

République Algérienne Démocratique et Populaire

Ministère de l'enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique



مدرسة الوطنية المتعددة التقنيات  
Ecole Nationale Polytechnique

Ecole Nationale Polytechnique  
Département de Génie de l'Environnement  
Laboratoire des Sciences et Techniques de l'Environnement

Ecole Doctorale Sciences de l'Eau et Développement Durable  
Option : Sciences et Techniques de l'Environnement

# Mémoire de Magister en Génie de l'Environnement

Présenté par :

**TELMAT Zoulikha**

Ingénieur d'état en Génie de l'Environnement de l'ENP

## Mise au point d'un dispositif pour l'étude du transfert de la métribuzine au travers d'une colonne de sol

Soutenu publiquement le **30 / 06 / 2012** devant le jury composé de :

<b>Présidente :</b>	Mme HELLAL Amina	Professeur	ENP
<b>Rapporteur :</b>	Mme MOUSSAOUI Khadija M.	Professeur	ENP
<b>Examineurs :</b>	Mlle ARRAR Jazia	Maître de Conférences A	ENP
	Mlle BENMAMAR Saâdia	Maître de Conférences A	ENP
	M. CHERGUI Abdelmalek	Maître de Conférences A	ENP

**ENP 2012**

## الملخص:

الهدف من هذا العمل هو انشاء جهاز تجريبي لدراسة تنقل ملوثات عن طريق التقطير بالنفاد الى الاسفل من خلال تربة مصاعة داخل عمود تحتوي التربة المدروسة على 40% من الصلصال.

بعد دراسة عدة مراجع و اجراء عدة تجارب اولية تم اختيار و فحص جهازين ليتم اختيار جهاز واحد. في مرحلة اولى تم اختيار و حقن ثلاثة كواشف في عمود تربة رطب و موازن بمحلول كلوريد الكلسيوم ( $CaCl_2 \cdot 10^{-2} M$ ) لدراسة الانسياب و المعالم الهيدروميكانيكية للتربة كاشف ملون (ازرق الكماسى) لإظهار التدفقات المفضلة و كاشفين انيونيين ( $CaCl_2, KBr$ ) تم مقارنة منحنيات استرجاع الكواشف المحقونة بعد تحليلها عن طريق قطب كهربائى مختص بشوارد البروم  $Br^-$  و قطب التوصيل الكهربائى لتحليل شوارد الكلور و البروم ( $Cl^-, Br^-$ ) و المعايرة بالتحليل الكيماوي للكلور ( $Cl^-$ ). اظهرت النتائج ان احسن كاشف لدراسة هذه التربة كان شوارد البروم  $Br^-$ .

في الاخير تمت دراسة تطبيقية بحقن ملوث (متريبين) على عمود التربة لتقييم مخاطر تلوث المياه الجوفية.

**الكلمات المفاتيح** عمود ; تربة ; تقطير ; كاشف ; متريبين

## Résumé

Le présent travail a pour objectif la mise au point d'un dispositif d'étude, à l'échelle laboratoire, du transport de polluants par percolation, en mode descendant, à travers une colonne de sol remanié. Le sol étudié est un sol limono-argileux contenant 40% d'argile.

Après une synthèse des différents dispositifs, multiples et variés, utilisés dans la littérature et après différents essais préliminaires, deux dispositifs expérimentaux ont été mis au point et testés. Un seul de ces dispositifs a été retenu pour la suite du travail. Tout d'abord, trois traceurs ont été choisis et injectés dans des colonnes de sol humidifiées et conditionnées avec une solution de  $CaCl_2 \cdot 10^{-2} M$ , pour l'étude de l'écoulement et des paramètres hydrodynamiques du sol : un traceur coloré (Bleu de Coomassie) pour visualiser les flux préférentiels et deux traceurs anioniques ( $CaCl_2$  et  $KBr$ ). Leurs courbes d'élution ont été comparées. Les éluats ont été analysés par électrode spécifique aux bromures (pour  $Br^-$ ), par mesure de la conductivité électrique (pour  $Br^-$  et  $Cl^-$ ) et par titrage volumétrique (pour  $Cl^-$ ). Les résultats montrent que le traçage avec les ions  $Br^-$  est le plus approprié.

Enfin, une application au transport d'une solution d'un polluant, la métribuzine, a été réalisée pour évaluer son taux de rétention dans le sol et les risques de pollution des nappes phréatiques sous-jacentes.

**Mots clés :** Colonne ; sol ; percolation; traceurs ; métribuzine.

## Abstract

This work is aimed at the development of a device, at the laboratory scale, for the study of the transportation of pollutants by percolation, in the down flow mode, through a column of disturbed soil. The studied soil is a silty-clay soil containing 40% clay.

After a synthesis of different devices, multiple and varied, used in the literature and after various preliminary tests, two experimental devices were developed and tested. One of these devices was chosen for the rest of the study. First, three tracers were chosen and injected into columns of humidified soil conditioned with a  $CaCl_2 \cdot 10^{-2} M$  solution, for the study of the flow and the soil hydrodynamic parameters: a coloured tracer (Blue Brilliant of Coomassie) to view the preferential flows and two anionic tracers ( $CaCl_2$  and  $KBr$ ). Their breakthrough curves were compared. The eluates were analyzed by a bromide specific electrode (for  $Br^-$ ), by measurement of the electrical conductivity (for  $Br^-$  and  $Cl^-$ ) and by volumetric titration (for  $Cl^-$ ). The results show that the tracing with  $Br^-$  ions is the most appropriate.

Finally, an application to the transportation of a solution of a pollutant, metribuzin, was conducted to assess the rate of retention in the soil and the underlying groundwater pollution risks.

**Keywords:** Column ; soil ; percolation ; tracers ; metribuzin.

# Dédicaces

*Je dédie ce modeste travail*

*A ma mère*

*A mon père*

*A mes sœurs et frères*

*Je le dédie aussi particulièrement*

*Au professeur K. M. Moussaoui*

*A Samira*

# Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier ma directrice de mémoire, le professeur K.M. MOUSSAOUI, pour son soutien scientifique et moral. Ses conseils et son attitude humaine durant toute la durée du travail m'ont été d'une grande valeur.

Je remercie également Madame A. HELLAL, Professeur à l'Ecole Nationale Polytechnique, d'avoir bien voulu accepter de présider le jury de soutenance.

Ma reconnaissance s'adresse aussi aux membres du jury qui ont accepté d'examiner mon travail et dont les remarques et suggestions contribueront à améliorer la qualité de ce mémoire : Mademoiselle J. ARRAR, Mademoiselle S. BENMAMAR et Monsieur A. CHERGUI, Maîtres de Conférences A à l'Ecole Nationale Polytechnique.

Mes vifs remerciements vont à tous les chercheurs de l'équipe de recherche du laboratoire LSTE : Professeur D. HARIK, Madame Y. TCHOULAK, et plus particulièrement Madame O. HAOUCHINE et Mademoiselle S. BOUTRIA, pour leur soutien et leur aide immenses dont je leur suis grandement reconnaissante.

Je tiens aussi à remercier Monsieur OULD FEROUKH et Monsieur AMAR du département Sciences du Sol de l'INA, Madame DEBYECHE de la faculté de Génie Civil de l'USTHB et Monsieur HADJMILOUD de l'INSID, pour l'aide que j'ai reçue de leur part.

Mes remerciements s'adressent aussi aux enseignants-chercheurs de l'Ecole Doctorale « Sciences de l'Eau et Développement Durable » et du département de Génie de l'Environnement, particulièrement Madame ABDI, Monsieur BOUARAB et Monsieur LOUNICI.

Je remercie aussi toute l'équipe des laboratoires de recherche du département de Génie de l'Environnement, particulièrement Assira, Oumesaad, Dalila, Lila, Bahia, Latifa, Fariza, Hassiba, Bahia, pour leur soutien.

Je n'oublierai pas enfin de remercier également Djamila et Hamida.

# SOMMAIRE

	<b>Pages</b>
Dédicaces	i
Remerciements	ii
Liste des figures	vii
Liste des tableaux	ix
Liste des abréviations	x
<b>INTRODUCTION</b>	<b>1</b>
<b>A. PARTIE THEORIQUE</b>	<b>3</b>
<b><u>Chapitre I : Sol et hydraulique du sol</u></b>	<b>3</b>
I. Le sol	3
I.1. Eléments constitutifs du sol	3
I.1.1. La phase solide	3
I.1.1.1. La matière minérale du sol	3
I.1.1.2. La matière organique du sol	4
I.1.2. La phase liquide	5
I.1.3. La phase gazeuse	5
I.2. Propriétés physiques du sol	5
I.2.1. La texture du sol (composition granulométrique)	5
I.2.2. La structure du sol	6
I.2.3. La compacité du sol	6
I.2.4. La notion de Volume Elémentaire Représentatif (V.E.R.)	7
I.2.5. La masse volumique apparente ( $\rho_s$ ou $\rho_d$ )	8
I.2.6. La porosité	8
I.3. L'eau du sol	9
I.3.1. Les états de l'eau dans le sol	10
I.3.2. Etat de saturation en eau des sols (sol saturé, sol non saturé)	10
I.3.3. La teneur en eau (ou humidité) du sol	11
I.3.3.1. La teneur en eau volumique ( $\theta$ )	11
I.3.3.2. La teneur en eau massique (W)	11
<b><u>Chapitre II : Transferts d'eau et de solutés dans le sol- Ecoulements</u></b>	<b>12</b>
I. Principe de l'étude	12
I.1. Sol non remanié et sol remanié	12
I.2. Ecoulements d'eau et transport de solutés	12

II. Méthodes d'étude	13
II.1. La méthode en batch (en réacteur discontinu)	13
II.2. La méthode sur colonnes de sol (en réacteur continu)	13
III. Caractéristiques des écoulements dans une colonne de sol	14
III.1. Le volume de pore ( $V_0$ ou $V_p$ )	14
III.2. Vitesse d'écoulement de l'eau dans le sol (Vitesse de Darcy)	14
III.3. Le gradient hydraulique (ou gradient de charge hydraulique) (i)	15
III.4. La loi de Darcy	16
III.5. La perméabilité (k) et la conductivité hydraulique (K) du sol	16
<b><u>Chapitre III</u> : Les études sur colonne de sol et utilisation de traceurs</b>	<b>18</b>
I. Principe de l'étude sur colonne de sol	18
II. Les courbes d'élution et leur analyse	19
II.1. Les courbes d'élution (ou de percée, ou de restitution)	19
II.2. Analyse des courbes d'élution	20
II.2.1. Le bilan de masse	20
II.2.2. Le temps de séjour ( $t_s$ )	21
II.2.3. Le facteur retard (R)	21
III. Utilisation de traceurs de l'écoulement	22
III.1. Intérêt des traceurs	22
III.2. Définition d'un traceur	22
III.3. La notion de flux (ou de chemin) préférentiel	23
III.4. Choix des traceurs	23
III.4.1. Les traceurs colorés (ou colorants)	24
III.4.2. Les traceurs anioniques	24
III.5. Type et durée du traçage	25
IV. Récapitulatif de dispositifs et de protocoles utilisés dans la littérature	26
<b>B. PARTIE EXPERIMENTALE</b>	<b>28</b>
<b><u>Chapitre I</u> : Matériels et méthodes</b>	<b>28</b>
I. Matériels et produits utilisés	28
I.1. Matériels utilisés	28
I.2. Produits chimiques utilisés	28
II. Mise au point du dispositif d'étude	28
II.1. Les colonnes	28
II.1.1. Matériaux des colonnes	28
II.1.2. Dimensions des colonnes	29
II.2. Le sol	29

II.2.1. Prélèvements	29
II.2.2. Traitements préliminaires et préparation	30
II.2.3. Disposition du sol dans les colonnes	30
II.3. Le système d'alimentation	31
II.3.1. Pour le dispositif A	31
II.3.2. Pour le dispositif B	33
III. Méthodes	34
III.1. Préparation des colonnes de sol pour les essais de percolation	34
III.1.1. Préparation du sol	34
III.1.2. Remplissage des colonnes avec le sol	34
III.1.3. Mise en eau (ou humidification) des colonnes de sol	35
III.1.4. Drainage des colonnes de sol	35
III.1.5. Conditionnement des colonnes de sol	35
III.2. Protocole des essais de traçage de l'écoulement	36
III.2.1. Solutions d'alimentation	36
III.2.2. Mesure de la teneur en eau du sol dans les colonnes	36
III.2.3. Principe des expérimentations de percolation	37
III.2.4. Analyse des éluâts récupérés	37
III.2.5. Récapitulatif du protocole expérimental	38
<b><u>Chapitre II : Recherche des conditions expérimentales optimales d'étude-</u></b>	
<b>Résultats</b>	<b>39</b>
I. Essais préliminaires	39
I.1. Dispositif A	39
I.2. Dispositif B	40
II. Essais de traçage de l'écoulement dans le sol	41
<b><u>Chapitre III : Résultats</u></b>	<b>43</b>
I. Conductivité hydraulique et teneur en eau initiale	43
I.1. Conductivité hydraulique	43
I.2. Teneur en eau initiale	43
II. Résultats des essais de traçage de l'écoulement	43
II.1. Essais de traçage au Bleu Brillant de Coomassie avec le dispositif A	43
II.2. Essai de traçage aux ions chlorures	47
II.2.1. Avec le dispositif B	47
II.2.2. Avec le dispositif A	48
II.3. Essais de traçage aux ions bromures sur le dispositif A	50
III. Comparaison des courbes d'éluât en fonction des temps d'éluât	52
IV. Comparaison des analyses des éluâts par conductivité électrique et électrode spécifique	52
V. Essai d'adsorption en batch pour les ions Chlorures et Bromures	54

VI. Résultats de l'étude du transfert de la métribuzine dans la colonne de sol	54
VII. Facteurs de comparaisons entre l'essai à la métribuzine et l'essai 2 aux ions bromures	55
VII.1. Détermination des temps de séjour moyens des solutés utilisés pour les différents essais et du facteur retard de la métribuzine	55
VII.2. Calcul de la masse de métribuzine adsorbée sur le sol	56
<b>CONCLUSION</b>	<b>58</b>
<b>BIBLIOGRAPHIE</b>	<b>60</b>



