le modélisateur est confronté, réside celle de la **représentation de l'assemblage des phases constitutives de la**

**matrice poreuse**, c'est-à-dire les phases minérales et organiques à considérer. Les analyses en DRX et les analyses de la matière organique - avec toujours cette limite due au mélange de matières organiques d'origine naturelle et anthropique dans les sédiments- fournissent des données élémentaires sur les phases

<sup>182</sup> Drapeau C (2018) Mesure et modélisation de la mobilité et de la spéciation des éléments majeurs et traces métalliques au sein de matrices complexes polluées en fonction du pH : application aux sédiments urbains et déchets miniers, Univ. Lyon



pures mais les phases minérales mal cristallisées et les agrégats sont soit très mal pris en compte ou pas du tout.

Les autres travaux de modélisation de la littérature traitent préférentiellement de la modélisation de l'infiltration dans les ouvrages d'assainissement en tenant compte de l'hétérogénéité des écoulements<sup>183</sup>,<sup>184</sup> ou des transferts couplés colloïdes-métaux<sup>185</sup>. Dans d'autres contextes (ex. dépollution des sols), des travaux sur systèmes réels peuvent servir de référence pour avancer sur la compréhension des transferts couplés dans les ouvrages d'assainissement<sup>186</sup>,<sup>187</sup>.

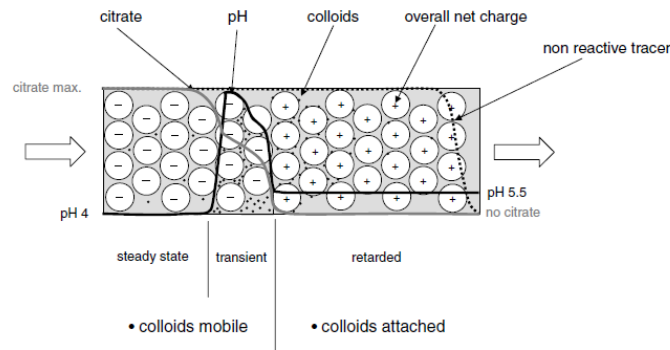


Fig. 9. A conceptual snapshot view of colloid transport in the column, involving release, deposition and remobilization during the transient reaction phase. The non-reactive tracer break through curve at the far right emphasizes the retardation of colloids relative to water flow.

**Figure 63** Schéma conceptuel de la mobilisation de colloïdes de fer sous l'effet d'un extractant organique (extrait de Hofmann et Liang, 2007)<sup>187</sup>

### Objectifs du sujet de recherche

A partir de ces constats de la littérature : acquisition de données très coûteuses, complexité des systèmes pris dans leur ensemble, il convient de développer une approche basée sur la définition et la représentation des processus qui vont gouverner de façon prépondérante le transfert réactif des métaux. C'est une approche 'pas à pas' qui est proposée, dont l'objectif sera de proposer un modèle conceptuel dans un premier temps, avant de passer sur une modélisation numérique d'un système en s'appuyant sur des données existantes ou acquises en collaboration.

### Méthodologie générale

<sup>183</sup> Y. Bentarzi, A. Ghenaim, A. Terfous, A. Wanko & J.B. Poulet (2015) Quantifying mobile and immobile zones during simulated stormwater infiltration through a new permeable pavement material, *Environmental Technology*, 36:5, 628-637,

<sup>184</sup> Browne D, Deletic A, Mudd G, Fletcher T (2008) A new saturated/unsaturated model for stormwater infiltration systems <https://doi.org/10.1002/hyp.7100>

<sup>185</sup> Massoudieh, A., and T. R. Ginn. 2008. Modeling Colloid-Enhanced Contaminant Transport in Stormwater Infiltration Basin Best Management Practices. *Vadose Zone J.* 7:1261-1268. doi:10.2136/vzj2007.0179

<sup>186</sup> Löw A, Cornelis G, Larsbo M, Persson I, Sjöstedt C, Gustafsson JP, Boye K, Kleja DB (2018) Particle- and colloid-facilitated Pb transport in four historically contaminated soils - Speciation and effect of irrigation intensity, *Applied Geochemistry*, 96, 2018, 327-338

<sup>187</sup> Hofmann A, Liang L (2007) Mobilization of colloidal ferrihydrite particles in porous media—An inner-sphere complexation approach, *Geochimica et Cosmochimica Acta* 71 5847–5861

Ce sujet se décompose en plusieurs phases :

- 1) l'étude des possibilités offertes par les codes de calcul géochimique et/ou de transfert réactif déjà utilisés dans la littérature sur les ouvrages d'infiltration ou des systèmes proches tels que les sols de bord de route (Phreeqc, CHESS, Hydrus/HP1...) pour en préciser les limites dans le contexte de l'infiltration des eaux pluviales ; nous nous baserons sur les calculs réalisés lors de la thèse de B. Durin ou dans le cadre d'autres projets (Figure 64) ;

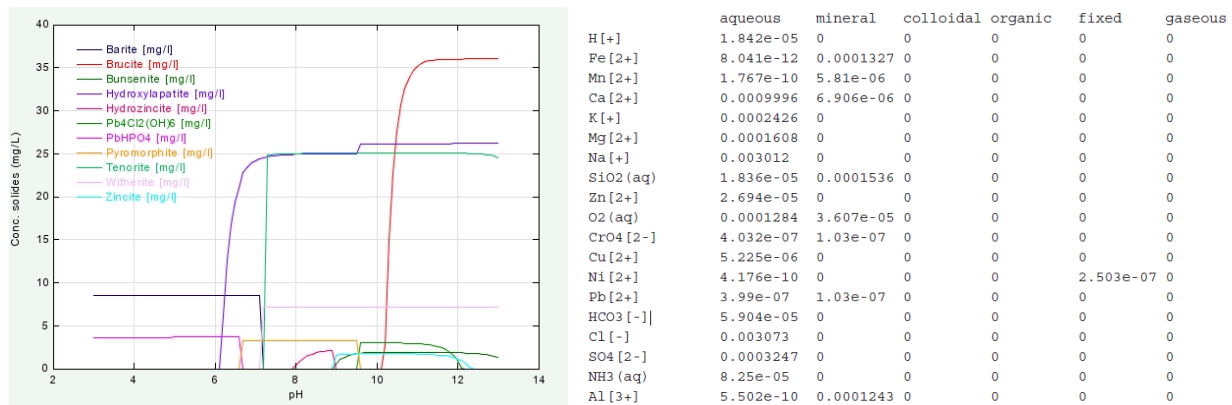


Figure 64 Exemple de calcul de spéciation multimétallique avec le code de calcul géochimique CHESS<sup>188</sup>

- 2) la mise en regard des besoins en données d'entrée des codes et des jeux de données terrain récemment recueillies en collaboration avec les équipes les ayant produites (LEESU, CEREMA, LEE) ;
- 3) la mise en perspective des travaux de modélisation, réalisés sur les eaux et les sédiments pour constituer les bases d'un modèle à plusieurs compartiments à développer sous PHREEQC ou HP1.

### Moyens et collaborations prévus

Cette thématique doit être pensée comme une thématique partagée dans un groupe de recherche multi-site sur le transfert d'eau et le transfert réactif de polluants dans les ouvrages d'infiltration. Elle intéresse les trois équipes du réseau URBIS : le LEHNA et le LEESU en plus de notre équipe. Ces deux équipes ont accueilli les travaux les plus récents sur cette thématique. Aussi la préparation du sujet se fera-t-elle avec L. Lassabatere et M.C. Gromaire, responsables scientifiques de ces sujets dans leur équipe.

Le sujet ne bénéficie pas de financement actuellement mais je viens de déposer un sujet de thèse sur le transfert du cuivre dans les bassins d'infiltration auprès de l'Ifsttar, en collaboration avec plusieurs collègues V. Ruban, L. Jean-Soro (LEE) et T. Lenoir (GMG GERS). Le sujet porte sur la spéciation du cuivre de l'émission (eaux de ruissellement) au sédiment et comporte un volet modélisation.

<sup>188</sup> [RAPP 9] Béchet B (2003)– Détermination des coefficients d'adsorption et de désorption (Kd) des métaux lourds d'un jus de MIOM synthétique vis à vis d'un sol sableux et d'un sol limoneux, rapport de contrat avec le CREED (Centre de Recherches sur l'Environnement, l'Energie et le Déchet, Vivendi Environnement) (2002-2003)

Un.e étudiant.e en master recherche pourrait être recruté.e pour réaliser l'analyse de la littérature et des codes utilisés sur financement IFSTTAR. Une demande de financement de thèse pourrait être formulée auprès de l'I-Site Future pour développer le volet 'modélisation' sur l'expérimentation Sense City. Un projet de pilote d'infiltration des eaux pluviales est déjà porté par le LEESU dans l'Equipex SenseCity.

## **CHAPITRE 4 – SOLS URBAINS ET TRANSITION VERS DES VILLES DURABLES**

Ce chapitre présente mes travaux et actions d’animation de la recherche les plus récents qui donnent une orientation résolument plus intégrée sur les sols urbains et plus large aux recherches que je mène, et qui, de ce fait, conduit à un travail plus interdisciplinaire en équipe. Cette ouverture à un domaine de recherche plus large que le ‘traditionnel’ champ disciplinaire « assainissement urbain » s’est faite à partir de 2008 avec la coordination du projet régional POLESUR que j’ai assuré et la création de l’axe « Sols urbains » dans l’IRSTV. L’ancienne décharge de la Prairie de Mauves est alors devenue mon deuxième site d’observation collaboratif de l’impact anthropique des activités humaines au travers de l’enfouissement de déchets dans le sol, sur un site au cœur du tissu urbain. Ma participation au projet JASSUR – en emmenant plusieurs autres chercheurs de l’IRSTV- a marqué l’ouverture définitive vers une zone d’action urbaine au sens large.

Tout d’abord, un point bibliographique sur le regard porté sur ce compartiment longtemps ignoré de l’écosystème urbain et quelques éléments de caractérisation des sols urbains me permettra de mettre en avant les grandes questions de recherche et opérationnelles actuelles. Puis une présentation des résultats majeurs que nous avons obtenus lors du projet Jassur et des opportunités qui en ont découlé de développer des activités sur l’agriculture urbaine au sein de l’IRSTV (soutenus par l’OSUNA-Pollusols) sera faite. Ceci me conduira à présenter mes travaux en cours sur la prise en compte de la multifonctionnalité des sols dans les solutions fondées sur la nature (NBS) et dans les documents d’urbanisme autour des projets MUSE et URBINAT. Enfin, je présenterai mon sujet de recherche exploratoire sur la perception des sols par les habitants des quartiers pour un aménagement durable, qui motive aussi ma participation aux projets URBINAT et Wise Cities (en attente de confirmation de financement).

### **Problématique d’un sol urbain attendu dans une multifonctionnalité et des services écosystémiques encore trop souvent ignorés et méconnus**

#### **Le sol, un enjeu de planification urbaine**

Dans ses formes actuelles et ses modes de fonctionnement, la Ville est source de pollutions et de nuisances qui affectent la santé humaine (psychique et physique) et les écosystèmes, à tel point que le concept de «Healthy City<sup>189</sup> » apparaît maintenant comme un objectif majeur de planification urbaine, promu par le bureau Européen de l’Organisation Mondiale pour la Santé qui a mis en place un programme européen des Villes-Santé en 1986. Le programme Villes-Santé propose aux villes, considérées comme des organismes vivants, de décider d’agir pour améliorer leur santé et celle de leurs habitants, en envisageant

---

<sup>189</sup> Hugh Barton, City of Well-being - A radical guide to planning © 2017 – Routledge

l'environnement comme une ressource fondamentale à protéger et à enrichir de manière solidaire, dans une perspective aussi bien locale que mondiale.