## LISTE DES FIGURES

	<b>Pages</b>
<b>Figure N° 1 :</b> Représentation conventionnelle (physique) d'un volume de sol	3
<b>Figure N° 2 :</b> Triangle des textures minérales d'après la classification de l'U.S.D.A.	7
<b>Figure N° 3 :</b> Illustration de la notion de V.E.R.	8
<b>Figure N° 4 :</b> Représentation d'un milieu poreux	8
<b>Figure N° 5 :</b> Vitesse réelle et vitesse de Darcy	15
<b>Figure N° 6 :</b> Echantillon de sol soumis à un gradient hydraulique	16
<b>Figure N° 7 :</b> Courbe d'élution résultant d'une injection échelon d'un soluté	19
<b>Figure N° 8 :</b> Principe de calcul de la quantité de soluté adsorbé et/ou désorbé	20
<b>Figure N° 9 :</b> Visualisation du retard sur la courbe de percée	21
<b>Figure N° 10 :</b> Types d'alimentation sur colonne de sol	25
<b>Figure N° 11 :</b> Schéma du dispositif A	32
<b>Figure N° 12 :</b> Photo du dispositif A	32
<b>Figure N° 13 :</b> Schéma du dispositif B	33
<b>Figure N° 14 :</b> Photo du dispositif B	33
<b>Figure N° 15 :</b> Surface de la colonne de sol percolée au Bleu de Coomassie (Vue 1)	44
<b>Figure N° 16 :</b> Surface de la colonne de sol percolée au Bleu de Coomassie (Vue 2)	44
<b>Figure N° 17 :</b> Paroi et intérieur de la colonne de sol percolée au Bleu de Coomassie	45
<b>Figure N° 18 :</b> a/ Paroi et b/ intérieur de la colonne de sol percolée au Bleu de Coomassie	45
<b>Figure N° 19 :</b> Spectre d'absorbance visible du Bleu Brillant de Coomassie	46
<b>Figure N° 20 :</b> Courbe d'étalonnage du Bleu Brillant de Coomassie	46
<b>Figure N° 21 :</b> Courbe de percée du Bleu Brillant de Coomassie lors du traçage sur le dispositif A	46
<b>Figure N° 22 :</b> Courbes d'élution des ions chlorures dosés respectivement par la méthode de Mohr et par mesure de la conductivité électrique, lors du traçage avec le dispositif B (Débit d'alimentation : $0,2 \text{ mL min}^{-1}$ )	48
<b>Figure N° 23 :</b> Courbes d'élution des ions chlorures dosés respectivement par la méthode de Mohr et par mesure de la conductivité électrique, lors du traçage avec le dispositif A	49
<b>Figure N° 24 :</b> Etalonnage de l'électrode spécifique aux ions bromures	50

<b>Figure N° 25:</b> Courbes d'élution des ions bromures dosés respectivement par électrode spécifique aux ions bromures et par mesure de la conductivité électrique, lors du traçage avec le dispositif A	51
<b>Figure N° 26 :</b> Courbes d'élution des essais aux ions Chlorures en fonction du temps d'élution	52
<b>Figure N° 27:</b> Courbes de la concentration relative $C/C_0$ des ions Chlorures obtenues par titrimétrie et par conductivité électrique	53
<b>Figure N° 28:</b> Courbes de la concentration relative $C/C_0$ des ions Bromures obtenues par électrode spécifique en fonction de la conductivité électrique pour l'essai 1	53
<b>Figure N° 29 :</b> Courbes d'élution de la métribuzine à $25 \text{ mg L}^{-1}$ (débit : $0,28 \text{ mL min}^{-1}$ ) et des ions Bromures (débits : $0,25 ; 0,28 \pm 0,03 \text{ mL min}^{-1}$ )- Dispositif A	55

## LISTE DES TABLEAUX

	<b>Pages</b>
<b>Tableau N° 1</b> : Classification granulométrique des sols selon la SISS	6
<b>Tableau N° 2</b> : Valeurs indicatives de la porosité totale pour différents sols meubles	9
<b>Tableau N° 3</b> : Valeurs indicatives de la porosité de drainage pour différents types de sols	9
<b>Tableau N° 4</b> : Ordre de grandeur de la conductivité hydraulique dans divers sols	17
<b>Tableau N° 5</b> : Récapitulatif de quelques dispositifs et de leurs conditions de fonctionnement en mode descendant	27
<b>Tableau N° 6</b> : Caractéristiques physico-chimiques du sol	30
<b>Tableau N° 7</b> : Récapitulatif des essais préliminaires pour la mise au point du protocole des essais de percolation sur le sol étudié (Dispositif A)	40
<b>Tableau N° 8</b> : Conductivité hydraulique (Ks) du sol mesurée à charge constante	43
<b>Tableau N° 9</b> : Teneur en eau massique initiale du sol étudié	43
<b>Tableau N° 10</b> : Paramètres hydrodynamiques du sol lors du traçage aux ions chlorures (Dispositif B)	47
<b>Tableau N° 11</b> : Paramètres hydrodynamiques du sol lors des traçages aux ions chlorures (Dispositif A)	48
<b>Tableau N° 12</b> : Paramètres hydrodynamiques du sol lors des traçages aux ions bromures (Dispositif A)	50
<b>Tableau N° 13</b> : Dosage des ions chlorures et bromures après adsorption en batch sur le sol étudié	54
<b>Tableau N° 14</b> : Paramètres hydrodynamiques du sol lors de l'essai avec la métribuzine à 25 mg L <sup>-1</sup> (Dispositif A)	54
<b>Tableau N° 15</b> : Temps de séjour moyens des traceurs et de la métribuzine au cours des différents essais	55

## LISTE DES ABREVIATIONS

- C : Concentration ( $\text{mol L}^{-1}$  ou  $\text{g L}^{-1}$ )
- $C_0$  : Concentration initiale ( $\text{mol L}^{-1}$  ou  $\text{g L}^{-1}$ )
- $C/C_0$  : Concentration relative
- D : Diamètre
- H : Hauteur (cm)
- $\Delta H$  : Charge hydraulique
- i : gradient hydraulique
- K : Conductivité hydraulique ( $\text{cm h}^{-1}$ )
- $K_s$  : Conductivité hydraulique à saturation ( $\text{cm h}^{-1}$ )
- L : Longueur (cm)
- Q : Débit d'alimentation ( $\text{mL mn}^{-1}$ )
- R : Facteur retard
- t : Temps (h)
- $t_0$  : Temps d'injection (h)
- $t_s$  : temps de séjour (h)
- V : Volume (mL)
- $V_0$  : Volume de pore (mL)
- $V/V_0$  : Volume relatif
- W : Teneur en eau massique (%)
- $\theta$  : Teneur en eau volumique (%)
- $\rho_s; \rho_d$  : Masse volumique apparente du sol ( $\text{g cm}^{-3}$ )
- $\mu$  : Conductivité électrique ( $\text{mS cm}^{-1}$ )
- $\varepsilon_T$  : Porosité totale du sol
- $\varepsilon$  : Porosité de drainage

## INTRODUCTION

La pollution de l'environnement constitue depuis plusieurs dizaines d'années une préoccupation majeure dans le monde. Elle est le résultat du processus d'urbanisation, du développement démographique et du développement accéléré des activités industrielles et agricoles.

Les activités agricoles ont depuis longtemps été confrontées à des diminutions de rendement du fait de maladies fongiques et de mauvaises herbes. Les pesticides (ou produits phytosanitaires) ont été fabriqués pour palier à ce problème ; ils sont un pilier de l'agriculture parce qu'ils permettent la protection des cultures. Mais leur devenir dans l'environnement est à l'heure actuelle une préoccupation majeure : toxicité pour les organismes exposés, contamination des eaux superficielles par ruissellement de l'eau sur la surface du sol et des eaux souterraines par lixiviation, contamination de l'air et du sol. De nombreuses études mentionnent les risques des résidus de pesticides pour l'environnement et la santé (**Barriuso et al. 1996 ; Calvet et al. 2005**).

Le sol se trouvant être le réceptacle direct de ces polluants, leur comportement dans le sol conditionne alors leur passage dans les eaux souterraines. Il est donc primordial d'étudier le parcours de ces polluants pour prévoir leur devenir. En effet, il est important de prévoir leur potentiel de transformation dans le sol, d'adsorption sur le sol ou de migration (lixiviation) vers les eaux souterraines pour évaluer les risques qui pèsent sur les ressources en eau et agir en conséquence (**O.C.D.E. 2004**).

La connaissance et la compréhension des mécanismes de transfert de ces polluants dans le sol vers les eaux souterraines jouent donc un rôle aussi important que l'identification de la présence de ces polluants dans le sol et leur quantification (**Barriuso et al. 1996 ; Calvet 2003**).

La prédiction quantitative du devenir de ces pesticides dans le sol nécessite donc une évaluation de leur rétention et de leur transport dans le sol en fonction d'un certain nombre de paramètres, des conditions d'écoulement et du type de sol étudié. Une étude de ces processus en mode dynamique à l'échelle macroscopique d'une colonne de sol, puis d'une parcelle de terrain s'avère donc nécessaire (**Calvet 2003**).

Le présent travail porte sur l'étude, au laboratoire, d'un sol remanié en colonne. Dans la littérature, de nombreux dispositifs, aussi divers que variés et utilisant des colonnes de sol,

sont décrits pour l'étude du devenir de polluants dans les sols et des risques de contamination des nappes phréatiques. Mais ces études sont en général spécifiques à une problématique donnée. Elles portent sur des sols dont les propriétés sont différentes et leurs résultats sont donc très spécifiques. De plus, peu de détails ou de précisions y sont fournis quant aux dispositifs utilisés et à leur fonctionnement.

Dans ce contexte, le but du présent travail est d'abord d'étudier les avantages et inconvénients des dispositifs utilisés dans la littérature. L'étape suivante est de les adapter au sol objet de cette étude et de procéder à la mise au point d'un dispositif simple d'utilisation, efficace et peu coûteux, incluant une colonne de sol pour suivre le transfert d'eau par percolation (ou lixiviation), et le transport de solutés et de polluants dans le sol. Ce travail est abordé au laboratoire, avec des expériences de simulation en conditions dynamiques, sur colonnes de sol remanié. Il fait suite à une étude en batch effectuée antérieurement, dans le même laboratoire, sur ce sol à caractère argilo-limoneux provenant d'une zone agricole de la région d'Alger (**Haouchine et al. 2011 ; Saiba 2008**).

Cette étude inclue des essais de transport dans le sol avec différents traceurs pour choisir le mieux adapté au sol étudié. L'utilisation de traceurs de l'eau est une étape primordiale du travail de transport sur colonne de sol, car elle permet d'évaluer les paramètres hydrodynamiques du sol étudié dans des conditions non réactives. Ces essais seront une base d'évaluation quantitative pour les essais avec polluants.

La dernière étape a consisté à appliquer le dispositif mis au point à l'étude du transfert d'un pesticide polluant, la métribuzine, à travers une colonne de sol.

## CHAPITRE I : Sol et hydraulique du sol

### I. Le sol

Il existe plusieurs définitions pour le sol, selon le profil des spécialistes. D'une façon générale, on peut le définir comme étant la fine couche de surface de l'écorce terrestre qui participe directement au fonctionnement de la biosphère. C'est une couche où s'exerce une activité biologique significative. En dessous d'une profondeur de 1 à 2 m (dans le meilleur des cas), cette activité disparaît (CORPEN 2007).

#### I.1. Eléments constitutifs d'un sol

Le sol est un milieu poreux composé de trois phases : une phase solide, constituée d'éléments minéraux et organiques, une phase gazeuse et une phase liquide appelée souvent solution du sol (Gujisaite 2008). La figure N° 1 en donne une représentation schématique.

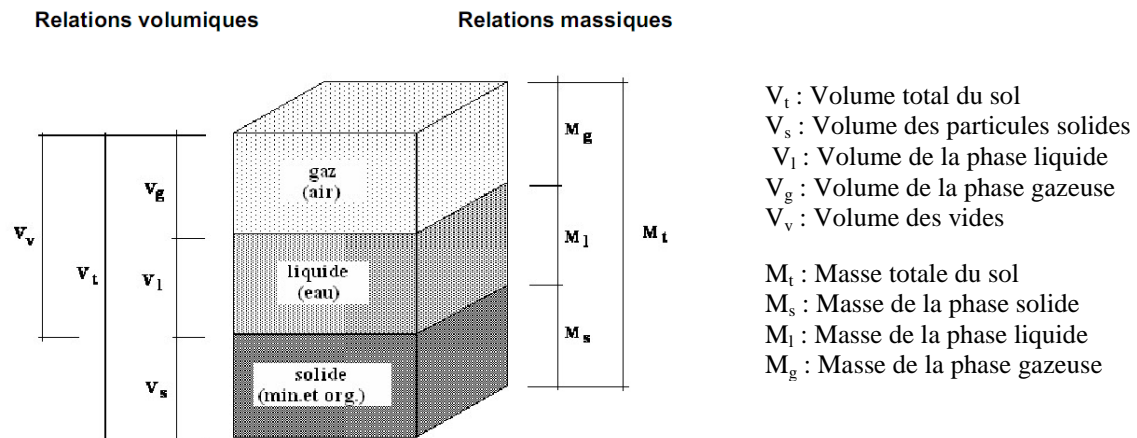


Figure N° 1: Représentation conventionnelle (physique) d'un volume de sol (Mermoud 2006)

#### I.1.1. La phase solide

Constituée par des composés minéraux et organiques, la phase solide forme des assemblages plus ou moins volumineux et donne au sol sa structure. Cette phase n'est pas continue ; elle contient un espace poral de dimensions et de géométries variés. Cet espace poral est rempli de phases fluides (liquide et gazeuse), susceptibles de se déplacer et de transporter une multitude de composés. Le sol peut donc influencer de façon considérable la rétention et le transfert des polluants.

##### I.1.1.1. La matière minérale du sol

Les minéraux sont les constituants inorganiques de la phase solide des sols. Ils sont nombreux et leur nature dépend essentiellement de la nature des roches dont se forme le sol. Ils constituent l'essentiel de la masse des sols en général (Calvet 2003).

### - Les argiles (kaolinite et illite essentiellement)

Les argiles sont des substances naturelles complexes composées essentiellement de silicates plus ou moins hydratés, d'aluminium généralement, mais également de magnésium, de fer ou même de nickel, qui les colorent différemment. D'après les fractions adoptées par l'Association Internationale de la Science du Sol (A.I.S.S.), la dimension des particules d'argile est inférieure à 2  $\mu\text{m}$  de diamètre (fraction la plus fine).

Les argiles sont considérées comme étant la chaire du sol. De ce fait, la fraction argileuse détermine le comportement physique et chimique du sol de part :

- Une grande surface spécifique ;
- Une activité physico-chimique importante, présente essentiellement dans la capacité d'échange ionique (phénomène qui affecte les processus de rétention et de libération des éléments nutritifs et des sels) ;
- Une capacité d'absorption d'eau ;
- Une forte sensibilité aux changements du milieu ou des conditions de travail.

### - Les sables (silices) et les limons

Ils présentent une granulométrie plus grossière que les argiles (diamètre des grains variant de 0,002 mm à 2 mm). Les sables et les limons jouent un rôle important dans l'édification de la structure des sols dont ils constituent le «squelette». Les sols riches en sable et en limon sont caractérisés par leur perméabilité à l'eau et à l'air.

### - Les graviers et les cailloux

Les graviers sont l'ensemble des particules d'un diamètre compris entre 2 et 20 mm provenant de l'érosion mécanique et de la fragmentation des roches. Les cailloux sont les éléments du sol dont le diamètre est supérieur à 20 mm.

### - Les oxydes, oxy-hydroxydes et carbonates

Parmi les minéraux du sol, en plus des minéraux argileux, on trouve également des oxydes, des oxy-hydroxydes et des carbonates (**Gujisaite 2008**).

#### I.1.1.2. La matière organique du sol

La matière organique du sol est le produit de l'altération biologique provenant du métabolisme d'êtres vivants végétaux et animaux. Cette matière carbonée est composée d'éléments principaux (C, H, O, N) et d'éléments secondaires (S, P, K, Ca, Mg) (**Gujisaite 2008**). La teneur en matières organiques dépend du type de sols (**Calvet 2003**).



### I.1.2. La phase liquide

La phase liquide du sol est essentiellement composée d'eau. C'est une solution aqueuse de composition variable et complexe. On l'appelle souvent « solution du sol » et elle contient de nombreuses substances dissoutes ou en suspension, organiques et inorganiques, ionisées et non ionisées (Calvet 2003 ; Moeys 2007). La solution du sol a généralement une molarité de  $10^{-3}$  à  $10^{-5}$  mol L<sup>-1</sup> (Calvet 2003).

L'eau du sol est de deux types:

- L'eau mobile, dont le mouvement est déterminé par la gravité et par les forces capillaires. Elle s'installe au sein de la macroporosité et de la mésoporosité (Lamy 2008).
- L'eau immobile, qui comprend l'eau adsorbée par les parois de la phase solide dans la microporosité (Lamy 2008 ; Prado Pano 2006).

La microporosité correspond aux vides dont les dimensions sont inférieures à 0,2 µm. Les zones microporeuses représentent l'espace poral où les fluides ne circulent pas (pas d'écoulement). La mésoporosité correspond aux vides dont les dimensions sont comprises entre 0,2 et 2000 µm. La macroporosité correspond aux vides dont les dimensions sont supérieures à 2000 µm (Lamy 2008).

### I.1.3. La phase gazeuse

Elle est constituée généralement d'un mélange d'air sec et de vapeur d'eau qui remplit une partie de l'espace poreux. Sa composition est généralement voisine de celle de l'atmosphère, mais dépend de sa proximité de l'atmosphère et de l'activité biologique du sol (Calvet 2003; Gujisaite 2008).

## I.2. Propriétés physiques du sol

### I.2.1. La texture du sol (composition granulométrique)

La notion de texture du sol concerne la phase solide. Elle est caractérisée par la taille et la distribution des particules (granulométrie) (Mathieu et Pieltain 1998). Selon la texture, on distingue deux grandes catégories de sols: sols à texture fine ou légère, si les particules sont petites (< 2 mm) et sols à texture grossière ou comportant des particules suffisamment grandes, comprises entre 2 et 50 mm (Mahmoud 2010).

La texture du sol conditionne son comportement et détermine ses propriétés physiques, chimiques et hydrauliques. Elle est constante dans le temps et peu variable spatialement (Prado Pano 2006).

La composition granulométrique du sol permet de déterminer sa texture. Cette dernière s'exprime en pourcentage des trois principales fractions minérales inférieures à 2 mm de diamètre définies par le département de l'agriculture des USA (U.S.D.A.) (**Gujisaite 2008**) :

- Argiles (< 0,002 mm) ;
- Limons (de 0,002 à 0,05 mm) ;
- Sables (de 0,05 à 2 mm).

Le tableau N° 1 indique les différentes classes du sol suivant la taille des particules, définies par la société Internationale de Sciences du Sol (S.I.S.S.).

**Tableau N° 1:** Classification granulométrique des sols selon la S.I.S.S. (**Mahmoud 2010**)

<b>Dénomination en 5 Classes</b>	<b>Argiles</b>	<b>Limons fins</b>	<b>Limons grossiers</b>	<b>Sables fins</b>	<b>Sables grossiers</b>
<b>Limites de taille (µm)</b>	< 2	2 à 20	20 à 50	50 à 200	200 à 2000
<b>Denomination en 3 classes</b>	<b>Argiles</b>	<b>Limons totaux</b>		<b>Sables totaux</b>	
<b>Limites de taille (µm)</b>	< 2	2 à 50		50 à 2000	

### *Le triangle des textures*

Il existe de nombreux modèles de représentation triangulaire de la notion de texture, mais le principe en est toujours le même (figure N° 2).

On part d'un triangle équilatéral où chaque côté gradué correspond à l'une des trois fractions. On positionne la fraction granulométrique selon deux fractions. Le taux de la troisième fraction est déduit par lecture directe sur le triangle. Chaque point du triangle correspond donc à une répartition granulométrique bien définie des constituants du sol (sables, limons, argiles). Le type de sol est alors déduit du triangle.

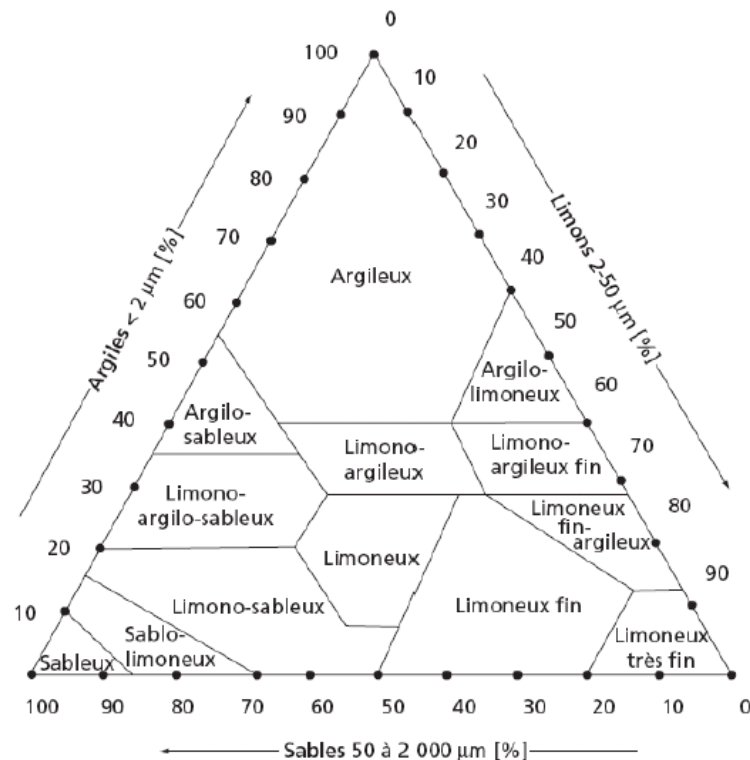
### **I.2.2. La structure du sol**

La structure du sol désigne la façon selon laquelle s'arrangent géométriquement les éléments solides élémentaires (sables, limons, argiles) de ce sol. Cet arrangement donne lieu à la matrice poreuse du sol, au sein de laquelle ont lieu les écoulements d'eau et de solutés.

### **I.2.3. La compacité du sol**

La compacité d'un sol caractérise l'état structural dans lequel se trouve son squelette et est liée à la notion de tassement (état de serrage des grains de sol). Elle est définie par des paramètres sans dimension tels que la densité et la porosité. Le comportement mécanique

d'un sol et les modifications de sa structure sont déterminés à la fois par sa distribution granulométrique et par la compacité de sa structure (**Daian 2010**).



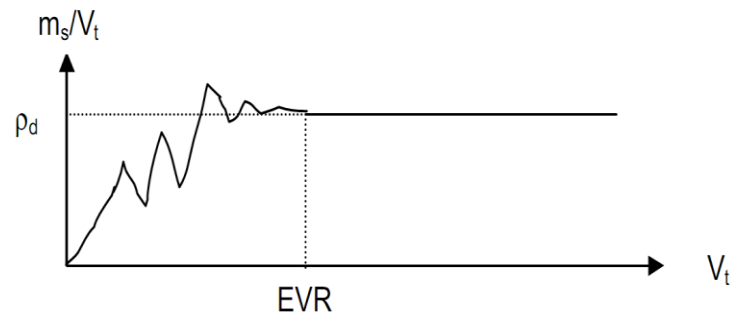
**Figure N° 2** : Triangle des textures minérales d'après la classification de l'U.S.D.A.

#### **I.2.4. La notion de Volume Élémentaire Représentatif (V.E.R.)**

La notion de V.E.R. (Volume Élémentaire Représentatif) suppose que l'on puisse calculer, pour une propriété donnée du sol (par exemple la masse volumique, la porosité, la teneur en eau, ou la conductivité hydraulique), une valeur qui soit globale à l'échelle du V.E.R. (**Al Bitar 2007 ; Mazet 1992; Szencknect 2003**). La figure N° 3 en donne une illustration.

La taille du V.E.R. doit être suffisamment grande pour que les valeurs moyennes des paramètres physiques du sol ne dépendent plus de la taille de ce volume (elles sont donc représentatives du milieu).

L'échelle du V.E.R. peut donc être comparée à une échelle de mesure. En ce qui concerne la présente étude, l'échelle de mesure correspond aux dimensions de la colonne de laboratoire utilisée. A cette échelle réduite de colonne de sol, le milieu poreux peut être considéré comme homogène, alors qu'à l'échelle du site, la variabilité des propriétés physiques du milieu est complexe (**Szencknect 2003**).



**Figure N° 3:** Illustration de la notion de V.E.R. (Mazet 1992 ; Szencknecht 2003)

### I.2.5. La masse volumique apparente ( $\rho_s$ ou $\rho_d$ )

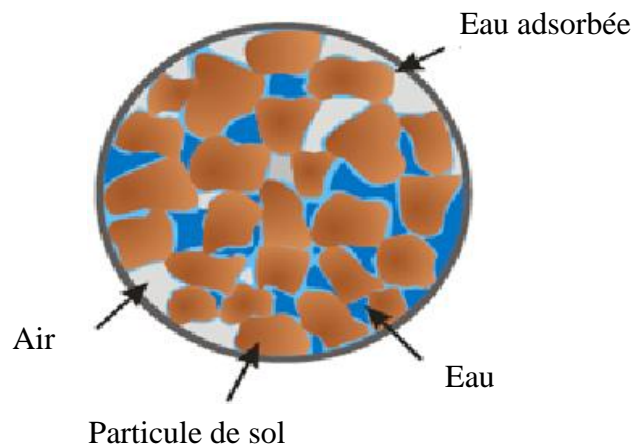
Elle est définie comme le rapport entre la masse du sol sec introduit dans la colonne et son volume total. Le volume total du sol est le volume occupé par la phase solide additionné du volume occupé par les espaces libres (volume d'eau et volume d'air) (Moeys 2007).

$$\rho_s = \frac{\text{Masse du sol}}{\text{Volume total du sol}}$$

*Elle est en général de l'ordre de 1,4 à 1,7 g cm<sup>-3</sup> pour les sols sableux et de 1 à 1,5 g cm<sup>-3</sup> pour les sols argileux (Prado Pano 2006).*

### I.2.6. La porosité

Le sol est un milieu poreux et l'ensemble des espaces libres du sol est appelé « porosité du sol ». Ces espaces libres étant pour la plupart interconnectés, on utilise aussi le terme de « réseau poral ». La figure N° 4 en donne une représentation schématique.



**Figure N° 4 :** Représentation d'un milieu poreux (Al Bitar 2007)

C'est à travers cette porosité que l'eau du sol circule. La manière dont l'eau est retenue par le sol et la manière dont elle circule dans le sol sont liées aux caractéristiques de cette porosité (diamètres des pores, géométrie, interconnexions) (Moeys 2007 ; Lhoste 2006).

**Estimation de la porosité du sol :****- La porosité totale ( $\varepsilon_T$ )**

La porosité, lieu de l'écoulement de l'eau, est le rapport entre le volume des pores (volume des vides) et le volume total du sol. Elle est exprimée en %.

$$\varepsilon_T (\%) = \frac{\text{Volume d'eau} + \text{Volume d'air}}{\text{Volume total du sol}} \cdot 100$$

Le tableau N° 2 donne un aperçu sur la porosité totale de différents types de sols.

**Tableau N° 2:** Valeurs indicatives de la porosité totale pour différents sols meubles (Mermoud 2006)

	<u><math>\varepsilon_T</math> (%)</u>
<b>Sols argileux et silteux</b>	40 – 60
<b>Sables fins</b>	40 – 50
<b>Sables moyens</b>	35 – 40
<b>Sables grossiers</b>	25 – 35
<b>Graviers</b>	20 - 30
<b>Sols tourbeux</b>	80 – 85

**- La porosité de drainage ( $\varepsilon$ )**

Elle est définie comme étant la porosité qui contribue à l'écoulement gravitaire des solutions dans le sol.

$$\varepsilon = \frac{\text{Volume de la macroporosité}}{\text{Volume total du sol}}$$

Le tableau N° 3 rapporte des valeurs de la porosité de drainage pour différents sols.

**Tableau N° 3:** Valeurs indicatives de la porosité de drainage pour différents types de sols (Mermoud 2006)

<b>Sols argileux</b>	<u><math>\varepsilon</math> (%)</u>
	Moins de quelques %
<b>Sable très fin</b>	10 – 15
<b>Sable fin</b>	15 – 20
<b>Sable moyen</b>	20 – 25
<b>Sable grossier</b>	25 – 30
<b>Gravier</b>	20 – 30

**I.3. L'eau du sol**

L'étude de l'eau du sol comporte deux aspects :

- *Un aspect statique* : ce sont les différents états de l'eau du sol, en liaison directe avec sa capacité de rétention et la disponibilité en eau qu'il peut assurer pour les plantes (degré d'humidité) (**Crosnier 1999 ; Lamy 2008**).
- *Un aspect dynamique* : il s'agit de la circulation de l'eau dans le sol, c'est-à-dire les transferts verticaux (percolation, lixiviation) ou latéraux de la phase liquide du sol.

Ces deux aspects dépendent, directement ou indirectement, de la porosité du sol.

### **I.3.1. Les états de l'eau dans le sol**

Dans le sol, l'eau peut se trouver sous différents états : eau libre, eau liée capillaire et eau liée adsorbée.

- *L'eau libre* est l'eau qui se déplace par gravité ;
- *L'eau liée capillaire* est retenue dans les interstices entre les grains par les forces de capillarité. Elle peut être mise en mouvement seulement par gradient de capillarité ou par adsorption des plantes.
- *L'eau liée adsorbée* est l'eau qui entoure les grains sous la forme d'une couche de molécules. Cette eau, caractérisée par une forte viscosité, se déplace peu et constitue souvent une fraction négligeable de l'eau présente dans le milieu poreux (**Lamy 2008; Lassabatere 2002**).

### **I.3.2. Etat de saturation en eau des sols (sol saturé, sol non saturé)**

Une particularité importante du sol est sa teneur en eau (ou humidité). Différents états peuvent être distingués en fonction du degré d'humidification en eau du sol. Les mouvements de l'eau dans les différents états sont très différents (**Calvet et al. 2005**). On distingue :

- *Le sol saturé* où l'eau libre (ou gravitaire) s'écoule dans le réseau des pores uniquement par les forces de gravité. Les pores sont, dans ce cas, remplis et on obtient deux phases (solide, liquide). La conductivité hydraulique  $K$ , dans ce cas, est maximale (**Lhoste 2006**).
- *Le sol non saturé* où l'eau est retenue dans le sol et dont l'écoulement est très faible à nul. Les pores ne sont pas tous remplis. C'est donc un système à trois phases (solide, liquide, gaz) et la conductivité hydraulique  $K$  y est faible ; de plus, la valeur de  $K$  est une moyenne puisqu'elle varie en tout point du sol (**Léreau 2006**).
- *Le sol variablement saturé* où les deux phénomènes cohabitent. On y trouve donc des zones saturées et des zones non saturées.

### I.3.3. La teneur en eau (ou humidité) du sol

La description quantitative de la phase liquide du sol repose sur la notion de teneur en eau ou humidité du sol. Celle-ci varie en fonction de la structure du sol, de sa porosité et de sa perméabilité.