La réintroduction de la nature en ville, au travers d'un urbanisme renouvelé est une solution dont les bénéfices globaux, soutenus par une demande sociétale forte, sont promus par l'OMS<sup>190</sup>. La littérature scientifique, de plus en plus riche et multidisciplinaire, s'emploie à apporter les preuves de l'impact favorable du végétal en ville sur le bien-être (lutte contre les îlots de chaleur, bienfaits du jardinage...). Cependant, bien que la nécessité de considérer le sol des villes comme une ressource multifonctionnelle, émerge de la littérature scientifique, notamment en tant que support de cette végétation si désirée, la réalité du terrain est loin d'intégrer cette nécessité.

Les pressions foncières sur la ressource « sol » sont de plus en plus fortes en cœur urbain et en périphérie. En conséquence, la reconquête des anciennes friches industrielles et autres sites délaissés est devenue un véritable enjeu du renouvellement de la ville sur elle-même. En effet, comment concilier besoin de logements, d'espaces de services et d'infrastructures avec la conservation des sols ou l'aménagement d'espaces verts ? Il faut alors interroger l'usage des sols et l'intégration de leur multifonctionnalité dans les politiques et les décisions d'aménagement du territoire urbain. **La multifonctionnalité des sols est un enjeu pour la planification urbaine.** Cette position est défendue par les experts internationaux des sols depuis de nombreuses années, «Management of different areas in urban environments must respect the functionality of their soils » revendiquent Lehmann et Stahr en 2007<sup>191</sup>. Ils ajoutent qu'« il est important que la pédologie puisse tisser des liens avec des disciplines telles que l'archéologie, l'histoire et la planification urbaine ». Les connaissances acquises sur les sols anthropisés « doivent être prise en compte dans la gestion des sols, spécialement dans l'évaluation de la qualité des sols. Les résultats de la collaboration entre spécialistes des sols et aménageurs pourront alors être intégrés dans les politiques sur les sols ». Des projets de recherche tels que Urban-SMS<sup>192</sup> (EU) et Uqualisol-ZU<sup>193</sup>, DESTISOL (FR) ont été pionniers dans ce domaine en allant au-delà de la qualité, par la proposition d'indicateurs fonctionnels jusqu'à la compatibilité d'aménagement avec les services du sol. Les projets SUPRA<sup>30</sup> (AAP Graine ADEME) et MUSE<sup>31</sup> (AAP ModeEval Urba ADEME) en cours actuellement font suite au niveau national à Uqualisol, en apportant une complémentarité des approches spatiales et méthodologiques.

---

<sup>190</sup> Urban green spaces : a brief for action © World Health Organization 2017

<sup>191</sup> Lehmann J. et Stahr K. (2007). Nature and significance of anthropogenic urban soils. *J Soils Sediments* 7(4): 247-260. <https://doi.org/10.1065/jss2007.06.235>

<sup>192</sup> [Projet URBAN SMS](#) – Soil Management Strategy financé par l'EU et porté par le Ministère de l'Environnement autrichien (2008-2012)

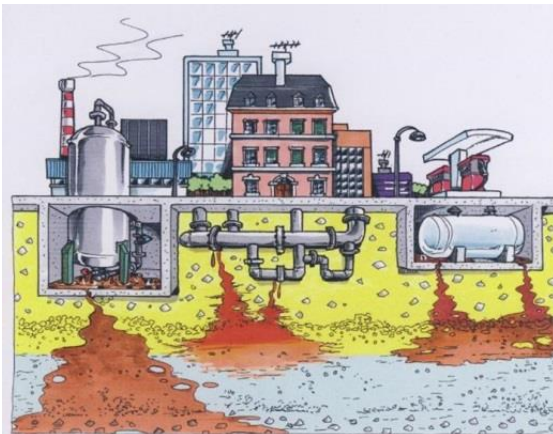
<sup>193</sup> Projet Uqualisol-ZU - Préconisation d'utilisation des sols et qualité des sols en zone urbaine et péri-urbaine -application du bassin minier de Provence –GESSOL 3 (2010-2012) (porteur Univ. Aix Marseille)

## Redonner au sol sa place dans l'écosystème urbain

Le sol urbain, interface entre atmosphère et lithosphère, encore mal connu et peu préservé, est un objet de recherche souvent étudié pour ses propriétés mécaniques, le considérant de ce fait seulement comme un matériau inerte support de construction, et encore assez peu comme une ressource et un écosystème. Hors, pour répondre aux enjeux des changements globaux (climatiques, alimentaires, qualité de vie...), la Ville de demain sera 'verte et nourricière' (Musy et al., 2014)<sup>194</sup>. Les Plans Climat des métropoles, outil d'adaptation au changement climatique, mettent par exemple très souvent en avant le développement de solutions fondées sur la nature (Nature-Based Solutions–NBS) pour répondre aux besoins microclimatiques et sociétaux. Parmi ces solutions, ont été intégrées les techniques alternatives de gestion des eaux pluviales qui se voient attribuer des fonctions (amélioration du confort thermique, développement de la végétation et de la biodiversité, esthétique...) en complémentarité de celles définies à l'origine (régulation des flux et épuration des eaux de ruissellement). La volonté de développer (ou redévelopper) l'agriculture urbaine (et surtout péri-urbaine) dans les villes des pays développées et l'engouement des citoyens pour le jardinage urbain sont les marqueurs du renouveau de la 'ville nourricière' dans les esprits des gestionnaires des métropoles européennes.

Ces enjeux impliquent donc que le sol des villes soit une ressource multifonctionnelle, apte à être le support d'une végétation très variée (arbres, pelouses, plantes potagères...), mais aussi –et cela est souvent omis dans les discussions techniques- un milieu présentant des propriétés d'infiltration et de rétention d'eau et agronomiques propices à l'alimentation en eau et à la nutrition des végétaux. Hors les études menées sur les sols urbains, ainsi que les retours d'expérience des services des espaces verts des villes ou des paysagistes montrent combien les propriétés des sols urbains peuvent fréquemment être défavorables au développement des végétaux de façon durable, et présenter des risques sanitaires dans le cas du développement de

l'agriculture urbaine.



L'état actuel des sols dans les zones urbanisées est le résultat d'usages très variés sur des périodes plus ou moins longues selon l'ancienneté de la cité étudiée, mais aussi une résultante des façons de considérer le sol d'un point de vue plus théorique (**Figure 65**).

**Figure 65** Sol urbain : des spécificités modifiant les fonctions et les services écosystémiques rendus (illustration M. Balmes)

<sup>194</sup> Musy M. et co-auteurs (2014). *Une ville verte, les rôles du végétal en ville*. Collection Synthèses, Ed. Quae, 200 pages.

Mantziaras et Vigano (2016)<sup>195</sup> nous invitent ainsi à repenser le sol comme ‘ressource’ et ‘projet’. Ce sol qui est « perdu entre les fondations des infrastructures, sous les caves des bâtiments » souffre d’être une « ressource reniée par une culture urbaine historiquement positionnée contre la culture rurale et son culte du sol ». Le sol urbain ressurgit à la fois par la négative (humidité, affaissements, séismes...) et par des aspects positifs dès le 18<sup>ème</sup> siècle par l’avancée de l’hygiénisme (Mathis et Pépy, 2017)<sup>196</sup> et depuis la fin du 20<sup>ème</sup> siècle grâce à l’essor de l’agriculture urbaine<sup>195</sup>.

Sol et végétation sont intimement liés, du bac, conteneur ou jardinière dans lequel le citoyen fait pousser des herbes aromatiques - quoique dans la plupart des cas, c’est un substrat qui est mis en place- à la forêt urbaine. Ils constituent avec l’eau - et les espèces vivantes, même si ces dernières ne sont pas fréquemment considérées- les éléments de la composante ‘Nature en ville’. De nombreuses politiques de développement urbain s’accompagnent dorénavant d’interventions visant à introduire la nature dans la ville, dans un contexte de développement urbain durable. Une littérature riche est maintenant disponible sur la nature dans la ville et les stratégies d’écologisation des fonctionnements et des espaces urbains’ pour améliorer la durabilité urbaine. Hajek et al. (2015)<sup>197</sup> par exemple confrontent d’une façon relativement originale les métabolismes urbains responsables d’impacts environnementaux et sanitaires croissants à l’idéologie de la « ville-nature ». Un nombre assez conséquent maintenant de projets de recherche et d’innovation nationaux et européens sur la nature en ville et les solutions fondées sur la nature (Nature-Based Solutions) sont porteurs de l’analyse de cette renaturation et du développement des solutions (cf. les projets ANR JASSUR, H2020 Nature4Cities et URBINAT -participation personnelle et IRSTV). Au-delà de l’intérêt esthétique ou de l’amélioration du confort thermique parmi les bénéfices de la végétalisation, le développement de la nature en ville pourrait aussi être un levier d’action contre l’extension de l’urbanisation, c’est une des pistes de recherche proposée dans les conclusions de l’[ESCO](#)<sup>3</sup> sur l’artificialisation des sols restituée fin 2017 (participation personnelle en tant que co-pilote). En effet, le besoin de nature fait partie des déterminants de la péri-urbanisation et procurer un espace urbain plus vert pourrait limiter l’attrait du modèle « pavillon et jardin » pour les urbains français.

Dans les différentes solutions proposées actuellement pour contribuer au développement de villes durables et résilientes face aux changements globaux, **le sol est donc un élément incontournable à prendre en compte dans les opérations de réhabilitation ou d’aménagement en tant que composante d’un écosystème urbain qu’il convient de mieux caractériser et de préserver.** « L’intégration de la gestion des sols dans la gestion de l’écosystème urbain durable devient une évidence », résume Havlicek E.<sup>198</sup>. A cet effet, [l’année internationale des sols en 2015](#), décrétée par la FAO, a porté à connaissance au niveau des

---

<sup>195</sup> Mantziaras P. et Vigano P. (2016). *Ressource et projet – Le sol des villes*. vuesDensembleEssais, MetisPresses, 254 pages.

<sup>196</sup> Mathis C.F. et Pépy E.A. (2017). *La ville végétale – Une histoire de la nature en milieu urbain (France, XVIIe – XXIe siècle)*. Champvallon, NIL Presses, 369 pages.

<sup>197</sup> Hajek I., Hamman P., Lévy J.P. (2015). *De la ville durable à la nature en ville*. Coll. Environnement et société, Septentrion Presses universitaires, 316 pages.

<sup>198</sup> Havlicek Elena, « Le sol urbain : surface inerte ou capital naturel ? » dans Mantziaras P. et Vigano P. (2016)<sup>195</sup>

gouvernements des pays et sur les réseaux sociaux les fonctions des sols, les menaces sur les services écosystémiques qu'ils rendent et les solutions possibles. Le groupe de travail SUTMA dédié aux 'Soils of Urban, Industrial, Transport, Mining and Military Areas' de la division 3 (Soil use and management) de l'IUSS – International Union of Soil Sciences- contribue depuis 1998 à rassembler la communauté scientifique internationale sur les sols urbains pour développer toutes les connaissances nécessaires et assurer le retour d'expérience afin de rendre possible une gestion optimisée des sols urbains (caractérisation, cartographie, fonctions, services écosystémiques...).

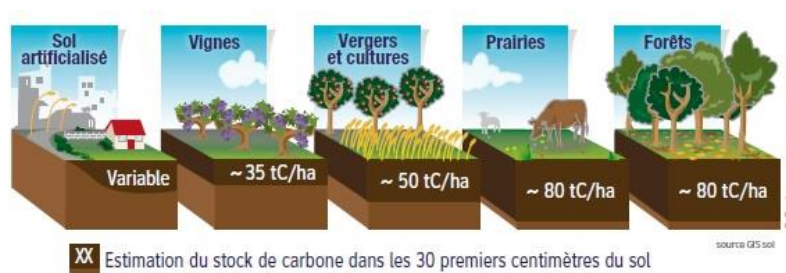
De façon plus spécifique, en mars 2018, l'Office parlementaire français d'évaluation des choix scientifiques et technologiques (OPECST) a rendu publique une note sur [le stockage de carbone dans les sols](#) d'une part, pour compenser les émissions anthropiques de CO<sub>2</sub>, d'autre part, pour renforcer la sécurité alimentaire. Cette note s'appuie notamment sur l'initiative « 4 pour 1000 », lancée en décembre 2015 lors de la COP 21, à l'initiative de la France (INRA), qui vise à promouvoir internationalement les actions pour stocker 0,4% de carbone en plus par an dans les sols. Le stockage de carbone dans les sols urbains (travaux de A. Cambou ACO EPhor et A. Blanchart Univ. Lorraine) et l'effet de l'urbanisation (cf. ESCO Artificialisation des sols<sup>3</sup>) sont explicitement mentionnés dans cette note. Un atelier sur le « 4 pour 1000 » a eu lieu les 7 et 8 novembre 2018 à Sète pour travailler à la définition des actions à mettre en œuvre (participation : L. Beaudet-Vidal (ACO EPhor/VESPA/IRSTV) et moi-même).

Les Ministères de l'agriculture et de la transition écologique, l'ADEME, l'INRA, le CIRAD sont particulièrement engagés dans les actions en faveur de la gestion durable des sols. L'ADEME a financé 3 thèses consacrées aux sols urbains sur 2016-2018 (A. Cambou, A. Blanchart, B. Sauvaget) et apporte son soutien actuellement à deux projets de recherche (SUPRA et MUSE (IRSTV CNRS partenaire et j'y participe). L'IFSTTAR n'est pas en reste dans son domaine d'expertise sur les recherches sur les sols urbains, au-delà de son engagement dans l'ESCO « Artificialisation des sols ». La stratégie scientifique à 10 ans de l'IFSTTAR, élaborée en 2012, porte dans les pages consacrées à son défi 3 « Maîtriser les risques naturels et nos impacts environnementaux » une attention particulière aux [sols urbains](#) en pointant l'enjeu de spécifier les fonctions des sols, de les restituer si possible et, à défaut, de proposer des usages selon leur qualité (habitations, espaces publics, jardins, etc.). Par la suite, la démarche de priorisation des thématiques scientifiques menée au sein de l'Ifsttar de 2014 à 2016, souligne à nouveau dans les défis 3 et 4<sup>29</sup> la nécessité de l'acquisition de données sur les pollutions des sols par l'observation et la détection de phénomènes de propagations multi-échelles, pour aller vers un usage des sols raisonné dans la Ville de demain. L'IRSTV est par ailleurs cité dans le défi 4, comme étant une des structures d'appui pour les équipes de l'IFSTTAR, pour mener à bien les recherches intégrées qu'appellent les mutations de nos Villes. Les éléments de contexte listés ci-dessus soulignent la nécessité, pour **appréhender la prise en compte des sols dans le développement durable des villes de travailler à différentes échelles.**



L'analyse des sols urbains, la connaissance de leur pédogénèse et la compréhension des processus biogéochimiques et de transfert de substances en leur sein ne peuvent se faire qu'à une échelle allant du laboratoire pour l'étude fine des processus à celle de l'ouvrage. Au contraire, la prise en compte de la qualité et des fonctions des sols dans un objectif de préservation durable des services écosystémiques qu'ils rendent doit se faire à l'échelle de l'aménagement des quartiers ou des villes.

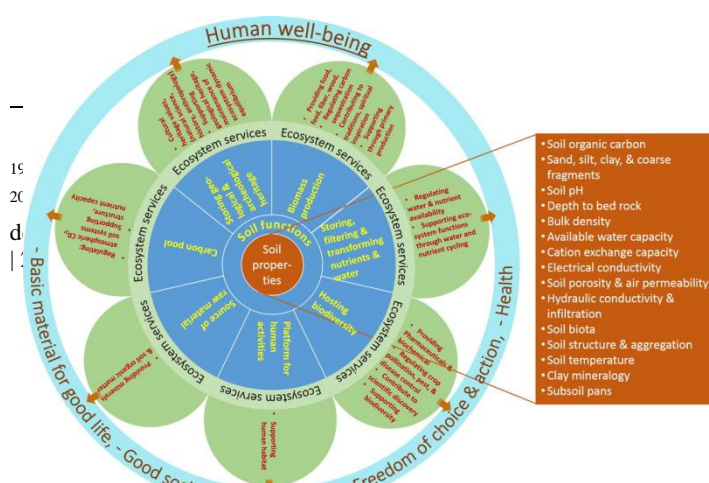
**L'hétérogénéité spatiale forte des propriétés des sols urbains rend cette approche multi-échelle nécessaire pour assurer une gestion différenciée optimisée des espaces urbains.** La **Figure 66** souligne, sur le cas du carbone organique, le manque de données sur ce paramètre pour les sols urbains, en comparaison des sols forestiers et agricoles. Le **manque de données spatialisées sur la qualité des sols** dans les services techniques des villes a une incidence forte sur les décisions de gestion prises par les acteurs décisionnaires publics. L'expertise de la communauté scientifique, lorsqu'elle est sollicitée, aide alors la collectivité à prendre les mesures qui vont permettre de préserver ou optimiser les usages du sol, comme cela a été le cas entre la Ville de Nantes et les chercheurs de l'IRSTV sur la question de la contamination des sols de jardins associatifs dans le cadre de l'ANR JASSUR.



**Figure 66** Variation des stocks de carbone organique selon l'affectation des sols en France (extrait de la brochure ADEME « Carbone organique des sols » 2016)

### Des relations pas si simples entre classification et fonctions des sols urbains à la base des services écosystémiques rendus

Il est hors de mon propos de rappeler les propriétés, fonctions et services rendus par les sols (**Figure 67**). De très nombreuses publications en font état<sup>199</sup> et on pourra se référer pour ce qui concerne les sols urbains aux dernières publications du L.S.E Nancy<sup>200</sup> et aux chapitres 2 et 3 Partie 3 du rapport de l'ESCO « Artificialisation des sols »<sup>32</sup>. Le focus est juste mis ici sur quelques difficultés liées aux hétérogénéités spatiales fortes des sols urbains.



— A global review, *Geoderma*, 262, 101-111  
 vartz C (2017) Contribution des sols à la production Urbain / Urban Environment [En ligne], Volume 11

**Figure 67** Propriétés, fonctions et services écosystémiques rendus par les sols à l'humanité (extrait de Adhikari K, Hartemink AE, 2016)

Les sols urbains sont connus pour leur forte hétérogénéité<sup>201</sup>, hérités de l'usage des sols et des transformations qu'ils ont subies. Des référentiels pédologiques (et non des classifications hiérarchisées) sont proposés pour définir les sols urbains dans le RPF (Référentiel Pédologique Français) et la WRBSR (World Reference Base for Soil Resources). Dans le RPF, les auteurs regroupent sous le vocable d'Anthrosols, les sols d'origine naturelle tellement transformés par des processus anthropo-génétiques que le solum originel n'est plus reconnaissable ou bien a acquis de nouvelles morphologies et propriétés qui ne permettent plus son rattachement à d'autres références (Anthrosols transformés) et des sols au sens plus large entièrement fabriqués par l'Homme, suite à des apports de matériaux artificiels (Anthrosols artificiels) ou terreux (Anthrosols reconstitués). Dans sa dernière édition, le RPF englobe aussi la notion d'Anthrosol construit par l'Homme, à partir de matériaux techniques.

Le WRBSR (World Reference Base for Soil Resources) (IUSS Working Group et WRB, 2006) est un référentiel international destiné à harmoniser et coordonner entre elles les classifications existantes<sup>202</sup>. La WRBSR propose une vision large des sols à travers les Anthrosols et surtout la création d'un nouveau groupe de référence, les Technosols (IUSS Working Group et WRB, 2006). Cette proposition a émergé de plusieurs travaux mettant en évidence, d'une part la nécessité de prendre en considération les surfaces fortement modifiées par l'Homme, d'autre part la position privilégiée des pédologues pour étudier ces objets dont le fonctionnement, les propriétés et l'évolution sont proches des sols. Le terme d'Anthrosol a été introduit dans la légende de la carte mondiale des sols pour désigner les sols dans lesquels les activités humaines ont causé de profondes modifications aux horizons originels ou les ont enfouis ; par exemple enlèvement ou perturbation des horizons de surface, déblais ou remblais, apports séculaires de matières organiques, irrigation de longue durée. Les Anthrosols ont ainsi été subdivisés en quatre unités pédologiques principales définies à partir de propriétés ou horizons diagnostiques : (1) les Anthrosols ariques qui présentent des restes d'horizons diagnostiques disloqués par des labours profonds ; (2) les Anthrosols cumuliques qui présentent une accumulation de sédiments fins de plus de 50 cm d'épaisseur résultant d'une irrigation de longue durée ou du rehaussement artificiel de la surface du sol ; (3) les Anthrosols fimiques qui possèdent un horizon fimique c'est à dire un horizon diagnostique de surface d'au moins 50 cm d'épaisseur résultant de l'application de fumures organiques pendant une longue durée ; (4) les Anthrosols urbiques où apparaissent sur une profondeur de plus de 50 cm des remblais variés résultant d'activités industrielles ou urbaines.

---

<sup>201</sup> Cheverry C. et Gascuel C. (2009) *Sous les Pavés, la Terre*, Omniscience, 208 p. - Morel JL, Schwartz C, Florentin L, de Kimpe C (2005): Urban soils. In: Hillel D (ed), *Encyclopedia of Soils in the Environment*. Elsevier Ltd., Academic Press, London, pp 202–208 - Levin M. J.; John Kim K-H; Morel J L; Burghardt W; Charzynski P; Shaw R K. (2017) *Soils within Cities - Global approaches to their sustainable management - composition, properties, and functions of soils of the urban environment*, on behalf of IUSS Working Group SUITMA, Catena-Schweizerbart, 253 p.

<sup>202</sup> Lehmann A, Stahr K (2007) Nature and significance of anthropogenic urban soils, *J Soils Sediments* 7(4): 247-260. <https://doi.org/10.1065/jss2007.06.235>

Des lacunes dans la description des sols très anthropisés ayant été constatées, un nouveau groupe de référence, celui des Technosols a été proposé. Ce sont des sols dont les propriétés et la pédogenèse sont dominées par leur origine technique, c'est à dire anthropique. Ils se caractérisent soit par de fortes quantités de matériaux artificiels (définis comme des artefacts), soit par un scellement anthropique en surface ou en profondeur. Ceci permet que des couches de matériaux présents sur des surfaces occupées par des décharges, des terrils miniers, des stockages de déchets ou sous-produits et des voies de communication soient appréhendées comme des sols. Les Technosols rassemblent tous les sols dont les propriétés et la pédogenèse sont dominées par la présence de matériaux artificiels ou de matériaux transportés par l'Homme de façon intentionnelle en dehors de leur lieu d'origine.

Deux référentiels à comparer (**Tableau 11**) et à mettre aussi en regard des usages qui sont faits des sols, classiquement utilisés pour donner une classification générale, celles des SUTMA par exemple<sup>203</sup>(....