#### I.3.3.1. La teneur en eau volumique ( $\theta$ )

C'est le premier paramètre utilisé pour décrire la présence d'eau dans un sol. Elle est définie comme le rapport du volume d'eau présent dans le sol au volume apparent de ce sol (volume de sol en place dans la colonne).

$$\theta (\%) = \frac{\text{Volume d'eau contenu dans le sol}}{\text{Volume total du sol}}$$

La teneur en eau volumique varie entre une valeur minimale (la teneur en eau résiduelle  $\theta_r$ ), et une valeur maximale (la teneur en eau à saturation  $\theta_s$ ). La valeur de cette dernière est en principe égale à la porosité efficace (rapport du volume des vides au volume total du sol).

$$\theta_r < \theta < \theta_s$$

#### I.3.3.2. La teneur en eau massique (W)

La teneur en eau massique (appelée aussi pondérale) correspond au rapport entre la masse d'eau contenue dans le sol et la masse du sol sec introduit dans la colonne.

$$W (\%) = \frac{\text{Masse de l'eau dans le sol}}{\text{Masse du sol}}$$

La relation entre  $\theta$  et W est donc :

$$\theta = W \cdot \frac{\rho_s}{\rho_{\text{eau}}}$$

Le volume maximal d'eau que le sol peut retenir est appelé « *capacité de rétention du sol* ». Celle-ci dépend essentiellement de la granulométrie du sol.

## CHAPITRE II : Transferts d'eau et de solutés dans le sol- Ecoulements

Les études de transferts d'eau et de solutés dans un sol peuvent être réalisées sur sol non remanié ou remanié. Pour des raisons pratiques, elles sont souvent menées sur colonnes de sol, au laboratoire, plus simples que les études sur terrain.

### I. Principe de l'étude

#### I.1. Sol non remanié et sol remanié

*Un sol non remanié* est obtenu en pratiquant des prélèvements sur le terrain par carottage. Il n'est donc pas perturbé et sa structure est conservée.

*Un sol remanié* est un sol qui, après avoir été prélevé, a été séché, broyé puis tamisé. Il est donc perturbé et sa structure est modifiée.

A l'échelle du laboratoire, l'étude du sol en colonne de sol non remanié est celle qui se rapprocherait le plus des conditions naturelles, mais elle est relativement complexe. C'est pourquoi on lui préfère, quand c'est possible, l'étude sur colonne de sol remanié. La distribution du sol y est plus homogène, la variabilité spatiale est faible et la reproductibilité est plus facile. Le sol remanié est en fait souvent choisi pour des raisons pratiques.

Mais le sol remanié minimise les risques de contamination des eaux souterraines, car il favorise l'adsorption. Dans ce sol de faible porosité par rapport au sol non remanié, le soluté explore toute la porosité du sol remanié, s'il y a absence de flux préférentiel (le remaniement d'un sol tend en général à diminuer la possibilité d'écoulements préférentiels) ; ceci favorise donc l'adsorption (**Vincent 2003**).

#### I.2. Ecoulements d'eau et transport de solutés

Les phénomènes d'écoulements liquides et de transport de polluants dans un sol peuvent être observés à différentes échelles. Chaque échelle est particulière par les dispositifs expérimentaux qu'elle exige ainsi que les phénomènes qu'elle permet de suivre. En passant de l'échelle la plus petite de l'étude du sol à l'échelle la plus grande, on peut distinguer :

- *L'échelle du pore ou échelle microscopique* : elle s'étudie par des essais en batch, au laboratoire, permettant de connaître la sorption à l'équilibre. Ce sont les essais les plus simples à mettre en œuvre.
- *L'échelle macroscopique*, dite de Darcy : elle est étudiée à l'aide de colonnes de sol remanié (déstructuré) ou non remanié. Cette échelle décrit les phénomènes pour des éléments de volume suffisamment grands par rapport au volume moyen du pore (ou



des grains). L'échelle de Darcy est basée sur l'existence d'un Volume Élémentaire Représentatif (V.E.R.) sur lequel on suppose que les teneurs trouvées pour certains paramètres sont uniformes.

- *L'échelle du terrain* : l'étude se fait par des essais à trois dimensions, sur de grandes surfaces qui incluent l'hétérogénéité du terrain et des conditions d'essais variables et complexes.

En passant de l'essai en batch à l'essai sur terrain, on se rapproche de plus en plus de l'état naturel du sol, donc d'une meilleure représentativité de ce dernier ; mais on se heurte à des conditions d'expérimentation de plus en plus difficiles.

## II. Méthodes d'étude

Deux types de méthodes d'étude des transferts de polluants ou de solutés dans les sols sont utilisés au laboratoire.

### II.1. La méthode en batch (en réacteur discontinu)

C'est une méthode destinée à connaître le coefficient d'adsorption d'un échantillon de sol remanié. Elle consiste à mettre en contact, avec ou sans agitation, le soluté ou le polluant en phase aqueuse avec la phase solide du sol. Le coefficient de rétention ou coefficient de partage, est calculé grâce à des modèles (isothermes d'adsorption), lorsque l'équilibre est atteint.

Par la méthode en batch, la majorité des sites d'adsorption devient accessible au polluant. Cette dernière surestime donc souvent l'adsorption par rapport à ce qui se passe réellement au champ et dans les colonnes de sol car dans les conditions dynamiques du transfert, la totalité des sites d'adsorption ne sera pas mise au contact avec le soluté (**Prado Pano 2006**).

L'intérêt principal de la méthode en batch est donc de permettre une caractérisation, dans des conditions standardisées, des capacités de rétention maximales des sols, et de faire des comparaisons entre différentes molécules de solutés ou différents sols (**Vincent 2003**).

### II.2. La méthode sur colonnes de sol (en réacteur continu)

Les mouvements de l'eau du sol sont de trois types : mouvements descendants (action de la pesanteur sur l'eau de gravité), mouvements ascendants (par capillarité) et mouvements latéraux (circulation oblique de l'eau gravitaire). L'étude en colonne de sol se limite au mouvement monodimensionnel ascendant ou descendant suivant l'étude.

Cette méthode a l'intérêt, par rapport à la méthode en batch, d'étudier l'aspect hydrodynamique du sol.

### III. Caractéristiques des écoulements dans une colonne de sol

#### III.1. Le volume de pore ( $V_0$ ou $V_p$ )

Le volume de pore ( $V_0$  ou  $V_p$ ) est le volume des vides dans le sol.

$$V_0 = V \cdot \theta \quad (\text{Szencknect 2003}) \quad \text{ou : } V_0 = \frac{\text{Masse sol humide} - \text{Masse sol sec}}{\rho_s}$$

avec :

$V$  : volume de sol dans la colonne

$\theta$  : teneur en eau volumique du sol

Le volume de pore  $V_0$  de la colonne de sol est relié au temps de séjour moyen  $t_s$  de la solution dans la colonne et au débit d'alimentation volumique  $Q$  de la colonne selon la relation (**Gujisaite 2008 ; Szencknect 2003**) :

$$V_0 = Q \cdot t_s$$

Le temps de séjour moyen  $t_s$  représente le temps nécessaire à une molécule pour traverser la colonne de sol. Il est déterminé par des essais de traçage. On injecte le traceur en haut de la colonne et  $t_s$  correspond au temps nécessaire pour renouveler une fois le volume d'eau contenu dans l'espace poral de la colonne.

#### III.2. Vitesse d'écoulement de l'eau dans le sol (Vitesse de Darcy)

Comme on s'intéresse surtout au mouvement global du liquide dans le sol, on considère que l'eau passe par toute la surface du sol (y compris les grains) et on définit des trajectoires fictives et une vitesse moyenne apparente (**Léreau 2006 ; Mazet 1992 ; Prado Pano 2006**). La vitesse apparente de l'eau dans une colonne de sol est alors le rapport du débit de l'eau écoulé à la section de l'échantillon de sol.

Soit  $Q$  le débit de l'eau s'écoulant dans une colonne de sol à travers une surface totale  $S$  (grains + vides). La vitesse fictive ou apparente  $q$  est donc :

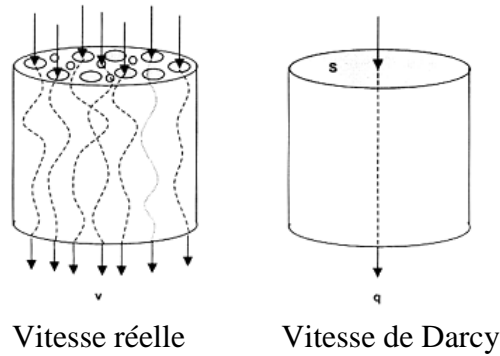
$$q = Q / S$$

$Q$  : Débit de l'eau

$S$  : Surface d'écoulement

La vitesse apparente  $q$  est aussi appelée vitesse d'écoulement ou vitesse de Darcy (**Lamy 2008 ; Léreau 2006 ; Mazet 1992; Prado Pano 2006**).

La figure N° 5 met en évidence la différence entre vitesse réelle et vitesse apparente.



**Figure N° 5 : Vitesse réelle et vitesse de Darcy (Mazet 1992; Prado Pano 2006)**

Mais l'eau ne s'écoule que dans le volume qu'elle occupe, qui ne comprend pas tout l'espace poral du sol. Il est donc inférieur au volume total utilisé pour le calcul de la vitesse de Darcy. La vitesse réelle est donc plus grande que la vitesse de Darcy.

On définit donc la vitesse de pore  $v$  ( $m s^{-1}$ ), plus proche de la vitesse réelle, comme le rapport entre la vitesse de Darcy  $q$  et la teneur volumique en eau  $\theta$ , avec l'hypothèse que toute l'eau présente dans les pores se déplace (Gujisaite 2008 ; Lamy 2008 ; Mazet 1992).

$$v = q / \theta$$

### III.3. Le gradient hydraulique (ou gradient de charge hydraulique) (i)

#### *La notion de charge hydraulique ( $\Delta H$ )*

En hydrogéologie, il est plus commun de remplacer la pression de l'eau dans le sol par une charge hydraulique équivalente (Al Bitar 2007). La charge hydraulique totale  $\Delta H$  dans le sol est essentiellement la somme d'un potentiel de pression et d'un potentiel gravitaire (Al Bitar 2007 ; Gujisaite 2008). Le potentiel gravitaire est associé au poids ; il permet à la solution de se déplacer par attraction gravitaire. Le potentiel de pression est (Al Bitar 2007) :

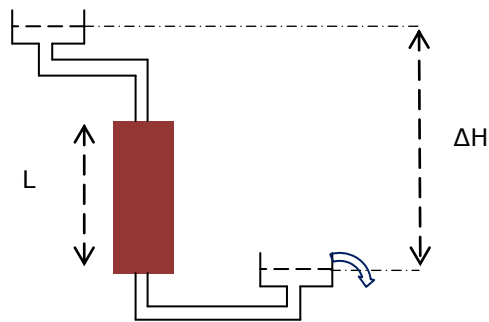
- En zone saturée, la pression hydrostatique exercée en un point du sol par la colonne d'eau qui le surmonte ;
- En zone non saturée, l'intensité des forces de capillarité et d'adsorption qui attirent et lient la phase liquide à la phase solide.

Dans un écoulement uniforme et monodimensionnel, le gradient hydraulique  $i$  est le rapport de la différence de charge  $\Delta H$  appliquée sur une colonne de sol saturé, à la longueur  $L$  du trajet de l'eau dans le sol en question (Degoutte 2009 ; Guimont 2005) (figure N° 6).

$$i = \Delta H / L$$

où :  $\Delta H$  = Charge hydraulique

$L$  = Longueur de la colonne de sol



**Figure N° 6 : Echantillon de sol soumis à un gradient hydraulique (Calvet 2003)**

La différence de niveau entre les deux réservoirs crée une charge hydraulique qui est à l'origine de l'écoulement de l'eau.

#### III.4. La loi de Darcy

La loi de Darcy stipule que la vitesse d'écoulement  $q$  à travers une colonne de sol est directement proportionnelle au gradient de charge hydraulique  $i$  auquel le sol est soumis (Calvet 2003). La loi de Darcy est une base de l'hydrodynamique du sol (Mathieu et Pielain 1998). Elle est à l'origine du calcul de la conductivité hydraulique et s'écrit :

$$Q = K_s \cdot S \cdot \Delta H / L \quad (\text{Calvet 2003 ; Mathieu et Pielain 1998})$$

où :  $K_s$  = Coefficient de perméabilité (ou conductivité hydraulique) à saturation

$S$  = Surface de la section de la colonne de sol

La loi de Darcy repose sur les hypothèses suivantes :

- Le milieu poreux est homogène et stable, isotherme et incompressible ;
- L'énergie cinétique est négligeable ;
- Le régime d'écoulement est permanent et laminaire, ce qui est généralement le cas dans les milieux poreux (Calvet 2003).

#### III.5. La perméabilité ( $k$ ) et la conductivité hydraulique ( $K$ ) du sol

La perméabilité ( $k$ ) est l'aptitude d'un sol à se laisser traverser par l'eau sous l'effet d'un gradient hydraulique. Elle exprime la résistance du sol à l'écoulement de l'eau qui le traverse. Les principaux facteurs qui l'influencent sont la texture du sol et sa porosité.

La conductivité hydraulique ( $K$ ), appelée aussi « *coefficient de perméabilité* », qui intervient dans la loi de Darcy, représente la capacité du milieu poreux à conduire l'eau. Elle représente une vitesse d'infiltration de l'eau. Lorsque le milieu est saturé, tous les pores sont remplis et conduisent l'eau. La conductivité est alors maximale ; c'est la conductivité hydraulique à saturation ( $K_s$ ). En revanche, dans un milieu non saturé, la conductivité hydraulique dépend de la teneur en eau (Lamy 2008).

La perméabilité exprime l'inverse de la résistance visqueuse au flux ; elle est fonction du sol. Elle est exprimée en  $m^2$  ou Darcy ( $1 \text{ Darcy} = 10^{-12} m^2$ ). La conductivité hydraulique  $K$  exprime la même chose, mais elle dépend non seulement du sol, mais aussi de la solution qui y circule (Al Bitar 2007). Elle est exprimée en  $m s^{-1}$  (Al Bitar 2007 ; Renard 2010).

### *Détermination de la conductivité hydraulique $K [L T^{-1}]$*

A la suite d'une saturation préalable d'une colonne de sol, une hauteur d'eau constante est maintenue au-dessus du sol à l'aide d'un trop-plein placé à cet effet sur la colonne de sol de longueur  $L$  et de section  $S$ . On recueille le volume d'eau  $V$  s'écoulant à la base durant un certain temps  $t$ . La conductivité hydraulique est calculée à l'aide de la formule suivante (Mathieu et Pielain 1998 ; Pomerleau 1997) :

$$K_s = \frac{Q \cdot L}{S \cdot \Delta H} = \frac{V \cdot L}{t \cdot S \cdot \Delta H} \quad [L T^{-1}]$$

où :

$L$  : hauteur de la colonne de sol [L]

$S$  : section de la colonne de sol [ $L^2$ ]

$\Delta H$  : différence de charge hydraulique [L]

$V$  : volume d'eau recueilli [ $L^3$ ]

$t$  : temps [T]

Le tableau N° 4 donne une indication sur les valeurs de la conductivité hydraulique à saturation suivant les types de sol.