**Tableau 11** Correspondance synthétique entre les référentiels RPF et WRB

RPF 2008	WRB 2006
Anthrosols transformés	Anthrosols
Anthrosols artificiels	Technosols
Anthrosols reconstitués	non pris en compte
Anthrosols construits	Technosols (transportic)
Anthrosols archéologiques	non pris en compte

Type de sol RPF / SUTMA	Sols naturels non transformés	Anthrosols transformés	Anthrosols reconstitués ou construits	Anthrosols artificiels ouverts	Sols scellés
Zone urbaine	jardins, enclaves agricoles résiduelles	jardins privés ou publics, agriculture urbaine	espaces verts créés, végétalisation de zones bâties	friches urbaines	surfaces bâties, voirie, trottoirs, places, parkings
Zone industrielle	enclaves naturelles		abords végétalisés des installations industrielles	friches industrielles, centre d'enfouissement de déchets	bâtiments et infrastructures industriels et logistiques
Infrastructure de transport			abords végétalisés des voies	voies ferroviaires, remblais bruts, chemins non revêtus	voirie, aéroports, installations portuaires
Zone minière/ carrières	enclaves naturelles	zones affectées par des retombées d'activités minières ou carrières	terrils et carrières réhabilités	terrils et carrières abandonnés	zone de tri, de stockage, pistes
Zone militaire		terrains de manoeuvre militaires			infrastructures militaires

**Tableau 1.** Catégories de SUTMA et types de sols définis par le Référentiel Pédologique Français 2008 (Baize et al., 2009)

**Figure 68** Proposition de croisement entre usages des sols et type de sol caractérisé par ses paramètres physico-chimiques (extrait de l'ESCO Artificialisation des sols – Chapitre 2 Partie 3 Delolme et al.)

<sup>203</sup> Schwartz C. (2017), Qualité physicochimique des sols artificialisés (Delolme C. et Cornu S. (coord.)), dans Béchet B. (coord.), et al., 2017, *Sols artificialisés et processus d'artificialisation des sols, Déterminants, impacts et leviers d'action*. INRA (France), 609 p.

Le constat qui est fait actuellement est que l'hétérogénéité spatiale des sols urbains, tant en 2D qu'en 3D, rend leur classification, leur cartographie et le lien entre type de sol et fonctions/services difficiles à généraliser. De plus, une autre difficulté réside la conception 'sol-surface' (vision 2D) dans les usages du sol (ex. cartes d'occupation du sol), qui se confronte avec la vision 3D qui doit être développée pour pouvoir intégrer dans l'évaluation des potentialités du sol, son historique<sup>204</sup>.

## Evaluation et gestion de la contamination de sols de jardins associatifs

Initié par une forte demande sociale, le phénomène des jardins urbains est en pleine expansion mondiale, notamment dans les pays industrialisés. Il s'inscrit dans le concept de ville durable actuellement en émergence et répond à la paupérisation croissante de certaines catégories sociales ainsi qu'à la remise en cause du système alimentaire « globalisé »<sup>205</sup>. La pratique du jardinage urbain tend même parfois à replacer les jardins familiaux au centre des stratégies alimentaires de certains ménages. En effet, l'augmentation des prix des produits alimentaires associée à une sensibilisation des consommateurs à leur approvisionnement a créé une incitation à la mise en place de jardins potagers dans et autour des centres urbains<sup>206</sup>.

Cependant, compte-tenu de l'historique des usages des sols en milieu urbain, de la localisation de beaucoup de jardins associatifs urbains et des pratiques culturelles des jardiniers, une diversité très forte d'éléments potentiellement toxiques est attendue dans les sols de jardins<sup>207, 208</sup>. Cela peut conduire à un risque sanitaire pour les jardiniers, par exposition directe lors de la culture (inhalation de poussières, contact avec le sol, ingestion) ou par la consommation de légumes contaminés. Il est donc important pour formuler des recommandations pertinentes de gestion de l'activité auprès des gestionnaires de ces jardins qui s'interrogent sur la qualité des sols, d'être capable d'en définir la variabilité et les conséquences sur l'exposition aux contaminants potentiels. Zahran et al. (2013)<sup>209</sup> se sont intéressés par exemple au lien entre pollution au plomb des sols urbains et la santé des enfants et recommandent des actions de prévention des risques intégrées dans les plans d'urbanisme pour limiter l'exposition directe dans l'environnement immédiat du cadre de vie des populations.

---

<sup>204</sup> [ACTIN9] Le Guern C, Jean-Soro L, **Béchet B** (2016). Spatial distribution of trace elements in urban allotment gardens: influence of and on land-use change, Growing in Cities: interdisciplinary perspectives on urban gardening— Conférence finale de l'action COST 1201 "UAGs in Europe", Basel, 8-10 sept.

<sup>205</sup> Morgan K., Marsden T., Murdoch J., 2006. Networks, Conventions and Regions: theorizing "Worlds of Food". In Place, Power and Provenance in the Food chain. Oxford University Press, Chapter 1, pp.7--25.

<sup>206</sup> PADES. 2005. Les jardins familiaux : un outil de développement social urbain. [http://www.padesautoproduction.net/jardins\\_famil\\_outil.html](http://www.padesautoproduction.net/jardins_famil_outil.html).

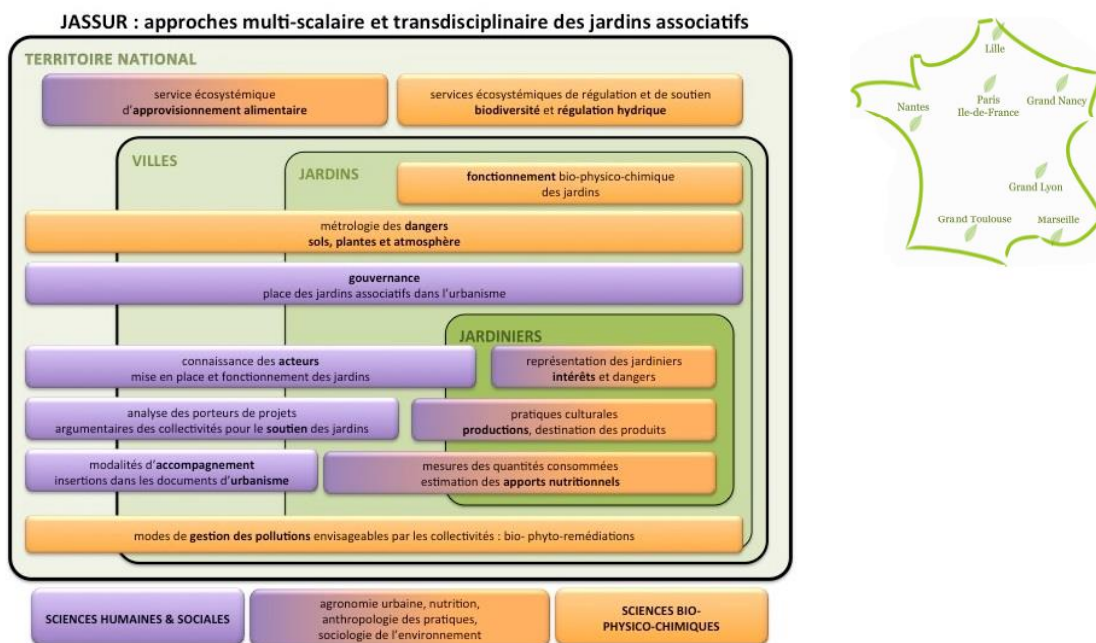
<sup>207</sup> Schwartz C (2013) Les sols de jardins, supports d'une agriculture urbaine intensive, *VertigO - la revue électronique en sciences de l'environnement* [En ligne], Hors-série 15 | février 2013

<sup>208</sup> Hursthouse AS, Leitão TE (2015) Environmental pressures on and the status of urban allotments. In: Bell S, Fox-Kämper R (eds) *Urban allotment gardens in Europe*. Routledge, UK, pp 147–169

<sup>209</sup> Zahran S, Mark A. S. Laidlaw, Shawn P. McElmurry, Gabriel M. Filippelli, and Mark Taylor (2013) Linking Source and Effect: Resuspended Soil Lead, Air Lead, and Children's Blood Lead Levels in Detroit, Michigan, *Environmental Science & Technology* 47 (6), 2839-2845

Si la qualité des sols urbains proches des sources connues de contamination (infrastructures de transport, zones industrielles anciennes ou actuelles, usines d’incinération, centre de production d’énergie…) est bien documentée, l’impact des contaminations diffuses historiques ou actuelles l’est beaucoup moins, alors que des bases de données comme BASIAS<sup>210</sup> mettent en évidence la multiplicité des activités potentiellement polluantes au cœur des territoires urbains. Dans le cas des jardins, très peu d’études traitent de la variabilité spatiale de la qualité des sols entre et à l’intérieur même des sites et de la relation avec la qualité des légumes<sup>211</sup>. Cela peut pourtant avoir des conséquences importantes en termes de gestion des sites vis-à-vis de la santé des jardiniers.

Le projet de recherche national JASSUR<sup>24</sup> (**Figure 69**) s’est ancré sur le territoire national au travers d’une expérimentation terrain d’une participation des collectivités à la transversalité des échanges (Atelier Ville, Ateleur Inter-villes). Par rapport à la Ville de Nantes, la temporalité du montage du projet Jassur était en fait la même que les interrogations du service des espaces verts, responsable des jardins collectifs sur de possibles contaminations de sols de jardins. L’implication de la Ville a été immédiate sur la base de diagnostics de qualité des sols et d’un accompagnement pour la gestion des sols qui serait proposé dans le projet Jassur.



**Figure 69** Les sujets de recherche traités dans le projet Jassur et la cartographie des villes partenaires (source site Web Jassur)

<sup>210</sup> inventaire national d'anciens sites industriels et activités de service susceptibles d’avoir mis en œuvre des substances potentiellement polluantes

<sup>211</sup> Nabulo G, Young SD, Black CR (2010) Assessing risk to human health from tropical leafy vegetables grown on contaminated urban soils. *Sci Total Environ* 408:5338-5351

Un millier de parcelles cultivables sont mises à la disposition des habitants de Nantes dans des jardins familiaux disséminés dans toute la ville. Consciente des risques de pollution des sols de ces jardins, la ville de Nantes avait lancé un programme de contrôle de la qualité des sols de ses 24 jardins en 2010. L'objectif était de déterminer les teneurs en contaminants organiques et inorganiques dans les sols. Huit jardins associatifs ont été ciblés par rapport à la mise en évidence de contamination en métaux trace et/ou en hydrocarbures.

Cinq des résultats majeurs pour l'équipe nantaise Jassur auxquels j'ai contribué sont présentés de façon synthétique ci-dessous : 1) l'analyse de la variabilité spatiale de la contamination métallique des sols à différentes échelles (sur le terrain j'ai réalisé l'analyse des profils de sol pour relier concentrations anormales et sources de pollution); 2) le lien entre les sources de contaminants et l'historique de l'usage des sites; 3) la proposition de modes de gestion différenciée des sols (gestion intra- et intersite) au regard des caractéristiques des pollutions constatées ; 4) ma participation à l'Action COST « Urban allotment garden in Europe » TU 1201 (2014- 2016) ; 5) l'initiation et la coordination d'une journée de communication «Cultivez sur sol urbain » le 6 juin 2015 sur le site du jardin des Eglantiers.

### **Facteurs d'hétérogénéité spatiale de la contamination métallique aux échelles parcelle, site et ville<sup>212,213</sup>**

Les objectifs de cette étude étaient d'évaluer la variabilité spatiale de la distribution des éléments traces dans des sols de jardins collectifs, de l'échelle de la parcelle à l'échelle de la ville dans 4 villes européennes, pour évaluer des valeurs anormales dues aux pressions anthropiques et d'évaluer la technique de fluorescence de rayons x portable (PXRF) en tant qu'outil performant pour la gestion des sols. Cette étude comparative a été rendue possible par les contacts noués dans le groupe de travail Ecology de l'action COST.

Les 4 villes d'étude (Ayr et Greenock (Écosse), Lisbonne (Portugal), Nantes (France)) offrent un large éventail de pressions anthropiques et de densité de population. Les emplacements des potagers avaient été dans toutes les villes, choisis en consultation avec la municipalité locale, afin de refléter les diverses utilisations des terres, ou selon la précédente évaluation de la qualité du sol. Les données produites et comparées sont: les propriétés physico-chimiques des sols et les concentrations en éléments trace sur un échantillon composite sur chaque parcelle et pour Nantes la mesure par PXRF in situ sur 259 échantillons

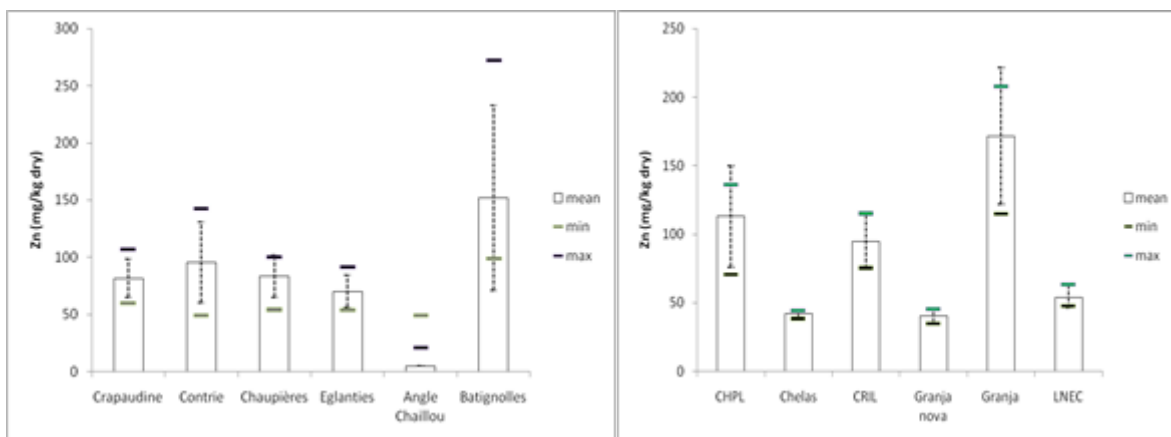
---

<sup>212</sup> [ACL26] **Bechet B.**, S Joimel, L Jean-Soro, A Hursthouse, A Agboola, TE Leitão, H Costa, M Cameira, C Le Guern, C Schwartz, T Lebeau (2018) Spatial variability of trace elements in allotment gardens of four European cities: assessments at city, garden and plot-scale. *Journal of Soils and Sediments*, 18(2), 391-406,

<sup>213</sup> [ACL 23] Jean-Soro L, Le Guern C, **Bechet B.**, Lebeau T, Ringard MF (2015) Origin of trace elements in an urban garden in Nantes, France, *Journal of Soils and Sediments* 15(8): 1802-1812

composites de différents jardins, ainsi que 32 échantillons d'un ensemble de 4 parcelles sur le jardin des Eglantiers.

Les résultats ont été analysés afin d'évaluer la variabilité spatiale des propriétés du sol à l'échelle de la parcelle jusqu'à l'échelle de la ville. À l'échelle ville et l'échelle jardin, la variabilité observée pour les paramètres globaux et les éléments majeurs est principalement liée au contexte géologique local (pH, CEC, CaCO<sub>3</sub>, Fe) et aux pratiques culturales (OM, CaCO<sub>3</sub>) qui semblent être différentes dans chaque pays. Les gammes de concentrations en éléments traces sont proches entre chaque ville sauf à Greenock. Des écarts type importants sont observés pour Cu, Pb et Zn en raison de valeurs extrêmes dues à l'activité industrielle ou au transport. Dans la plupart des cas, la contamination a été expliquée au travers de l'étude historique et environnementale du site. La méthode de PXRF et la cartographie se sont avérées efficaces pour la détection de points chauds ou pour la délimitation de zones contaminées et donc pertinente pour la gestion des sols à l'échelle de la parcelle et du jardin.



**Figure 70** Teneurs en zinc dans les 6 jardins de Nantes et de Lisbonne (valeur moyenne et écart type, valeurs extrêmes)

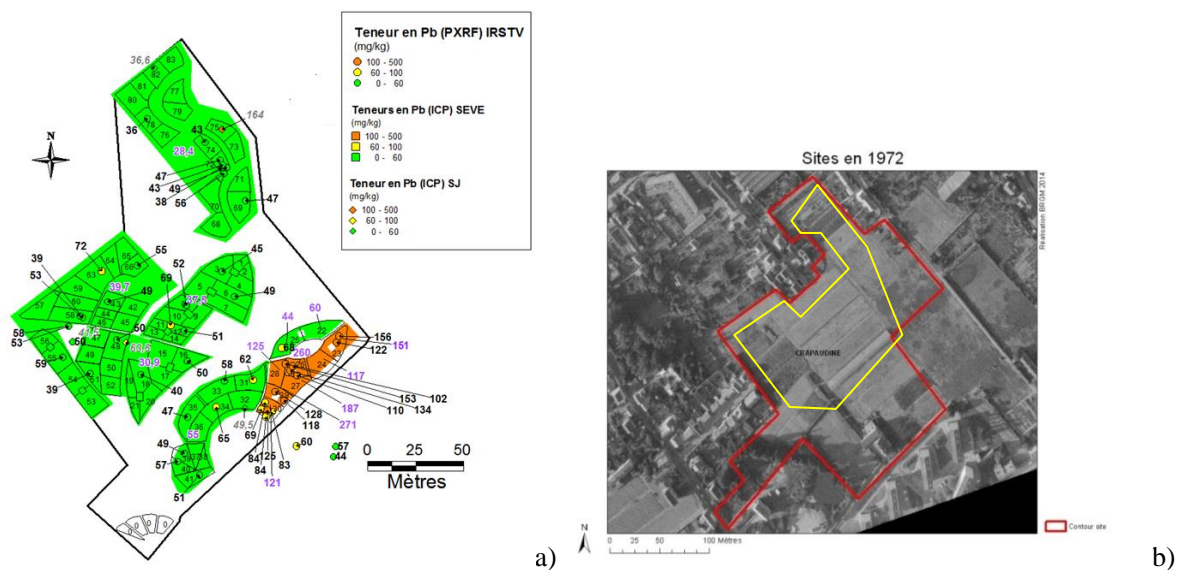
### Origine des contaminations des sols de jardins : influence croisée du fond géochimique et de l'usage des sols <sup>204</sup>

Nos travaux sur les jardins nantais ont été présentés dans le cadre de la conférence finale de l'action COST, dans laquelle j'ai proposé et animé une session intitulée « Quality of soils, groundwater and vegetables in urban gardens versus environmental pressures ». L'objectif de la présentation orale était de montrer comment la distribution spatiale des contaminants métalliques pouvait être expliquée par l'histoire des sites et comment cette dernière était prise en compte pour les usages futurs.

Les changements d'affectation des sols ont été déterminés à l'aide d'une analyse historique des activités humaines au cours du temps pour chaque site. Les teneurs en métaux ont été mesurées par PXRF dans l'horizon de surface et sur les profils de sol. L'origine des métaux et leur répartition spatiale à l'échelle de

la parcelle et du jardin ont été interprétées à la lumière des modifications ayant touché l'espace. Sur la plupart des sites, l'analyse de l'évolution de l'occupation du sol induit une stratégie d'échantillonnage plus efficace et une interprétation des résultats plus facile (distribution spatiale et origine des métaux).

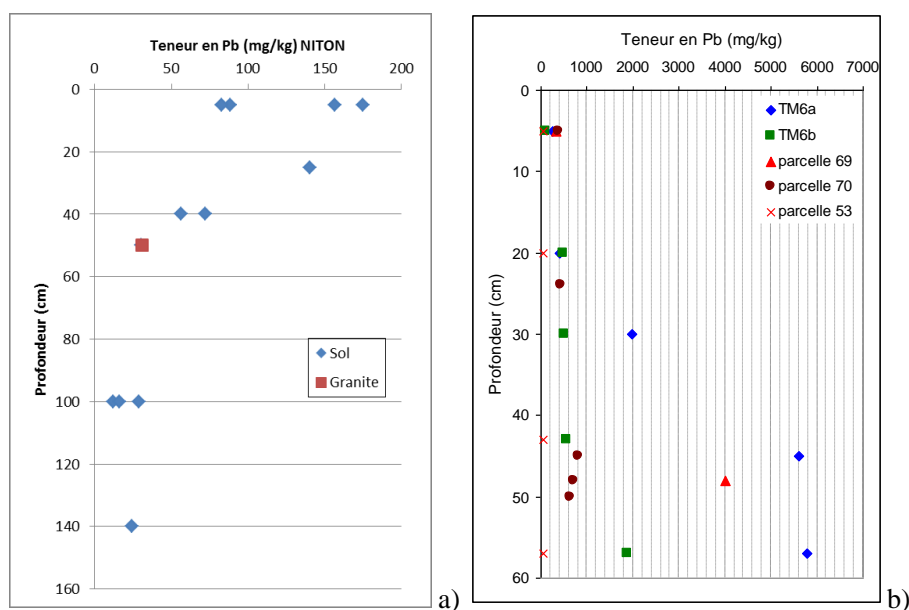
L'origine des contaminations n'a pu être déterminée de façon formelle pour trois jardins sur huit : Crapaudine, Fournillière et Contrie. Pour ces deux derniers, les apports de métaux liés à l'usage des produits phytosanitaires dans ces anciennes zones de maraîchage représentent l'hypothèse la plus probable pour expliquer la large répartition de teneurs anormales. Sur le site de la Crapaudine, des teneurs moyennes à élevées en plomb ne sont notées que pour un ensemble d'une dizaine de parcelles. L'analyse historique a révélé une occupation par une activité maraîchère (présence de serres sur la zone contaminée) et des scories métalliques ont été trouvées dans les sols lors de la campagne terrain.



**Figure 71** Parc potager de la Crapaudine (Nantes) a) Cartographie des teneurs en plomb sur la zone de jardin associatif; b) photo aérienne de 1972 montrant la localisation de la serre sur l'exploitation maraîchère (contour de l'exploitation en rouge, emprise du jardin actuel en jaune)

Un des sites a fait l'objet d'un important stockage de terres excavées contaminées en plomb d'origine naturelle. C'est également ce plomb d'origine géogénique que l'on retrouve dans les sols du jardin des Eglantiers<sup>213</sup>. Par contre le plomb dans les sols du parc des Oblates est d'origine industrielle (panache de fumée d'une fonderie) (**Figure 72**). Enfin, les profils de sol sur le jardin des Batignolles ont révélé la présence de technosols en proximité immédiate d'une usine métallurgique.





**Figure 72** Teneurs en plomb mesurées par fluorescence X portable dans a) le sol du parc des Oblates, avec la teneur dans le granite constituant le matériau parent (origine industrielle) ; b) le sol du jardin des Eglantiers dans plusieurs parcelles (origine géogénique)

Le fond géochimique local dans la région nantaise se caractérise par des teneurs anormales en plomb et arsenic liées à l'enrichissement des roches (micaschistes) en ces éléments. La caractérisation du degré d'anomalie est réalisée par référence aux classes d'anomalies proposées par le BRGM en comparaison avec le fond géochimique local (programme METOTRASS (2009-2013)): une anomalie forte en plomb est affichée lorsque la teneur dépasse 100 mg/kg.