**Tableau N° 4 : Ordre de grandeur de la conductivité hydraulique dans divers sols (CORPEN 2007)**

$K_s(m/s)$	$10^{-2}$ $10^{-3}$ $10^{-4}$ $10^{-5}$ $10^{-6}$ $10^{-7}$ $10^{-8}$ $10^{-9}$ $10^{-10}$ $10^{-11}$									
	Soit environ en cm/h :      400      40      4      0.4      0.04									
Perméabilité	Perméable			Semi-perméable		Imperméable				
Types de sols	Gravier sans sable ni éléments fins		Sable avec gravier Sable grossier à sable fin		Sable très fin Limos grossier à limon argileux		Argile limoneuse à argile homogène			
Infiltration	Excellente		Bonne		Moyenne à faible		Faible à nulle			

## CHAPITRE III : Les études sur colonne de sol et utilisation de traceurs

Les colonnes de sol permettent, par des expériences de percolation et de transport d'eau, de traceurs ou de polluants, de suivre le devenir de solutés, dont les polluants, dans le sol (rétention, dégradation, transport) et d'évaluer leur mobilité et les risques de pollution des eaux souterraines (**Vincent 2003**). C'est une échelle intermédiaire entre l'étude au champ et les expériences en batch. Le sol utilisé peut être remanié ou non remanié. Dans ce cas, on peut maîtriser les conditions aux limites (conditions à l'entrée et à la sortie de la colonne).

Les colonnes de sol remanié offrent par exemple la possibilité d'étudier la rétention pour différents régimes d'écoulement, différentes densités du sol, différents taux de saturation en eau du sol, et de suivre l'influence d'autres paramètres tels que la force ionique des solutions.

Les essais en colonne de sol remanié, au laboratoire, permettent de se pencher sur les phénomènes de transport hydrodynamiques en milieu homogène, ainsi que sur les phénomènes chimiques ou physico-chimiques (sorption). Ils ont l'intérêt de permettre de connaître l'effet des propriétés chimiques du sol sur le mouvement du soluté, par rapport aux propriétés hydrodynamiques (**Duwig 2009 ; Limousin 2006**). De plus, l'homogénéité dans la structure du sol remanié favorise un transport explorant toute la porosité du sol. Le remaniement d'un sol tend en général à diminuer la possibilité d'écoulement préférentiel, bien qu'il puisse aussi en engendrer (si les conditions de préparation de la colonne le favorisent).

Quant aux essais en colonne de sol non remanié, au laboratoire, ils permettent d'inclure dans l'étude les effets de la structure hétérogène du terrain, mais ils sont un facteur très complexe (**Vincent 2003**).

### I. Principe de l'étude sur colonne de sol

L'étude des processus d'adsorption et de rétention entre la phase liquide contenant le polluant et la matrice de sol est indispensable pour comprendre le mouvement des polluants dans le sol. L'étude des transferts de solutés sur le terrain présente des problèmes d'imprécision due à l'hétérogénéité du système et à la non-maîtrise des facteurs influençant l'étude. L'utilisation de colonnes de sol, intact ou remanié, permet d'étudier le transport d'un soluté par percolation, sous des conditions contrôlées. L'étude, ramenée à une dimension, est donc simplifiée.

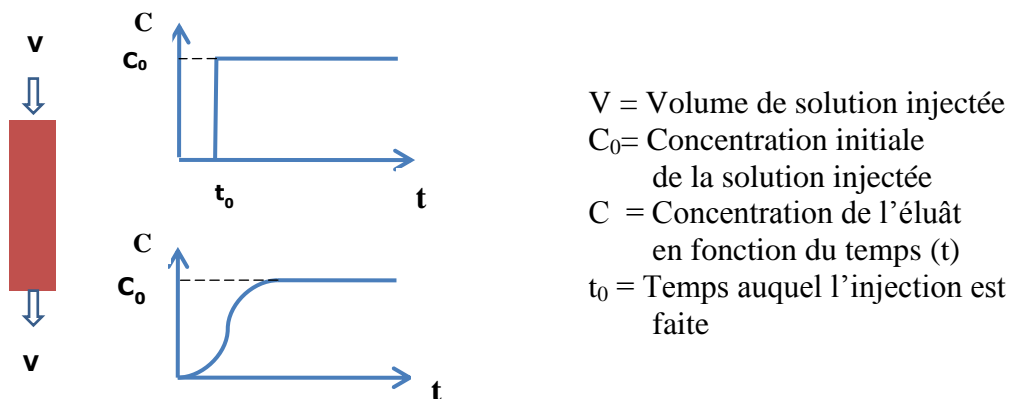
Le principe de l'étude sur colonne de sol est d'émettre en entrée de colonne un signal connu et d'analyser ensuite le signal de sortie de colonne dans les éluats. Le signal d'entrée

correspond à l'injection d'un soluté, préparé à une concentration connue, pendant un temps donné. La concentration du soluté est suivie à la sortie de la colonne (**Gujisaite 2008 ; Marcos 2001**).

L'évolution de cette concentration à la sortie de la colonne, en fonction du temps ou du volume d'éluât, permet d'établir une *courbe d'éluion* du soluté, appelée aussi *courbe de percée* ou *courbe de restitution*.

L'étude de l'allure de la courbe obtenue permet d'émettre des hypothèses sur les phénomènes impliqués dans le transport et la rétention du soluté au cours de son transfert dans la colonne. Elle permet l'estimation de plusieurs paramètres tels que le bilan de masse du soluté (degré de restitution du soluté, rétention du soluté), le facteur retard, le temps de séjour moyen ( $t_s$ ) et la présence d'exclusion anionique (**Lamy 2008 ; Lassabatere 2002**).

La figure N°7 illustre le principe d'une étude de percolation sur colonne de sol.



**Figure N° 7 :** Courbe d'éluion résultant d'une injection échelon d'un soluté (**Fevrier 2001**)

## II. Les courbes d'éluion et leur analyse

### II.1. Les courbes d'éluion (ou de percée, ou de restitution)

La mesure de la concentration d'un soluté ou d'un traceur en sortie de colonne permet de construire la courbe d'éluion. On met en ordonnée la concentration  $C$  ( $\text{mg L}^{-1}$ ), la concentration relative  $C/C_0$  ( $C_0$  étant la concentration initiale de la solution injectée), ou la conductivité électrique  $\mu$  ( $\mu\text{S cm}^{-1}$ ) de la solution, et en abscisse le temps cumulé  $t$  (h), la lame d'eau drainée (cm), le volume élué  $V$  (mL) ou le volume de pores  $V_0$ .

Afin de comparer facilement les courbes d'éluion obtenues dans des conditions opératoires différentes (concentration d'entrée, vitesse d'écoulement, type de traceur, méthode d'analyse,) il est plus facile de les exprimer avec de variables adimensionnelles :

- En divisant la concentration  $C$  en sortie de colonne par la concentration  $C_0$  imposée à l'entrée de la colonne. On parle alors de concentration relative  $C/C_0$  ;

- En définissant un volume relatif égal au volume  $V$  écoulé au temps  $t$ , divisé par le volume d'eau total dans la colonne  $V_0$ . On parle alors de volume écoulé relatif  $V/V_0$ .

L'éluion d'un soluté est alors représenté par l'évolution de  $C/C_0$  en fonction de  $V/V_0$  (Lamy 2008).

Au début de l'essai, le traceur évolue dans la matrice du sol avec une interface de séparation entre la solution du sol et la solution contenant le traceur ou le polluant. Cette séparation disparaît progressivement et il se crée une zone de transition dans laquelle la concentration du traceur varie jusqu'à atteindre sa concentration maximale. Ceci se traduit sur le graphe par une courbure croissante suivie d'un palier constant dont le début indique la sortie totale du soluté. La sortie complète du soluté commence à partir du moment où on obtient la première valeur égale à la concentration injectée à l'entrée de la colonne. On parle de percée à partir du moment où on commence à obtenir une courbure nette du tracé.

## II.2. Analyse des courbes d'éluion

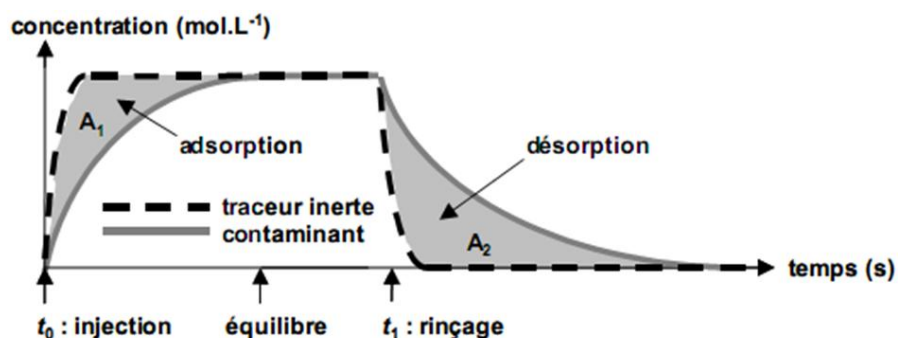
Un certain nombre de paramètres caractéristiques du transfert du soluté peut être obtenu par l'analyse de la courbe d'éluion.

### II.2.1. Le bilan de masse

Le bilan de masse, entre la masse injectée en entrée et celle récupérée en sortie de colonne, est fourni par l'aire sous la courbe d'éluion (Fevrier 2001). On en déduit le taux de restitution du soluté, rapport entre la quantité injectée et la quantité recueillie.

- Si le bilan de masse = 1, cela signifie que tout le soluté injecté est restitué en sortie. Le soluté est dit conservatif. S'il a subi des interactions au cours de son transfert, elles sont entièrement réversibles.
- Si le bilan de masse < 1, cela signifie que le soluté a subi des interactions irréversibles (dégradation, adsorption) et seule une partie est restituée en sortie.

Le bilan de masse est aussi mesuré par la surface entre la courbe d'éluion d'un traceur conservatif, donc totalement restitué, et celle du polluant réactif (figure N° 8).



**Figure N° 8:** Principe de calcul de la quantité de soluté adsorbé et/ou désorbé (Limousin 2006)



L'aire  $A_1$  donne une évaluation de la quantité de soluté ou polluant adsorbée. En pratiquant une désorption, le rapport entre l'aire obtenue pour l'étape de désorption  $A_2$  et celle obtenue pour l'étape d'adsorption  $A_1$  donne une idée sur la quantité de contaminant adsorbé de façon irréversible (qui est resté adsorbé sur le sol durant l'expérience) (**Limousin 2006**). L'objet de la présente étude ne porte que sur la partie adsorption.

### II.2.2. Le temps de séjour ( $t_s$ )

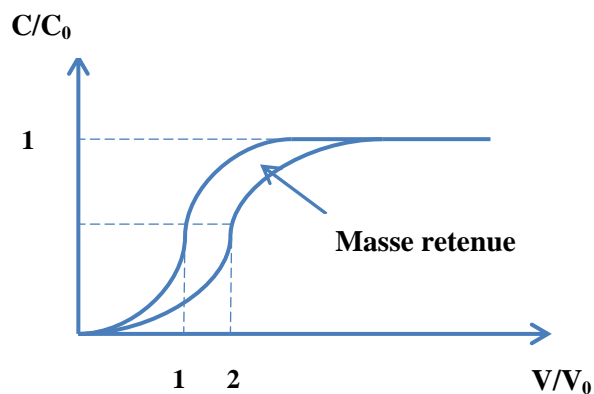
Le temps de séjour moyen d'un soluté dans la colonne de sol est le temps nécessaire pour renouveler une fois le volume d'eau contenu dans la colonne de sol.

$$t_s = \frac{\text{Volume de pore}}{\text{Débit}} = \frac{V_0}{Q}$$

### II.2.3. Le facteur retard ( $R$ )

Le retard que subit un soluté réactif au cours de son transfert par rapport au transfert d'un traceur conservatif (figure N° 9), peut être évalué par le facteur retard. Il est défini par le rapport entre le temps de séjour du soluté et le temps de séjour d'un traceur non réactif :

$$R = t_{s \text{ soluté}} / t_{s \text{ traceur}}$$



**Figure N° 9 :** Visualisation du retard sur la courbe de percée (**Mermoud 2006**)

$R$  témoigne des interactions que subit le soluté au cours de son transfert (**Fevrier 2001**):

- $R = 1$  : Le soluté ne réagit pas avec le sol ;
- $R < 1$  : Le soluté est restitué plus vite que le traceur ;
- $R > 1$  : Le soluté est en retard par rapport au traceur. Cela indique qu'il a réagi avec le sol au cours du transfert.

L'aire comprise entre les deux courbes correspond à la masse de soluté stockée.

### III. Utilisation de traceurs de l'écoulement

#### III.1. Intérêt des traceurs

Afin de dissocier, dans l'étude des transferts de solutés, les mécanismes chimiques des mécanismes hydrodynamiques, on compare le transfert d'un traceur inerte avec celui d'un polluant, dans les mêmes conditions. Il est donc important de connaître les mécanismes de transfert d'un traceur inerte sur le sol pour ensuite étudier ceux du polluant (**Limousin 2006**). On obtient ainsi les paramètres hydrodynamiques indépendamment des paramètres de sorption. La réalisation d'essais de traçage non réactif permet d'estimer plusieurs paramètres hydrodynamiques du sol tels que les vitesses de transport non réactif, les temps de séjour du traceur dans la colonne de sol, les teneurs en eau des colonnes et le taux de restitution du soluté utilisé.

#### III.2. Définition d'un traceur

Un traceur de l'écoulement de l'eau est toute molécule qui se comporte comme la molécule d'eau, c'est à dire qu'elle doit être non réactive, conservative avec la matrice solide et non dégradable (**Lamy 2008 ; Limousin 2006 ; Prado Pano 2006**).

On peut aussi le définir comme une substance inerte que l'on peut introduire en quantité connue dans une eau pour matérialiser les trajectoires des particules présentes dans l'eau ou mesurer des caractéristiques de l'écoulement telles que vitesse d'écoulement, temps de séjour, type d'écoulement (**Lamy 2008 ; Paris Anguela 2004**).

Dans toutes les expériences en colonne rapportées par la littérature, un traceur de l'eau a été employé.

On distingue traditionnellement trois grands groupes de traceurs : les traceurs colorés (fluorescents ou non), les anioniques et les isotopiques. Ces derniers sont de loin les meilleurs traceurs de l'eau car ils sont représentés par la molécule d'eau elle-même. Elle est marquée de diverses façons : par du deutérium ( $^2\text{H}_2\text{O}$ ), du tritium ( $^3\text{H}_2\text{O}$ ) ou de l'oxygène 18 ( $\text{H}_2^{18}\text{O}$ ). L'inconvénient est que le coût des traceurs isotopiques et de leur analyse est élevé et les précautions à prendre lors des expériences sont importantes. Les traceurs anioniques et ceux colorés sont donc les plus souvent utilisés.

Les anions sont considérés comme des « traceurs inertes ». Néanmoins, les traceurs anioniques peuvent ne pas satisfaire à la définition de traceur inerte (ou idéal) car leur charge négative peut interagir avec la matrice solide du sol. Mais la grande majorité des sols de climat froid et tempéré sont chargés négativement (cas des argiles), si bien que de nombreux

anions ne sont pas retenus et présentent un comportement proche de celui de l'eau (**Limousin 2006**).

Les solutés autres que les traceurs inertes ont un comportement qui s'éloigne de celui de l'eau et sont plus ou moins attirés ou repoussés par la phase solide du sol. Ces interactions physico-chimiques peuvent être à l'origine des différences observées entre le transfert des polluants et celui d'un traceur inerte dans les mêmes conditions expérimentales (**Limousin 2006**).