### Elaboration d'une méthodologie de gestion différenciée de la contamination d'un sol de jardin<sup>214</sup>

L'ensemble des travaux menés depuis 2011, sous forme d'un système tripartite multiacteurs, entre la Ville de Nantes, les associations de jardiniers et 4 chercheurs de l'axe Sols urbains de l'IRSTV, peut se résumer sous forme d'une approche méthodologique collaborative en trois étapes (**Figure 73**) :

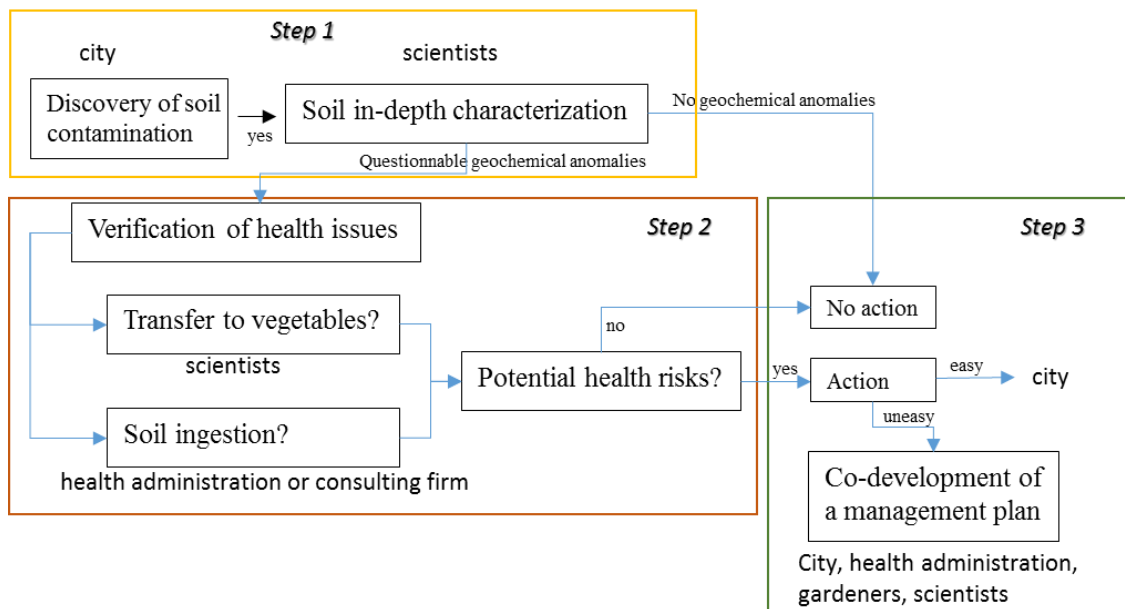
- 1) analyse préliminaire menée par la Ville puis si nécessaire, description et caractérisation des sols plus approfondie. Cette approche inclut l'histoire de l'occupation du sol. La stratégie d'échantillonnage est adaptée en fonction des hétérogénéités pressenties.
- 2) analyse des productions potagères et évaluation des risques. Les teneurs en métaux sont comparées à réglementation UE qui définit la concentration maximale autorisée pour 4 éléments trace (Pb, Cd, Hg, Sn) dans les légumes destinés à la consommation humaine (Commission regulation (EC))

<sup>214</sup> [ACL30] Le Guern C., Jean-Soro L., **Béchet B.**, Lebeau T., Bouquet D. (2018) Management Initiatives in Support of the Soil Quality of Urban Allotment Gardens: Examples from Nantes (France), *Land degradation and development*, First published: 09 August 2018, doi.10.1002/ldr.3123

No 1881/2006, European Commission 2006). L'ARS a défini les seuils limites en plomb et arsenic par rapport au fond géochimique local (i.e. 100 mg.kg<sup>-1</sup> et 50 mg.kg<sup>-1</sup> pour Pb et As) ;

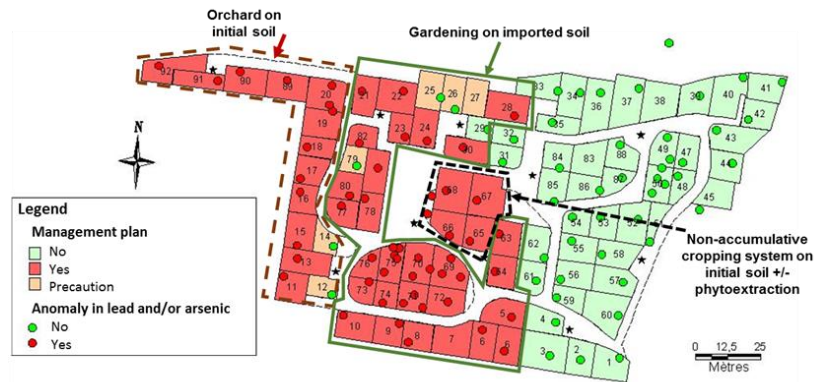
- 3) mise en œuvre de solutions de gestion: si un risque sanitaire est identifié, un plan conjoint de gestion du sol est mis en place avec les différents acteurs (ville, administration, jardiniers, et scientifiques) par des réunions publiques, techniques et de visites de terrain. Les différents scénarios sont discutés en terme de coûts –bénéfices.

Selon la spécificité de chaque site (c'est-à-dire la répartition des polluants des sols, les hétérogénéités, l'origine, le transfert aux légumes) ainsi que le niveau de sensibilité exprimé par les jardiniers, la ville et l'administration, soit une seule option, soit un ensemble d'options de gestion ont été mis en place pour chaque jardin. Ces options comprenaient le remplacement du sol, la conservation ou la restauration à l'aide de techniques classiques ou alternatives (verger, plantes ornementales, phytoremédiation).



**Figure 73** Schéma méthodologique appliqué pour gérer les cas de contamination des sols des jardins associatifs nantais

La **Figure 74** présente le plan de gestion des sols des parcelles mis en place au jardin des Eglantiers, face à une contamination d'origine géogénique et donc face au côté inopérant d'une excavation.



**Figure 74** Carte de gestion différenciée des sols du jardin associatif des Eglantiers. Les seuils de maintien de l'arrêté préfectoral de culture de certains légumes sont de 50 mg/kg de sol pour l'arsenic et de 100 mg/kg de sol pour le plomb. La parcelle expérimentale permet à l'université de Nantes en collaboration avec l'Ifsttar LEE et le BRGM de mener une expérimentation participative de culture de légumes non accumulateurs de plomb et de plantes dépolluantes

### Participation à l'Action COST « Urban allotment garden in Europe » TU 1201 (2014- 2016)

J'ai candidaté en 2013 auprès du PCN français pour participer à l'action COST 1201 ciblée sur les jardins associatifs et ainsi valoriser les travaux de l'équipe nantaise et me mettre en réseau au niveau européen sur cette thématique.

Un travail important de mise en commun d'expériences sur les jardins associatifs a été réalisé lors de l'action COST « [UAG in Europe](#) ». J'ai contribué aux travaux du groupe de travail 'Ecology' de l'action. Cette activité a donné lieu à plusieurs productions : 1 article de rang A sur l'hétérogénéité des sols de jardins européens [ACL26], une contribution dans trois chapitres d'un ouvrage collectif [OS8], la production d'une série de fiches à destination des jardiniers et décideurs (création d'une fiche « Qu'est-ce qu'un endroit idéal d'un point de vue environnemental ? » et participation à deux autres (cf site Web de l'action COST).

J'ai aussi accueilli un étudiant portugais en master 2 pendant 15 jours en juillet 2016 (Short terme Scientific Mission) [réf]. Grâce au réseau créé, j'ai pu intégrer, ainsi que ma collègue Liliane Jean Soro, le consortium du projet Few Meter sur le métabolisme des jardins associatifs (AAP SUGI Belmont forum-JPI Europe Le projet a démarré en juin 2018.

### L'Atelier 'Ville de Nantes' du projet JASSUR le 6 juin 2015

J'ai organisé, en juin 2015, en collaboration avec la Ville de Nantes et l'Association des Jardiniers des Eglantiers, avec le soutien de l'équipe projet JassurIRSTV une journée « Grand public » sur les jardins associatifs urbains intitulé « Cultivez sur sol urbain » (**Figure 75**).

Cette manifestation faisait partie intégrante des ateliers de rencontre entre chercheurs, responsables techniques des villes et jardiniers, prévus dans le projet Jassur. Elle a été rattachée à la manifestation nationale annuelle "Rendez-vous au jardin" et s'est déroulée sur le site du jardin des Eglantiers,



exceptionnellement ouvert au grand public. Après une conférence introductive sur les sols urbains de C. Schwartz (Université de Lorraine, coordonnateur du projet avec JN Consalès), en présence d'une cinquantaine de personnes le matin, des jardiniers mais aussi des citoyens attentifs à la qualité de leur environnement sont venus discuter et expérimenter sur les ateliers pédagogiques que nous avons prévu l'après-midi (vers de terre, texture du sol, qualité du sol, plantes au jardin, biodiversité, rempotage pour les plus petits).

**Figure 75** Affiche de la manifestation au jardin des Eglantiers le 6 juin 2015 préparée par la Ville de Nantes

Pour la Ville de Nantes, cette journée était l'occasion d'inaugurer, en présence des élus, le Jardin Renouvelé des Eglantiers suite à des travaux de réhabilitation des sols consécutifs au diagnostic de qualité que nous avons effectué. Un reportage a été réalisé par Télénantes à cette occasion, complété par une interview plateau de Thierry Lebeau, professeur à l'Université de Nantes, qui mène une expérimentation de phytoremédiation sur le jardin (initié dans Jassur et qui se poursuit dans le cadre de Pollusols et de FewMeter).

## Conclusions et perspectives

Ces travaux sur les jardins associatifs ont été très riches de plusieurs points de vue :

- 1) du point de vue de la recherche : de l'amont à l'aval (opérationnel) - du développement et de la validation de la technique de mesure en PXRF jusqu'à la mise en place des solutions et l'observation de leur évolution en passant par les réunions publiques ; des questions restent en suspens comme l'origine de la contamination au plomb dans certains jardins ;
- 2) du point de vue recherche interdisciplinaire en développant des regards croisés entre sciences du sol et sciences économiques (AOI Pollusols avec le GRANEM Angers), sciences du sol et sociologie (enquête de M. Canavese, AgroParisTech E. Rémy) ;
- 3) du point de vue de la gouvernance en observant et en participant à la mise en place d'un système tripartite face aux cas de pollution des sols, les élus étant très actifs et très ouverts pour arriver à une solution ;
- 4) du point de vue humain en participant à la vie du jardin des Eglantiers et en échangeant sur les ressentis mais aussi les pratiques des jardiniers.

L'équipe de l'IRSTV est toujours très présente sur le jardin des Eglantiers sur lequel une convention lie la Ville, l'Université et l'IRSTV pour l'exploitation d'une parcelle à des fins d'expérimentation en phytoremédiation. Ce jardin est devenu un 'living lab' pour le groupe 'sols urbains' car i) de l'expérimentation y est menée, ii) c'est un jardin vitrine sur lesquels nous emmenons les étudiants et des visiteurs scientifiques et iii) nous sommes locataire d'une parcelle et à ce titre participons à la vie du jardin (ex. chasse aux œufs à Pâques).

L'IRSTV est maintenant plus largement impliqué sur la thématique de l'agriculture urbaine, en accompagnement de la création de fermes urbaines dans un quartier nantais en rénovation et par la participation au projet européen FewMeter. Le projet FEW-meter vise au développement de « an integrative model to measure and improve urban agriculture towards circular urban metabolism ». Nous sommes 3 chercheurs IRSTV impliqués avec des terrains d'expérimentation. Il s'agit pour nous, sur des cas concrets de jardins nantais d'élaborer une méthodologie et un outil d'évaluation de flux d'eau et de matière entrant/sortant des jardins urbains.

## **Expertise Scientifique Collective (ESCO) sur l'artificialisation des sols (2016-2017)**

L'INRA et l'IFSTTAR ont été missionnés fin 2015 par la Ministre de l'Ecologie pour réaliser une ESCO sur l'artificialisation des sols liée à l'urbanisation et aux activités humaines, tant à l'intérieur même des zones déjà urbanisées que sur des territoires non urbanisés, pour recueillir des éléments scientifiques sur la question très sensible de la disparition de terres agricoles en périphérie des villes. J'ai été désignée à l'IFSTTAR avec Anne Ruas (COSYS Ifsttar) comme pilotes de l'ESCO côté Ifsttar et nous avons travaillé avec un pilote INRA Yves Le Bissonais (DR INRA Montpellier), avec l'aide d'une chef de projet (Maylis Desrousseaux juriste) pour mener à bien cette mission qui a consisté à définir et organiser un travail d'état de l'art de 55 experts de différentes thématiques. Nous avons présenté les résultats de l'ESCO lors d'une journée de restitution qui a eu lieu le 8 décembre 2017 à Paris.