### **III.3. La notion de flux (ou de chemin) préférentiel**

Dans un essai de traçage d'un écoulement dans le sol, une sortie très rapide du traceur est généralement interprétée comme la présence d'écoulements (ou de chemins) préférentiels (**Al Rajab 2007 ; Crosnier 1999**). On peut en déduire dans ce cas que le flux préférentiel accélère le transport de polluants vers les nappes phréatiques et diminue leur rétention dans le sol.

Les écoulements rapides diminuant la rétention des polluants dans le sol, ils fausseraient donc les résultats concernant la rétention des polluants dans les sols. Il est donc important de déterminer leur présence.

L'explication généralement donnée à la présence de flux préférentiels est l'absence d'homogénéité dans la porosité du sol. Le sol a une teneur en eau globale, mais il subsiste localement des différences, liées aux variations locales de porosité. Cette absence d'équilibre affecte la circulation de l'eau dans le sol, qui peut localement s'avérer plus rapide que le mouvement global dans la colonne.

### **III.4. Choix des traceurs**

Les traceurs doivent être conformes à certaines exigences. Ils doivent avoir certaines propriétés telles que (**Schudel 2002 ; Szencknect 2003**) :

- Une bonne stabilité chimique ;
- Une faible tendance à l'adsorption ;
- Une bonne solubilité dans l'eau ;
- Une toxicité nulle ;
- Une limite de détection basse ;
- Un coût de produit et d'analyse peu élevés.

De plus, lors d'essais de traçage, il faut choisir des concentrations et une durée de restitution les plus faibles possibles (**Schudel 2002**).

Les traceurs les plus souvent utilisés sont les traceurs colorés et les traceurs anioniques.

### III.4.1. Les traceurs colorés (ou colorants)

Les traceurs colorés sont principalement utilisés pour visualiser le cheminement d'éventuels polluants dans un sol donné et pour déterminer la présence de flux préférentiels qui accéléreraient le transport des polluants à travers le sol. Ils sont utilisés sur le terrain et en colonnes de sol. Ils ont l'avantage de pouvoir être analysés facilement, par spectrophotométrie UV/Visible.

Les principaux avantages de ces colorants sont :

- Leur faible toxicité ;
- Leur visibilité ;
- Leur faible adsorption sur le sol.

Pour identifier des flux préférentiels lors de l'essai, l'eau colorée qui traverse la colonne par les macroporosités doit garder une coloration bien contrastée par rapport à celle du sol qui l'entoure. Les principaux traceurs colorés utilisés sont le Bleu Brillant (FCF ou de Coomassie), la rhodamine, la pyranine et l'éosine (**Schudel 2002**).

Le Bleu Brillant de Coomassie (également appelé Brilliant Blue G ou Brilliant Blue G 250) est un colorant bleu communément employé comme traceur en biochimie. Il a été aussi utilisé dans quelques travaux rapportés par la littérature comme traceur coloré du sol (**Olayiwola 2009**). C'est celui qui a été utilisé dans la présente étude.

### III.4.2. Les traceurs anioniques

Les traceurs anioniques ou les sels font partie des traceurs classiques utilisés en sciences du sol. Jusqu'à la fin des années 50, le chlorure de sodium était pratiquement le seul traceur utilisé pour une évaluation quantitative (**Schudel 2002**). Comme les cations dans l'eau souterraine sont sujets à l'adsorption et aux échanges ioniques, ce sont donc les anions qui sont utilisés comme traceurs. Comparés aux traceurs colorés, les sels ont une limite de détection moins bonne et un bruit de fond élevé d'origine géologique et humaine. Cela nécessite donc l'injection de grandes quantités de ce type de traceurs pour obtenir des résultats satisfaisants (**Schudel 2002**).

Les traceurs anioniques les plus couramment employés sont les ions  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{Br}^-$  et  $\text{I}^-$ , car de tels anions sont généralement considérés comme étant inertes et conservatifs et ne sont présents dans les sols naturels qu'à de très faibles concentrations (surtout pour les bromures). Leur détection par des méthodes analytiques (analyses chimiques, mesure de la conductivité électrique de la solution à la sortie du dispositif expérimental) est de plus simple et peu coûteuse.

Le bromure est inoffensif sur le plan toxicologique, mais des substances indésirables peuvent se former à partir des bromures en présence de chlore (Schudel 2002).

Les sels qui sont les plus couramment employés comme traceurs sont : NaCl, LiCl, CaCl<sub>2</sub>, NaBr, KBr, NH<sub>4</sub>Br et KI (Schudel et al. 2002).

### III.5. Type et durée du traçage

L'introduction du traceur dans le sol est réalisée classiquement par une injection de type échelon ou créneau de la solution d'alimentation dans la colonne de sol (figure N° 10).

- *L'alimentation échelon* : on applique une alimentation continue d'une solution pour déplacer complètement la phase liquide existant dans la colonne. La zone de mélange de la solution injectée avec la solution du sol se déplace progressivement le long de la colonne. La concentration du traceur dans l'effluent récupéré est d'abord égal à sa concentration dans la solution existant dans le sol, puis augmente jusqu'à atteindre la concentration  $C_0$  de la solution injectée (Calvet 2003).

- *L'alimentation créneau* : on applique une alimentation plus courte que la précédente d'un volume de solution de concentration  $C_0$ . Au cours du déplacement il se produit un mélange entre la solution d'alimentation et la solution déjà présente dans le sol. La concentration de l'éluât est d'abord égale à sa concentration  $C$  dans la solution existant dans le sol, s'accroît jusqu'à atteindre son maximum  $C_0$  (concentration du traceur injectée), puis décroît jusqu'à atteindre de nouveau  $C$  ou devenir nulle (Calvet 2003).

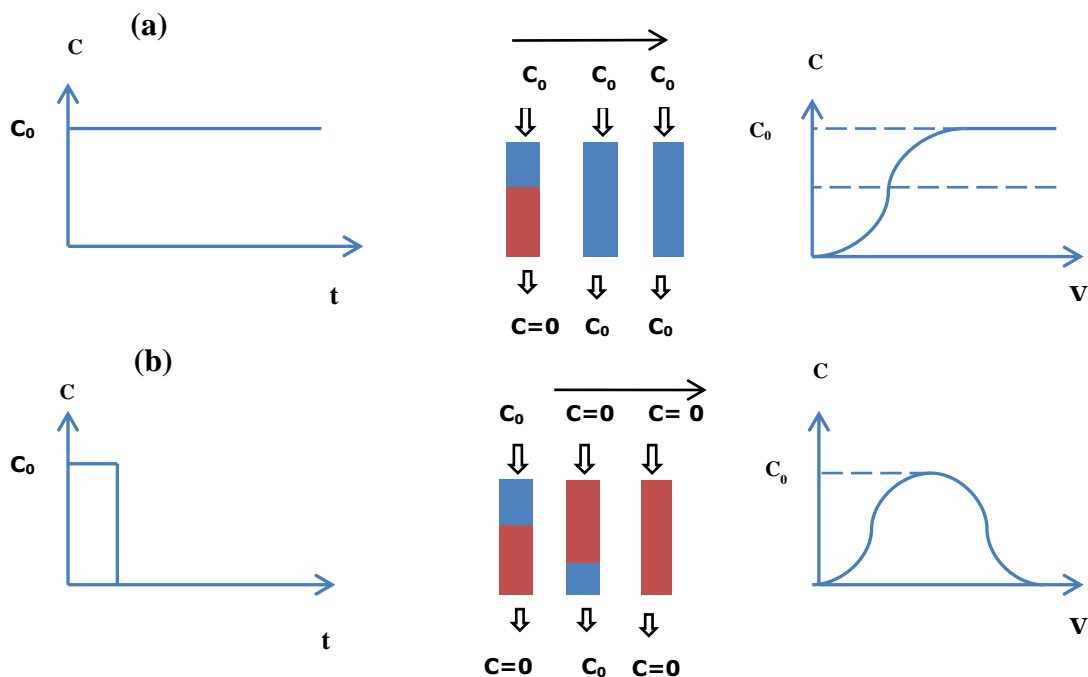


Figure N°10 : Types d'alimentation sur colonne de sol : (a) Echelon ; (b) Créneau (Calvet 2003)

#### **IV. Récapitulatif de dispositifs et de protocoles utilisés dans la littérature**

Dans la littérature, de nombreux dispositifs ont été utilisés pour les études sur colonnes de sol. Si le principe en est le même, ils varient cependant sur le plan de la conception et du fonctionnement : matériaux et dimensions des colonnes, types de sols, mode d'alimentation des colonnes en liquides, mode ascendant ou descendant, contrôle des débits, méthode de répartition du liquide à la surface du sol, protocole de préparation des colonnes.

L'inconvénient majeur qu'il y a lieu de préciser est que très souvent, les auteurs ne donnent pas de détails sur leur dispositif ni sur son fonctionnement et ils ne justifient pas leur choix du type de dispositif. D'où le thème choisi pour le présent travail.

Le tableau N° 5 résume quelques exemples d'essais sur colonnes de sol en mode descendant ; la majorité des travaux cités portent sur des pesticides.

Ces travaux, ainsi que d'autres rapportés dans la littérature, ont servi de point de départ pour la mise au point d'un dispositif adapté aux objectifs visés par la présente étude.

**Tableau N°5** : Récapitulatif de quelques dispositifs et de leurs conditions de fonctionnement en mode descendant

(\* : Essais avec des pesticides ; A : Argiles ; L : Limons)

	Colonne		Sols			Conditions expérimentales			
	Dimension s (cm)	Matériau	Texture (%)	Remanié ou non	Tamissage (mm)	Densité	Humidification et/ou Conditionnement	Débit (mL h <sup>-1</sup> )	Mode d'alimentation
<i>Yra*</i>	<i>H= 30 D= 14</i>	<i>Plexiglas</i>	<i>- A : 20 - A : 6,7</i>	<i>Non remanié</i>	<i>-</i>	<i>1,25 1,4</i>	<i>CaCl<sub>2</sub></i>	<i>21 à 23 18 à 70</i>	<i>Pompe - Aiguilles hypodermiques</i>
<i>Pot*</i>	<i>H= 30 D= 14</i>	<i>Plexiglas</i>	<i>A : 24 L : 40</i>	<i>Non remanié</i>	<i>-</i>	<i>1,25</i>	<i>CaCl<sub>2</sub></i>	<i>11 à 50</i>	<i>Pompe - Aiguilles hypodermiques</i>
<i>Landry*</i>	<i>H= 18 D=15</i>	<i>PVC</i>	<i>- A : 35,0 - A : 39,4</i>	<i>Non remanié</i>	<i>-</i>	<i>-</i>	<i>Eau distillée</i>	<i>240</i>	<i>Pompe péristaltique</i>
<i>Vincent</i>	<i>H= 35 D= 20</i>	<i>PVC</i>	<i>-</i>	<i>Remanié et non</i>	<i>-</i>	<i>-</i>	<i>-</i>	<i>39</i>	<i>Pompe péristaltique</i>
<i>Calderon</i>	<i>H= 20 D = 5</i>	<i>Méthacrylate</i>	<i>- A : 20,4</i>	<i>Non remanié</i>	<i>2</i>	<i>1,2</i>	<i>Eau</i>	<i>Non précisé</i>	<i>Alimentation manuelle après apport du polluant</i>
<i>Siczek*</i>	<i>H= 21,5 D = 20</i>		<i>Sols limoneux</i>	<i>Non remanié</i>	<i>-</i>	<i>1,38-1,62 1,33-1,34</i>	<i>Eau</i>	<i>Lame d'eau de quelques mm</i>	<i>Système d'irrigation</i>
<i>Novak*</i>	<i>H= 18 D= 15</i>	<i>PVC</i>	<i>- Limoneux - Argileux</i>	<i>Remanié</i>	<i>Différentes textures</i>	<i>-</i>	<i>-</i>	<i>Non précisé</i>	<i>Pompe- Arroseur automatique</i>
<i>Lamy</i>	<i>H= 24 D= 10</i>	<i>PVC</i>	<i>Sableux</i>	<i>Remanié</i>	<i>Ente 0,3 et 2</i>	<i>0,51 0,50</i>	<i>NaCl</i>	<i>140</i>	<i>Pompe péristaltique</i>
<i>Dousset*</i>	<i>H= 30 D= 6,3</i>	<i>PVC</i>	<i>Sols argileux</i>	<i>Remanié</i>	<i>1 à 3,15</i>	<i>1,1</i>	<i>Eau distillée</i>	<i>Alimentation manuelle</i>	<i>Lame de 1 cm (mode saturé)</i>
<i>Cox*</i>	<i>H= 20 D = 5</i>	<i>Méthacrylate</i>	<i>A : 55 L : 37</i>	<i>Remanié</i>	<i>2</i>	<i>1,02</i>	<i>CaCl<sub>2</sub></i>	<i>Non précisé</i>	<i>Pompe</i>
<i>Walker*</i>	<i>H= 25 D= 20</i>	<i>Non précisé</i>	<i>Limono- sableux</i>	<i>Non remanié</i>	<i>-</i>	<i>Non précisé</i>	<i>CaCl<sub>2</sub></i>	<i>Non précisé</i>	<i>Exposé à la pluie naturelle après application du polluant</i>
<i>Majumdar *</i>	<i>H= 30 D= 5,9</i>	<i>PVC</i>	<i>A : 12,4 L : 10</i>	<i>Remanié</i>	<i>2</i>	<i>1,44</i>	<i>Eau distillée</i>	<i>100</i>	<i>Percolation - Pompe</i>
<i>Pomerleau</i>	<i>H= 41 D= 10</i>	<i>PVC</i>	<i>Sable silteux</i>	<i>Remanié</i>	<i>-</i>	<i>1,59</i>	<i>Eau distillée</i>	<i>Variables</i>	<i>- Disque poreux – Pores de D= 0,4 mm. - Un trop plein</i>





## CHAPITRE I : Matériels et méthodes

### I. Matériels et produits utilisés

#### I.1. Matériels utilisés

- Verrerie courante de laboratoire
- Balance analytique DENVER INSTRUMENT au 10000<sup>ème</sup> de gramme
- Conductimètre THERMO SCIENTIFIC ORION 3 STAR<sup>TM</sup>
- pH-mètre THERMO SCIENTIFIC ORION 4 STAR<sup>TM</sup>
- Electrode combinée spécifique aux Bromures THERMO SCIENTIFIQUE ORION
- Spectrophotomètre UV/Visible SHIMADZU, UV-mini-1240
- Agitateur à retournement
- Centrifugeuse
- Installation pour filtration sous vide (pompe à vide, Büchner, filtres Millipores 0,45µm)
- Perméamètre à charge constante

#### I.2. Produits chimiques utilisés

- Brilliant Blue G, SIGMA (C.I.42655 Coomassie Brilliant Blue G) C<sub>45</sub>H<sub>44</sub>N<sub>3</sub>O<sub>7</sub>S<sub>2</sub> Na, à 70% ;
- CaCl<sub>2</sub>, 2H<sub>2</sub>O pour analyse, Riedel-de-Haën, pureté : min 99% ;
- KBr, SIGMA-ALDRICH, pureté 99,5 % (0,2% de chlore et 0,005 % de calcium).