Un rapport complet de 663 pages a été produit. En tant que pilotes nous avons eu en charge une grande partie du rapport de synthèse de 80 pages, ainsi que d'un document synthétique de 8 pages. J'ai présenté l'ESCO dans une conférence internationale<sup>215</sup> et lors d'une journée scientifique et technique nationale organisé par le GIS « Changement d'affectation des sols ». Les résultats de cette expertise étaient très attendus dans le contexte actuel des grandes opérations d'aménagement au niveau national : nouvel aéroport de Nantes (abandonné depuis décembre 2017), Grand Paris, Plaine Couronne....

---

<sup>215</sup> [COM29] **Bechet B.**, Ruas A., Le Bissonais Y., Desrousseaux M., Marty P, Schmitt B. , Delolme C., Cornu S. , Keller C. Schwartz C., Beaudet-Vidal L. (2017) Spatial-temporal changes of urban and peri-urban soil land-use – A state-of-the-art on measurement, drivers and effects of soil artificialisation, SUITMA 9 Congress, Moscou, May 20th-25th

Nous assurons depuis décembre dernier une valorisation de ce travail dans des instances nationales (Y. Le Bissonnais est intervenu devant l'assemblée nationale en février 2018) ou des comités (intervention personnelle devant le conseil scientifique de l'Agence de l'Eau Seine Normandie le 13 mars 2018, intervention devant une association de défense de l'environnement sur Brest en septembre 2018, intervention devant le Conseil de l'Economie Verte instance nationale octobre 2018), ainsi que la communication Grand Public

## **Prise en compte de la multifonctionnalité des sols dans les solutions fondées sur la nature (NBS) et dans les documents d'urbanisme (perspective de recherche 1)**

Comme énoncé dans la partie introductive du chapitre 4, le sol doit être pris en compte dans les opérations de réhabilitation ou d'aménagement en tant que composante d'un écosystème urbain qu'il convient de mieux caractériser et de préserver. Les questions de recherche sont nombreuses pour répondre à cette exigence gouvernée par l'urgence climatique. Ma participation à l'ESCO a aussi motivé le choix d'apporter une contribution à cet enjeu, en choisissant de répondre aux questions suivantes assez génériques:

- 1) Quels sont les indicateurs sol (et éventuellement croisés avec d'autres compartiments si nécessaire) de qualité chimique des environnements urbains ?
- 2) Quels indicateurs pour l'évaluation ante/post des NBS ?
- 3) Comment prendre en compte des fonctions des sols en aménagement ?

### **Qualité chimique des sols urbains, indicateurs pour l'évaluation ante/post des NBS et prise en compte des fonctions des sols en aménagement**

#### Acquisition et bancarisation de données de qualité des sols et des eaux souterraines à l'échelle du bassin versant urbain pour l'observation à long terme des environnements urbains

Dans le cadre de l'ONEVU, les équipes de l'IRSTV sont engagés dans une démarche de bancarisation des données environnementales collectées au cours de leurs projets (base de données Brigadoon gérée par le LEE sous Wiki). C'est le cas des données de plusieurs sites évoqués dans ce document : bassin de Cheviré, ancienne décharge de la Prairie de Mauves, jardin des Eglantiers. Les données de qualité des sols acquises dans le cadre des nouveaux projets démarrés depuis fin 2017 (MUSE, URBINAT, FewMeter) seront elles aussi capitalisées dans Brigadoon. Elles contribuent ainsi à enrichir la base de données sur les sols pour la Ville de Nantes. La collecte de données sur les eaux souterraines de la Prairie de Mauves se poursuit jusque la fin du projet Pollusols. Il faudra ensuite trouver un autre financement.

#### Indicateurs ante/post des NBS

Que le sol soit envisagé pour un usage 'espace vert récréatif ou non' ou un usage 'productif', sa qualité agronomique et sa potentielle contamination sont questionnées lorsque l'on veut optimiser le développement des 'solutions fondées sur la nature' pour l'amélioration du cadre de vie. C'est sur le volet 'pollution des sols' et 'salinité des sols' que j'interviens dans le projet H2020 Nature4Cities 'Nature Based Solutions (NBS) for re-naturing cities: knowledge diffusion and decision support platform through new collaborative models'. Il s'agit de proposer des indicateurs simples qui seront intégrés dans une boîte à

outils dédiée à l'évaluation de NBS. L'outil, et donc les indicateurs proposés sera testé sur des cas d'études seront proposés : une opportunité d'évaluer la pertinence d'indicateurs simplifiés.

Cette question de l'évaluation des NBS est aussi au cœur d'un autre projet européen H2020 d'envergure qui a démarré en juin 2018 et dans lequel le CNRS-IRSTV est partenaire. Il s'agit du projet URBINAT « Healthy corridors as drivers of social housing neighbourhoods for the co-creation of social, environmental and marketable NBS » coordonné par le Centre d'Etudes Sociales de l'Université de Coimbra. L'IRSTV intervient en partenaire de Nantes Métropole sur une méthodologie de diagnostic et d'évaluation ante/post de la mise en œuvre de NBS sur un quartier nantais en renouvellement (Quartier Nord). Ce projet va nous permettre d'acquérir de nouvelles données sur la qualité des eaux et des sols sur un quartier de la Ville de Nantes où se situe le jardin des Eglantiers 'jardin vitrine' de la démarche de gestion différenciée menée avec la Ville de Nantes, de tester les indicateurs développés dans le projet N4C et de mettre en œuvre le sujet 2 explicité par la suite.

Onze personnes de l'IRSTV sont impliquées dans le projet Urbinat dont j'assume la responsabilité scientifique pour l'IRSTV.

#### Développer une méthodologie en direction des opérationnels

Préserver et gérer les fonctions et services des sols urbains et péri-urbains est un enjeu fort au niveau national<sup>216</sup>.

L'expertise collective sur l'artificialisation des sols de 2015 à 2017, à laquelle j'ai contribué en tant que co-pilote y participe.

Deux projets récents font référence actuellement sur cette question: le projet [Uqualisol-ZU](#) (2009-2011) et le projet [DESTISOL](#) (2014-2017). Des méthodologies et outils pour relier paramètres et fonctions du sol y sont proposés mais leur mise en œuvre et leur validation doivent encore être développées avant d'envisager un transfert vers les 'opérationnels'.

C'est dans cette optique que le projet MUSE (2018-2020)- Intégrer la multifonctionnalité des sols dans l'élaboration des documents d'urbanisme – piloté par le CEREMA a été proposé par un consortium intégrant l'IRSTV <sup>217</sup> et accepté par l'ADEME pour financement sur l'APR MODEVAL-URBA de 2017 (Modélisation et évaluation au service des acteurs des territoires et des villes de demain). Cet APR porte sur l'évaluation, la modélisation et la prospective urbaine et le projet a été déposé dans l'axe thématique « Evaluer les impacts des formes urbaines sur la ressource foncière et optimiser les services rendus par le sol ».

---

<sup>216</sup> Bellec P., Lavarde P., Lefebvre L. et Madignier M.-L., 2015. Propositions pour un cadre national de gestion durable des sols , rapport du GGEDD, CGAAER

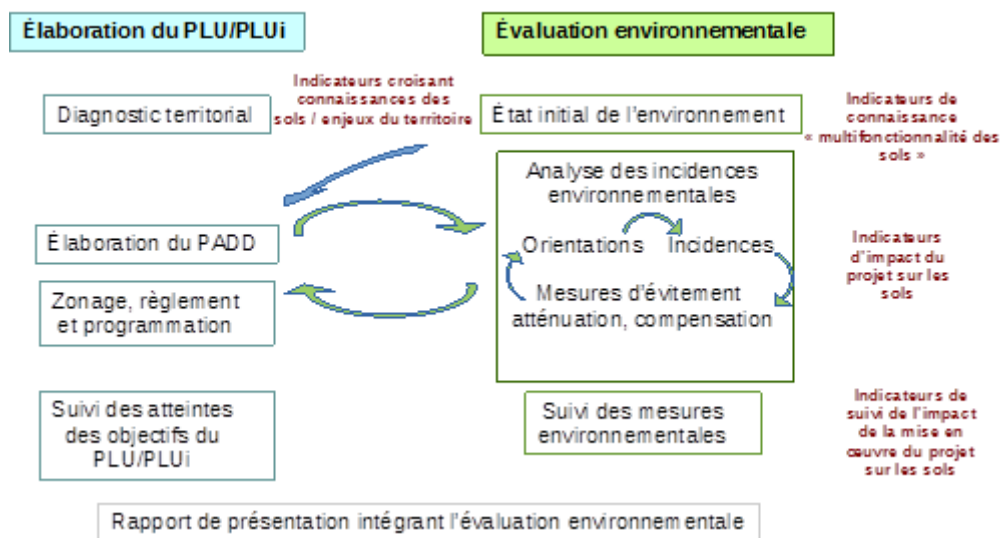
<sup>217</sup> Consortium MUSE : CEREMA pilote, BRGM, Chambre d'Agriculture de l'Indre, IRSTV (T. Lebeau, B. Béchet, 1 CDD), Univ. Aix Marseille



Sur la base d'une approche intégrée du projet de territoire, une politique de gestion durable des sols pourrait croiser l'évaluation de l'aptitude des sols à assurer de multiples fonctions et les enjeux spécifiques aux territoires. Ce croisement peut notamment concerner la prévention et la limitation des inondations, la limitation des îlots de chaleur urbain, le développement de la trame verte et bleue, le potentiel de développement de l'agriculture urbaine, l'adaptation aux changements (climatique et sociaux), le dynamisme du secteur agricole, la pression démographique, ... Les objectifs principaux du projet MUSE sont de :

- i) proposer un outil et une méthodologie pour la prise en compte de la qualité des sols et de la multifonctionnalité des sols (et des services associés) au sein des documents d'urbanisme, l'échelle retenue étant le plan local d'urbanisme intercommunal -PLUi) et
- ii) de tester cet outil en lien avec des collectivités partenaires (dont Nantes Métropole)..

La méthodologie produite permettra *d'accompagner les collectivités* dans les phases de diagnostic de territoire, de construction du projet d'aménagement (incluant éventuellement la mise en place de mesures d'évitement, de réduction et/ou compensatoires) et, si le document d'urbanisme y est soumis, tout au long de la démarche d'évaluation environnementale du projet (**Figure 76**). Il permettra aussi de suivre les effets, à travers des indicateurs. Une des finalités du projet est de protéger de l'urbanisation les sols en capacité de rendre le plus grand nombre de services.



**Figure 76** Schéma de la démarche d'évaluation environnementale adaptée aux enjeux « sols » dans le projet MUSE

Ma contribution concerne la qualité des sols et la mise en œuvre du projet sur Nantes Métropole. Je suis responsable de la partie 'Etat de l'art' et responsable projet au niveau de l'IRSTV. Un contrat de 1 an est prévu sur le projet pour un ingénieur au profil multidisciplinaire.

## **Croiser indicateurs de qualité et de productivité des sols et appréhension subjective du sol pour des aménagements plus durables (perspective de recherche 2).**

Ce sujet est prospectif et interroge l'usage des espaces végétalisés et la durabilité de cet usage, au regard de l'appréhension que les habitants ont du sol qui portera la végétation. Une application proposée concerne les jardins associatifs. Cette question émane des constats que j'ai pu faire (et des interrogations liées) lors de nos travaux sur les jardins associatifs nantais et dans le cadre de visites de jardins en Europe (action COST).