### II. Mise au point du dispositif d'étude

L'étude bibliographique a permis de constater la variété et la diversité des dispositifs utilisés pour les études de transfert de solutés dans une colonne de sol. Cela a amené, dans le cadre de ce travail, à mettre au point et à tester deux dispositifs différents, A et B, avec une alimentation en mode descendant, en recherchant la simplicité de mise en œuvre, l'efficacité et un coût peu élevé.

Les parties principales des dispositifs sont : la colonne, le sol, le système d'alimentation en eau de la colonne de sol et de contrôle du débit.

#### II.1. Les colonnes

##### II.1.1. Matériaux des colonnes

Les colonnes peuvent être en verre, acier inoxydable, PVC, plexiglas ou autres (EPA 712-C-

**08-010 2008 ; O.C.D.E. 2004**). Les matériaux des colonnes testés dans le cadre de ce travail sont le plexiglas et le verre.

### II.1.2. Dimensions des colonnes

D'après la littérature, il ressort que le choix des dimensions des colonnes repose sur un compromis entre plusieurs facteurs. On doit assurer une hauteur (L) et un diamètre (D) acceptables pour une facilité de manipulation. De plus, un rapport  $L / D \geq 3$  est recommandé (**Benmahdi 2008; Gabet 2004 ; ISO/DIS 18772 2006 ; Marcos 2001**) afin de limiter les effets de bord (ou effets de parois). Un diamètre suffisant doit limiter l'impact des effets de bords (**Garric 2008**) et une hauteur suffisamment petite doit permettre de procéder à des essais d'une durée relativement courte avec un débit faible simulant la pluie.

Dans la présente étude, le choix des dimensions a été de plus conditionné par la disponibilité des colonnes. Le diamètre de la colonne est un paramètre très important. Les conditions optimales pour un test en colonne sont obtenues pour un diamètre au moins 10 fois supérieur au diamètre des particules (**O.C.D.E. 2004**). Le sol étant tamisé à 2 mm dans ce travail, le diamètre minimal de la colonne est donc de 2 cm.

Deux colonnes de dimensions différentes ont été testées en tenant compte des considérations précédentes et des différents travaux rapportés par la littérature (Tableau N° 5).

- **Pour le dispositif A**, la colonne utilisée est de 5 cm de diamètre et 16,8 cm de hauteur, avec 15 cm de hauteur de sol. Elle est en plexiglas.
- **Pour le dispositif B**, la colonne utilisée est de 2,5 cm de diamètre et 30 cm de hauteur, avec 15 cm de sol. Elle est en verre.

Le rapport  $L / D$  est de 6 pour la petite colonne et de 3 pour la grande colonne, respectant ainsi les recommandations de la littérature.

## II.2. Le sol

### II.2.1. Prélèvements

Plusieurs échantillons ont été prélevés sur une profondeur de 30 cm dans un champ agricole de la région d'Alger (plaine de la Mitidja), puis mélangés pour constituer un échantillon moyen représentatif (**Oukali-Haouchine 2011**).

### II.2.2. Traitements préliminaires et préparation

Le sol a été séché à l'air libre, à la température ambiante, afin d'abaisser son humidité. Il a ensuite été homogénéisé et passé au tamis à 2 mm, puis analysé pour le caractériser.

Une taille des grains de 2 mm a été choisie parce que c'est la fraction fine du sol à laquelle sont effectuées les analyses chimiques de caractérisation du sol. Les résultats dérivant des expériences en colonnes peuvent ainsi être comparés aux propriétés chimiques du sol. Cette fraction du sol est aussi connue pour être celle qui réagit le plus avec les solutés et où l'adsorption est la plus importante (Fevrier 2001 ; Sebih 2008).

Les principales caractéristiques physico-chimiques du sol utilisé au cours de cette étude sont rapportées dans le tableau N° 6.

**Tableau N° 6 : Caractéristiques physico-chimiques du sol (Oukali-Haouchine 2011 ; Saiba 2008)**

Constituants	Teneur (%) / Valeurs
<i>Argile</i>	39,45
<i>Limon</i>	40,33
<i>Sable</i>	20,22
<i>Matières Organiques</i>	3,01
<i>Carbone Organique</i>	1,75
$pH_{eau}$	7,45
$\rho_s$	1,49

D'après le triangle des textures, il s'agit d'un sol de type *argilo-limoneux*.

### II.2.3. Disposition du sol dans les colonnes

Le sol dans la colonne repose sur deux filtres fins en plastique rigide, entre lesquelles est introduit un tissu en nylon très fin pour empêcher la perte de particules de sol. Ces derniers sont maintenus par un filtre extérieur en nylon, lui-même maintenu à la colonne par un anneau de serrage. Une couche de sable est introduite au fond de la colonne. Afin d'éviter le transport des particules fines de sol, les deux couches sol/sable sont séparées par un filtre fin en plastique.

### II.3. Le système d'alimentation

L'alimentation peut être en mode ascendant ou descendant selon la littérature (Tableau N° 5). Pour ce travail, le mode descendant a été choisi car il permet de mieux se rapprocher des conditions sur terrain ; bien que le mode ascendant permette d'éviter d'avantage les flux préférentiels dans la colonne (ISO/DIS 18772 2006).

Par ailleurs, deux types d'appareils sont utilisés en général pour assurer une alimentation uniforme sur une surface plus ou moins grande, sans saturer la colonne:

- Les simulateurs à pulvérisateurs où l'eau est envoyée sous pression pour la pulvériser en gouttes imitant les pluies naturelles. Ces derniers sont utilisés pour les mesures sur terrain.
- Les systèmes à goutteurs pour lesquels l'eau s'écoule d'un récipient fermé par un grand nombre de goutteurs. Ces derniers peuvent être :
  - Des tubes en verre, plastique ou métal;
  - Des trous percés dans une plaque en plexiglas ;
  - Des aiguilles hypodermiques fixées dans un support fermé.

Chaque goutteur produit des gouttes d'une même dimension, sans pression initiale. Seule la force de gravité permet leur descente.

Dans le cadre de cette étude, le système à goutteurs a été adopté.

#### II.3.1. Pour le dispositif A (Figures N° 11 et N° 12)

Devant l'impossibilité d'utiliser une pompe péristaltique pour le réglage des faibles débits nécessaires pour ce travail (simulation de la pluie), un système hydraulique basé sur le principe du vase de Mariotte a été mis au point pour alimenter la colonne de sol.

Le système d'alimentation comprend différentes parties :

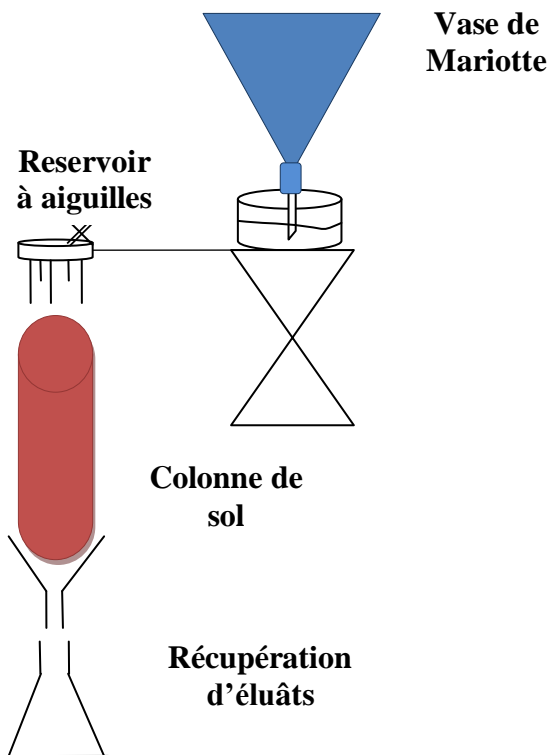
- Un vase de Mariotte en verre contenant la solution d'alimentation ;
- Un système à goutteur pour asperger la surface du sol de manière homogène afin de ne pas créer des chemins préférentiels. Il est composé d'aiguilles hypodermiques incrustées de façon hermétique au fond d'un réservoir ;
- Un système de réglage du débit d'alimentation composé du réservoir servant de support aux aiguilles, relié au système du vase de Mariotte, qui a permis de garder un débit relativement stable.

### *Le système de réglage du débit d'alimentation*

Le système de répartition de l'eau est un système à goutteurs constitué d'aiguilles hypodermiques (aiguilles médicales) incrustées hermétiquement dans le réservoir qui les soutient. Ce dernier est pourvu d'une vanne de purge (le réservoir doit être étanche). Une fois rempli de la solution d'alimentation, on purge l'air piégé à l'intérieur. Le but est de faire le vide en air à l'intérieur pour qu'uniquement la lame d'eau qui s'y trouve contribue au débit des aiguilles.

Le réservoir à aiguilles est alimenté par un vase de Mariotte dont le niveau d'eau est au même niveau hydrostatique que le réservoir supportant les aiguilles. Ce système permet de garder un débit d'alimentation constant durant les essais.

La figure N° 11 schématise le dispositif A et la figure N° 12 en donne une photographie.



**Figure N° 11** : Schéma du dispositif A



**Figure N° 12** : Photo du dispositif A

Le débit d'alimentation est contrôlé par la quantité d'aiguilles utilisées pour l'alimentation, leur diamètre interne, le diamètre du tuyau qui relie le vase de Mariotte au réservoir à aiguilles ainsi que la hauteur d'eau dans ce dernier. Pour que le débit soit faible, il faut que tous ces paramètres soient

aussi faibles que possibles. Les aiguilles ont 0,4 mm de diamètre interne, le tuyau utilisé pour relier le vase de Mariotte au réservoir à aiguilles est en PVC et a un diamètre interne de 2 mm.

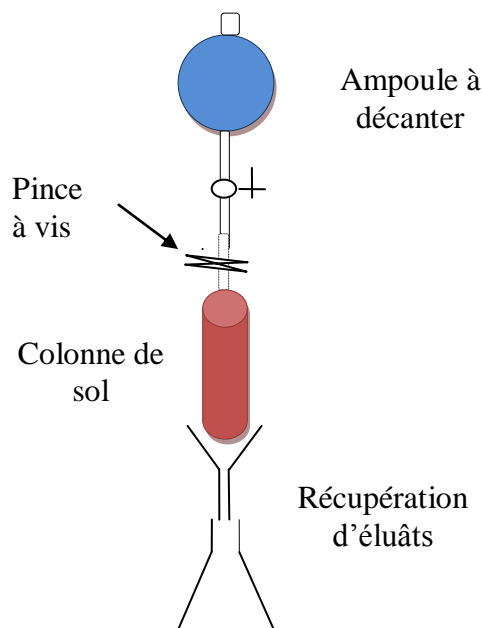
La colonne remplie de sol est insérée, en la soutenant avec un statif, dans le montage expérimental qui contient déjà le système d'alimentation et de récupération des percolâts. Le haut de la colonne reste ouvert et est donc à la pression atmosphérique.

Les eaux de drainage (percolâts) sont récupérées, à intervalles de temps réguliers, à travers un entonnoir dans une burette graduée et sont conservés au réfrigérateur dans des flacons hermétiquement fermés jusqu'à analyse.

Après chaque essai, les colonnes sont lessivées avec de l'eau distillée pour enlever complètement toute trace du soluté utilisé dans la solution d'alimentation.

### II.3.2. Pour le dispositif B

L'alimentation se fait grâce à une ampoule à décanter accrochée à un statif de laboratoire. Un tube en PVC a été relié à l'extrémité inférieure de l'ampoule et une pince permet de diminuer le débit de l'ampoule (Figures N° 13 et N° 14).



**Figure N° 13:** Schéma du dispositif B



**Figure N° 14 :** Photo du dispositif B

Les percolâts sont récupérés à intervalles de temps réguliers dans une burette graduée placée en dessous de la colonne.

La colonne remplie de sol sur une hauteur de 15 cm est préparée et équipée de la même façon que pour le dispositif A.

### III. Méthodes

#### III.1. Préparation des colonnes de sol pour les essais de percolation

Les techniques de préparation des colonnes de sol rencontrées dans la littérature comportent pratiquement toutes les mêmes étapes. Elles consistent en un traitement préalable du sol, un remplissage de la colonne, une phase de saturation suivie éventuellement d'un drainage de la colonne et enfin une phase de conditionnement, avant de passer aux essais de transferts de solutés dans la colonne de sol.

##### III.1.1. Préparation du sol

Comme décrit précédemment, cette étape consiste d'abord à sécher le sol à l'air libre et à le débarrasser de tout ce qui est débris et pierres. La phase suivante consiste à broyer délicatement les mottes qui le constituent pour ne pas trop modifier la structure du sol. Il est enfin tamisé à 2 mm.

##### III.1.2. Remplissage des colonnes avec le sol

Les colonnes sont remplies par une quantité connue du sol séché à l'air libre (donc à teneur en eau réduite) et tamisé à 2 mm, sur une hauteur de 15 cm. La masse volumique du sol en colonne est alors déduite.

La technique de remplissage adoptée est la suivante : la colonne est pesée sans sol, puis une quantité de sol passe par un entonnoir et est introduite dans la colonne par ajouts successifs et réguliers d'une même quantité de sol, donnant une même hauteur dans la colonne de 2,5 cm à chaque fois. Après chaque ajout, la colonne est tapotée modérément sur la paille, de manière à tasser très légèrement le sol. Le volume total que le sol occupe est donc de  $294,375 \text{ cm}^3$ .

Le tassement du sol (compacité) dans la colonne est une phase très importante, car il influence directement les paramètres hydrodynamiques de la colonne. Différentes masses volumiques de la colonne de sol ont été testées, en procédant à des degrés de compactage de plus en plus faibles, pour éviter des problèmes de colmatage de la colonne de sol. Le sol étudié est en effet très argileux, donc relativement peu perméable.

Les principales caractéristiques des argiles qui sont en relation avec la capacité d'adsorption ou de rétention de solutés, sont leur grande surface spécifique et leur capacité d'échange ionique. L'importance de leur surface d'adsorption est due à leur structure en feuillets (Al Rajab 2007). L'échange ionique est un mécanisme prépondérant pour les argiles (Marcos 2001) ; leur charge leur

donne une grande capacité à échanger des ions. Initialement les petites particules d'argiles peuvent se présenter à l'état dispersé ou à l'état floculé, selon la nature et la concentration de cations présents dans le milieu. Dans le cas de particules dispersées, et sous l'action d'une alimentation en eau ou en soluté, les petites particules de sol se repositionnent et la macroporosité diminue. Le sol s'affaisse et cela conduit à un colmatage (**Al Rajab 2007 ; Marcos 2001**).

### **III.1.3. Mise en eau (ou humidification) des colonnes de sol**

La mise en eau se fait durant 24 heures, par capillarité, en disposant le bas de la colonne dans un récipient contenant une solution de chlorure de calcium  $\text{CaCl}_2$   $10^{-2}$  M, en accord avec plusieurs études bibliographiques (**Duwig 2009 ; EPA 712-C-08-010 2008 ; ISO/DIS 18772 2006; O.C.D.E. 2004**). Le but principal de cette phase est de chasser au maximum l'air qui est contenu dans la colonne, afin d'éviter la formation de flux préférentiels durant les essais. Le haut de la colonne reste ouvert à la pression atmosphérique. Cette phase d'humidification peut être considérée comme étant une saturation naturelle, bien qu'il soit impossible d'atteindre la saturation totale par la présente méthode.