En effet dans les aménagements urbains, la proposition d'implantation d'espaces verts ou plus globalement de 'solutions fondées sur la nature' interroge, non seulement, la qualité des sols qui vont être le support de l'aménagement, mais aussi la durabilité de cet aménagement dans ses fonctions prévues. Dans certains cas, comme pour les jardins associatifs, les habitants doivent être acteurs de la durabilité du jardin, ce qui passe par une appropriation de fond. Les services en charge des projets d'aménagement consultent bien sûr les habitants sur leur souhait par rapport à ce type d'aménagement mais le retour de certaines expériences en France et en Europe montre que l'appropriation n'est pas toujours un succès. Cela se traduit par l'abandon du jardin dans des délais courts (2-3 ans).

Ce qui m'amène, à l'image de ce qui a été fait pour des terres agricoles<sup>218</sup>, à m'interroger sur la perception des sols et de leurs fonctions par les habitants et comment cette appréhension subjective peut contribuer à l'appropriation d'espaces productifs tels que les jardins dans les aménagements urbains.

Une autre interrogation porte sur les indicateurs que les habitants utilisent de façon raisonnée ou intuitive pour évaluer la qualité ou une fonction des sols. A titre d'illustration je rapporte ici une anecdote sur un jardin : un jardinier me disant qu'il ne souhaite pas avoir une parcelle dans un secteur du jardin car la terre n'était pas bonne, secteur soit dit en passant où les jardiniers étaient issus du magreb. Cette appréciation pouvait tout simplement tenir au fait que la personne avait observé que la pousse des légumes n'était pas très bonne mais c'est peu probable que son appréciation ne portait que sur un critère de production. Il me semble donc intéressant de pouvoir interroger ce savoir des jardiniers pour deux raisons :

- conforter les indicateurs de qualité du sol des jardiniers avec ceux utilisés en science du sol pour caractériser l'état du sol ;
- évaluer la possibilité de développer un ensemble d'indicateurs simples pour pouvoir enrichir notre base de données sur les sols, en parallèle de la collecte des propriétés physiques, chimiques et biologiques des sols.

---

<sup>218</sup> Compagnone C., Sigwalt A. et Pribetich J. (2013) Les sols dans la tête : Pratiques et conceptions des sols d'agriculteurs vendéens, *Etude et Gestion des Sols*, Volume 20, 2, 81 à 95

Le développement de ce sujet vise pour moi à aller vers plus d'interdisciplinarité sciences du sol/ SHS en recherchant une collaboration auprès de chercheurs rompus aux techniques d'enquêtes, après une définition du cadre théorique et du type de questionnement.

Les enquêtes à mener pourront s'intégrer dans les projets Urbinat et FewMeter. Une demande de financement sera effectuée auprès du projet fédérateur Ifsttar « Ville 2050 » ou de l'I Site Future. Une collaboration avec Fabrice Rodriguez du LEE est à l'étude pour pouvoir développer conjointement une approche couplée sol – eau plus judicieuse dans le contexte de NBS végétales.

## CONCLUSION GENERALE

### Résultats scientifiques et perspectives

Ce manuscrit comporte dans les chapitres 2 et 3 les résultats principaux que j'ai obtenus, au sein du LEE, depuis 2003 en **assainissement pluvial sur les eaux de ruissellement et les sédiments** et sur la compréhension des processus de transfert des polluants métalliques, avec notamment une mise en exergue du transfert colloïdal. La présence des métaux dans la fraction colloïdale reste globalement faible par rapport à l'ensemble mais présente une forte variabilité temporelle. Cette fraction demande à être mieux caractérisée par des méthodes d'observation et de microanalyse car elle surprend par la diversité des agrégats formés. Le lien avec les performances épuratoires de certains ouvrages d'assainissement mérite aussi d'être établi.

Ce phénomène d'agrégat fort se retrouve dans les sédiments et il impacte fortement les possibilités de traitement des matériaux. En terme de mobilité des métaux, les résultats tendent à montrer qu'une vigilance doit être établie par rapport à des éléments tels que le zinc ou le cuivre dont la spéciation dans les eaux interstitielles est elle aussi très variable, soumise à des paramètres de salinité des eaux ou de séchage.

Sur la base des résultats acquis sur la caractérisation et le transfert de polluants (en particulier les transferts associés colloïdes-micropolluants), j'oriente dorénavant ma recherche vers l'étude du transfert de **nanoparticules en gestion des eaux pluviales et sur les transferts en milieu poreux hétérogène** (thèse de J. Raimbault). De plus, les travaux menés sur la prairie de Mauves, orienteront vraisemblablement une partie de mes travaux dans le futur vers l'étude du transfert de **résidus médicamenteux** en collaboration avec le BRGM.

Le champ de la modélisation des transferts réactifs des systèmes complexes des bassins reste très ouvert, les tentatives se heurtant à la double complexité de la spéciation des métaux dans les eaux et de la composition du sédiment. Toutefois les derniers travaux du LEHNA (thèse de C. Drapeau) sur la mobilisation des métaux (état statique) valident que les outils disponibles utilisés avec une méthodologie pas à pas permettent d'avancer dans ce domaine, même si la complexité ne peut être évitée. On pouvait espérer qu'une approche par mécanismes prépondérants soit pertinente, mais les résultats montrent les limites trop fortes de cette approche.

Sur les phénomènes de transfert, à l'image de la publication de synthèse du réseau URBIS sur 20 ans de données sur les sédiments de bassins (2014), une synthèse sur les processus de transfert des métaux, tant dissous que particulaire, serait nécessaire pour mener une analyse au regard des données sur les eaux (source et eaux interstitielles) et les extractions en statique dont nous disposons au sein du réseau. Cette synthèse pourrait concerner plus spécifiquement le cuivre et le zinc qui sont les éléments les plus présents et les plus mobilisés en terme de flux. Cela pourrait être un point de départ intéressant pour aller sur la

formulation d'un modèle de transfert entre l'eau, le sédiment et le sol sous-jacent. Le sujet de thèse que j'ai proposé avec L. Jean Soro et T. Lenoir sur le transfert du cuivre dans les ouvrages d'assainissement va nous permettre de progresser sur la connaissance de la spéciation du cuivre et de sa mobilisation.

En ce qui concerne les **sols urbains**, les travaux que nous avons menés sur les sols de jardins ont permis d'apporter de nouvelles données sur la qualité des sols mais aussi de les analyser au regard des pressions anthropiques et/ou de l'influence du contexte géochimique. Nous avons publié une méthodologie de gestion des sols de jardins en cas de contamination qui est innovante. En effet il ne s'agit pas seulement de traiter un problème de risque sanitaire lié à l'ingestion de légumes contaminés mais bien de faire reposer le choix de la gestion sur un trinôme ville-jardinier-chercheur après une phase d'appropriation par les techniciens et les jardiniers de l'origine de la contamination, dans une relation de confiance.

Ma co-animation d'une opération de recherche de l'IFSTTAR avec Philippe Branchu du CEREMA a conduit ensuite à une collaboration dans le projet JASSUR et maintenant dans le projet MUSE<sup>219</sup> financé par l'ADEME. Les résultats de ce projet sont très attendus par la communauté des acteurs de l'aménagement des territoires.

En terme de perspective très concrète, une demande de thèse sur le devenir du cuivre dans les ouvrages d'assainissement pluvial et sa modélisation a été formulée auprès de l'Ifsttar. Cet élément chimique constitue le fil rouge de mes activités dans le projet Pollusols. C'est un oligo-élément mais son effet négatif sur la biodiversité des sols à de trop fortes concentrations est avéré. Il est donc important de pouvoir mieux quantifier les flux de cuivre issu de l'assainissement pluvial et de définir sa spéciation pour comprendre sa mobilité. D'autres questions restent en suspens : la méthode isotopique pourrait-elle nous aider à lever les incertitudes sur l'origine de la contamination diffuse dans certains jardins ? Certains éléments chimiques sont très présents dans les sédiments (baryum, potassium, lithium, arsenic). Quelles sont les sources ? Leur spéciation physique était-elle constante dans l'ouvrage ?

## **Structuration de la recherche sur l'environnement urbain**

Les activités sur la pollution des sols urbains et les transferts de polluants sont maintenant solidement ancrées localement au sein de l'IRSTV et de l'OSUNA. J'ai intégré ces dernières années des consortiums de recherche nationaux sur des sujets innovants comme les jardins associatifs et la reconstruction de sols. Ma participation à une **action COST sur les jardins associatifs** en 2015-2016 a permis d'initier des collaborations fructueuses (publication, participation en 2017 au montage d'un projet lauréat à un appel à projet SUGI Belmont Forum Urban Europe (projet FewMeter)). D'une façon générale, mes activités, axées sur la Ville, s'inscrivent pleinement non seulement dans le cadre des travaux menés au LEE mais aussi dans le cadre de l'I-Site Future.

---

<sup>219</sup> MUSE ADEME 2018-2020 'Intégrer la multifonctionnalité des sols dans l'élaboration des documents d'urbanisme'

J'ai contribué largement à la structuration de l'**ERC VESPA (Eau Sol Plante Atmosphère)** entre le LEE et EPHor (ACO). Une deuxième **ERC** est en cours de préparation avec le LEESU (Ecole des Ponts et Chaussées, Marne la Vallée) **sur la gestion de l'eau urbaine** dans le contexte de la création de l'université nationale sur la Ville (I Site [FUTURE](#)) dont l'IFSTTAR est un partenaire majeur. Là-encore, des actions sur le transfert de polluants dans les ouvrages d'assainissement seront prévues (collaboration avec Marie Christine Gromaire).

Par rapport à l'I-Site FUTURE, un appel à projets recherche a été lancé en juillet 2017. J'ai proposé une idée de projet basée sur l'expérience du LEE au sein de l'IRSTV pour un **projet Tremplin** (financement le plus important) intitulé RECITE - Observation de l'environnement urbain et RElation CIToyen-Environnement au travers des perceptions et des pratiques. Cette idée a été retenue mais un rapprochement avec deux autres porteurs d'idée a été demandé et a abouti au dépôt d'un projet intitulé **WISE CITIES** - Water-energy-soil Interactions for a future Sustainable Environment in Cities. Ce projet est en cours d'évaluation, je fais partie du comité de pilotage et je suis responsable de la tâche sur le déploiement de scénarios. J'ai mobilisé sur ce projet pour l'Ifsttar quatre chercheurs du LEE, un chercheur du département AME et à l'IRSTV deux chercheurs.

Au sein de l'IFSTTAR, je travaille avec K. Chancibault et V. Ruban à faire le lien avec le **projet fédérateur 'Ville 2050' de l'IFSTTAR**, outil d'animation mis en place en 2016 qui vise à fédérer des équipes de plusieurs départements sur des thématiques transversales et pluridisciplinaires. Nous avons toutes les trois participé activement en 2016, à la réflexion sur ce projet, dans lequel les activités de notre équipe trouvent toute leur place.

Enfin j'ai souligné, dans le chapitre 1, l'importance pour l'OSUNA et l'IRSTV, de la réussite du projet de SNO Observil. L'effort porté sur le SNO ne doit pas nous faire oublier que nous avons une autre carte à jouer sur le terrain, celle qui nous met en lien avec les citoyens, avec l'humain. C'est ce que j'ai pu expérimenter, lors du projet JASSUR, avec l'association du jardin des Eglantiers qui a été partie prenante de toutes nos actions dans ce projet dans lequel nous avons aussi pu mener un premier travail croisé entre SHS et sciences du sol. Ce qu'il faut retenir de cette expérience, c'est que le trinôme « institutionnel, citoyen, chercheur » doit se mettre en place pour assurer la réussite des actions et leur pérennité. J'ai pris l'habitude de dire que « Le jardin des Eglantiers » est devenu le Living lab de l'IRSTV. Il faut toutefois considérer que les actions sur le long terme (inscription du jardin dans le SNO et dans le réseau Saphir), demandent de la persévérance, de la disponibilité et mettent à l'épreuve la confiance entre les acteurs. Il nous faut donc garder beaucoup de modestie et de prudence....