### **III.1.4. Drainage des colonnes de sol**

Un drainage des colonnes suit l'étape précédente et permet d'atteindre un état où il n'y a plus d'écoulement (donc, plus de perte de masse). On peut donc supposer que la colonne a atteint un état d'équilibre hydrostatique, c'est-à-dire que la charge en eau dans le sol est constante (**Siczek et al. 2008 ; Novak et al. 2000 ; Majumdar et Singh 2007**). Cette phase de drainage ne libère que la macroporosité, la microporosité et la mésoporosité restant occupées par la solution.

### **III.1.5. Conditionnement des colonnes de sol**

Une phase de conditionnement de la colonne est réalisée en alimentant la colonne de sol par le haut avec une solution de  $\text{CaCl}_2$   $10^{-2}$  M jusqu'à obtention d'un régime d'écoulement permanent (débit d'élution et teneur en eau du sol constants). La colonne est alors considérée à l'équilibre et, après cette étape, les expérimentations peuvent commencer (**Duwig 2009; EPA 712-C-08-010 2008; O.C.D.E. 2004; Vincent 2003**).

La solution de  $\text{CaCl}_2$  permet d'éviter la migration des petites particules d'argiles et aident ainsi à conserver la structure du sol lors de la percolation tout en limitant les risques de colmatages (**Benmahdi 2008 ; ISO/DIS 18772 2006**). Elle permet aussi de se rapprocher de la force ionique de la solution du sol sur le terrain (**ISO/DIS 18772 2006**).



Cette étape est aussi une étape de «conditionnement chimique» qui permet de s'assurer de l'équilibre chimique entre la solution de traçage de composition chimique constante et le sol (**Mazet 1992**).

La solution est injectée au dessus de la colonne avec le même débit que celui utilisé pour l'essai de traçage. Ce dernier ne commence qu'à partir de ce moment.

### **III.2. Protocole des essais de traçage de l'écoulement**

#### **III.2.1. Solutions d'alimentation**

Les essais de traçage ont été effectués avec une alimentation en continu de 2 litres pour la colonne du dispositif A et 1,2 litre pour la colonne du dispositif B. Ils ont duré une semaine chacun. La durée de l'essai dépend du débit, des dimensions de la colonne, de la structure du sol et du but de l'étude. La durée, en moyenne, peut être de 3 à 4 semaines, selon la norme ISO/TS 21268-3 (**ISO/DIS 18772 2006**).

Pour des raisons pratiques et de disponibilité, le choix s'est porté sur trois traceurs dans le cadre du présent travail: le Bleu Brillant de Coomassie (qui est un colorant visuel mais dont on peut suivre l'éluion par spectrophotométrie UV-Visible (**Duwig 2009**), les ions chlorures et les ions bromures. Ces deux derniers ont été largement utilisés d'après la bibliographie.

Pour les essais de traçage aux ions chlorures, la solution de  $\text{CaCl}_2$  injectée est à  $5 \cdot 10^{-2} \text{ mol L}^{-1}$  (pour la distinguer de la concentration de  $10^{-2} \text{ mol L}^{-1}$  utilisée pour le conditionnement de la colonne). La même concentration est utilisée pour l'essai de traçage aux ions bromures.

Pour les essais de traçage au Bleu Brillant de Coomassie, la solution préparée est à  $0,5 \text{ g L}^{-1}$ . C'est la concentration correspondant à la solubilité maximale du produit dans de l'eau distillée, dans les conditions de l'expérience.

#### **III.2.2. Mesure de la teneur en eau du sol dans les colonnes**

La teneur en eau des colonnes de sol est fixée par le taux de remplissage obtenu à l'aide du protocole d'humidification. Elle est déduite d'une succession de pesées de ces dernières durant les phases de préparation et de l'essai de traçage et elle est influencée par le type de colonne (fermée ou ouverte à la pression atmosphérique), le protocole d'humidification et le type de sol.

La colonne vide est préalablement pesée ( $M_0$ ). Une fois remplie de sol, elle est pesée de nouveau ( $M_1$ ). La colonne est immergée dans une solution de  $\text{CaCl}_2$   $10^{-2} \text{ M}$ , et ce, jusqu'à l'obtention d'un poids constant indiquant que l'humidification est complète.

La colonne est, de nouveau, pesée ( $M_2$ ). On laisse le temps à l'eau gravitaire de s'écouler. On pèse ensuite jusqu'à masse constante indiquant que toute l'eau gravitaire s'est écoulée. La colonne est alors pesée de nouveau ( $M_3$ ). Elle est encore une dernière fois pesée à la fin de l'essai de traçage ( $M_4$ ). Ces différentes pesées permettent de déterminer la teneur en eau de la colonne après humidification et durant l'essai.

Les teneurs en eau et d'autres paramètres qui en découlent (masse volumique, densité, volume de pore), permettent de caractériser chaque essai à part et de déduire dans quelles conditions hydrostatiques il a été réalisé (**Fevrier 2001 ; Lamy 2008 ; Prado Pano 2006**).

### *Teneur en eau initiale du sol*

La teneur en eau massique initiale (ou naturelle) du sol est déterminée par séchage du sol en étuve durant 24 h à 105 °C, sur deux portions de 10 g du prélèvement. Des pesées régulières sont alors faites jusqu'à poids constant. Cette valeur est indispensable pour l'évaluation de la teneur en eau totale de la colonne de sol.

### **III.2.3. Principe des expérimentations de percolation**

Après la préparation des colonnes de sol et la mesure de leur teneur en eau, les essais de percolation peuvent alors commencer. Ils consistent en l'injection d'une quantité de soluté de volume choisi et en la récupération des éluats à un volume et un intervalle de temps réguliers.

Au début de chaque essai, on réalimente le vase de Mariotte avec la quantité de soluté choisie pour l'essai en question. Après avoir rempli en eau le réservoir à aiguilles de la solution d'alimentation (en haussant le niveau du système de Mariotte ou au contraire en baissant le niveau du réservoir soutenant les aiguilles d'alimentation), la purge du réservoir qui porte les aiguilles d'alimentation est effectuée. Une fois la purge faite, on ferme le robinet de purge et on remet rapidement le dispositif à son niveau de départ. La réussite de l'essai dépend en partie de ces étapes. Le débit est de nouveau rapidement vérifié, on commence alors à suivre les percolâts.

Le volume utilisé pour l'alimentation est en général évalué par rapport au volume de pore (volume d'eau contenu dans la colonne). Les courbes d'éluion sont alors tracées en unités adimensionnelles (rapports  $C/C_0$ ,  $V/V_0$ ) ou encore par rapport au temps d'éluion.

### **III.2.4. Analyse des éluats récupérés**

**Pour le Bleu de Coomassie :** l'analyse s'est faite par spectrophotométrie UV-Visible.

**Pour les ions chlorures :** L'analyse des chlorures a été réalisée d'une part par dosage volumétrique, en utilisant la méthode de titrage volumétrique de Mohr (**Prado Pano 2006**) et d'autre part par la mesure de la conductivité électrique des éluâts.

**Pour les ions bromures :** ils ont été dosés d'une part avec une électrode spécifique aux ions bromures et d'autre part par la mesure de la conductivité électrique des éluâts.

**Pour la métribuzine :** L'analyse a été faite par HPLC.

### III.2.5. Récapitulatif du protocole expérimental

Les essais de traçage pratiqués lors de cette étude se sont donc déroulés selon les étapes suivantes:

- Au début, la colonne est humidifiée, drainée et conditionnée avec une solution de  $\text{CaCl}_2$  0,01M ;
- Ensuite la solution contenant le traceur ou le polluant de concentration  $C_0$  est injectée sous forme d'une injection échelon jusqu'à ce que la concentration en sortie de colonne,  $C$ , soit pratiquement identique à la concentration d'entrée initiale :  $C/C_0 = 1$ . Ceci se vérifie sur la courbe de percée. La colonne est alors saturée en soluté et le tracé obtenu est appelé front d'adsorption (ou courbe de percée) (**Benmahdi 2008 ; Prado Pano 2006**).

D'après tous les essais préliminaires qui ont été faits, on a constaté que les paramètres clés qui contrôlent les essais en colonnes de sol sont :

- La nature du sol dans la colonne,
- Les dimensions de la colonne,
- La procédure de remplissage (compacité du sol),
- La teneur en eau du sol,
- Le débit d'alimentation,
- La durée de l'essai,
- La force ionique du milieu poreux,
- Le matériau de la colonne.

## CHAPITRE II : Recherche des conditions expérimentales optimales d'étude- Résultats

### I. Essais préliminaires

Différents essais préliminaires ont été réalisés avec les dispositifs A et B.

#### I.1. Dispositif A

Plusieurs essais sur sol sec, puis sur sol humide, ont permis de fixer certains paramètres tels que le débit d'alimentation et la densité des colonnes de sol. Les problèmes de colmatage de la colonne de sol rencontrés durant certains de ces essais préliminaires ont en quelque sorte imposés la hauteur de sol adoptée dans la colonne et la densité de la colonne de sol. Les paramètres étudiés sont donc l'humidité du sol (sol sec puis sol humide), les dimensions de la colonne, la hauteur de sol dans la colonne, la densité de la colonne de sol et le débit d'alimentation.

Les premières expériences ont consisté à alimenter une colonne remplie de sol sec, ensuite de sol humide, à des débits différents, avec des hauteurs de sol différentes et des densités de sol différentes pour étudier l'influence de ces différents paramètres sur la percolation et noter toutes les observations.

Les essais sur sol sec ont été faits au départ, bien que la littérature stipule la nécessité de procéder à l'humidification du sol pour la réussite des expérimentations. Ces essais se sont effectivement avérés, dès le début, non concluants, confirmant les conseils donnés dans la littérature, du fait que la colonne de sol se colmatait rapidement.

Des essais sur colonne humidifiée ont alors été effectués en faisant varier les différents paramètres. Un récapitulatif de ces essais préliminaires sur sol humide est rapporté dans le tableau N° 7.

Les deux derniers essais cités dans le tableau ci-dessous montrent l'importance du drainage par rapport au sol étudié. Dans les essais qui vont suivre, les colonnes de sols ont donc été drainées (ou ressuyées), c'est à dire que l'on a laissé l'eau gravitaire s'écouler. Ce sol est à une teneur en eau résiduelle au drainage appelée « Capacité au champ » (**Garric 2008**).

La capacité au champ est définie comme étant l'eau retenue après une période de pluie et un ressuyage de deux ou trois jours. C'est l'eau capillaire augmentée d'une fraction d'eau de gravité à écoulement lent (**Crosnier 1999 ; Guimont 2005**).

**Tableau N°7** : Récapitulatif des essais préliminaires pour la mise au point du protocole des essais de percolation sur le sol étudié (Dispositif A)

<i>Solution utilisée pour la percolation</i>	<i>Masse volumique du sol en colonne (g cm<sup>-3</sup>)</i>	<i>Hauteur de sol (cm)</i>	<i>Débit (mL min<sup>-1</sup>)</i>	<i>Observations sur la colonne</i>
<i>Eau pour humidification de la colonne par capillarité et percolation</i>	1,75	25	1	<i>Colmatage de la colonne de sol</i>
<i>Eau pour humidification de la colonne et percolation</i>	1,49	25	1 à 0,7	
<i>Eau pour humidification de la colonne et percolation</i>	1,29	25 à 15	0,7	
<i>Eau pour humidification de la colonne et CaCl<sub>2</sub> 0,01 M pour percolation</i>	1,29	15	0,6	
<i>CaCl<sub>2</sub> 0,01 M pour humidification de la colonne et percolation</i>	1,50	15	0,6	
<i>CaCl<sub>2</sub> 0,01 M pour humidification de la colonne et percolation</i>	1,40	15	0,5	
<i>CaCl<sub>2</sub> 0,01 M pour humidification de la colonne et percolation</i>	1,40	15	0,38	
<i>CaCl<sub>2</sub> 0,01 M Pour humidification de la colonne et percolation</i>	1,40	15	0,38	<i>Colmatage</i>
<i>CaCl<sub>2</sub> 0,01 M Pour humidification de la colonne, drainage et percolation</i>	1,40	15	0,38	<i>Pas de colmatage</i>

## I.2. Dispositif B

Le réglage du débit s'est avéré difficile. Un débit très faible, de l'ordre de 0,2 mL min<sup>-1</sup>, a dû être fixé pour éviter le problème de formation de lame d'eau au-dessus de la surface du sol. Mais durant la percolation, les variations du débit étaient trop grandes, devenant nul durant la nuit. Un seul essai

a pu être réalisé avec le dispositif B. Ce dispositif a donc été abandonné et tous les essais de traçage ultérieurs ont été effectués avec le dispositif A.

Pour les essais avec la colonne A, il y a lieu de signaler que :

- Le volume d'eau ou de soluté qui se trouve dans les tuyaux, la couche de sable et les grilles est un volume mort. Il reste néanmoins assez faible, par rapport au volume qui circule, pour être négligé.

- Il faut surveiller régulièrement l'étanchéité du réservoir soutenant les aiguilles d'alimentation. Sans cela, le débit est modifié.

- Il faut vérifier que toutes les aiguilles qui doivent débiter ne sont pas colmatées (amorçage des aiguilles). Ce facteur est maîtrisable une fois que les problèmes d'étanchéité et de stabilisation du débit ont été réglés. L'eau qui rentre dans le réservoir doit automatiquement sortir par les aiguilles à travers un nombre d'aiguilles inférieur ou égal à l'existant et à une vitesse stable.

- Il est nécessaire de faire subir au sol des traitements préliminaires: le séchage, le broyage, le tamisage, éventuellement le compactage, ce qui modifie son comportement par rapport au terrain. Il est donc impossible de reproduire les conditions du milieu naturel (biologiques, hydrodynamiques,).

- La reproductibilité exacte des essais sur colonnes était difficile. Les essais faits successivement l'un après l'autre donnent une teneur en eau des colonnes et une porosité qui ne sont pas exactement les mêmes. Ceci est confirmé dans plusieurs références bibliographiques (**Blanchard 2000 ; Fevrier 2001**). Le fait d'utiliser la même colonne successivement pour procéder aux différents essais, au lieu de travailler sur plusieurs colonnes identiques a été une contrainte au cours de ce travail.

## II. Essais de traçage de l'écoulement dans le sol

Toutes ces expériences préliminaires ont permis de mettre au point le protocole expérimental pour les essais de traçage et de transfert de solutés dans le sol étudié décrit précédemment.

- Pour le dispositif A, le débit adopté pour les premiers essais a donc été  $0,38 \pm 0,03 \text{ mL min}^{-1}$ . Pour les essais ultérieurs, le débit d'alimentation a été diminué à  $0,28 \pm 0,03 \text{ mL min}^{-1}$ .

Le fait d'avoir été contraint de travailler à des débits différents selon les expérimentations pour éviter les problèmes de colmatage dû à la grande proportion d'argile du sol étudié, a limité les possibilités de comparaison de certains résultats.

- Pour le dispositif B, le réglage du débit s'est avéré également difficile. Un débit de l'ordre de  $0,2 \text{ mL min}^{-1}$  a dû être fixé pour éviter le problème de formation de lame d'eau au-dessus de la

surface du sol. Mais durant l'essai de percolation, la variation du débit était malgré tout grande et a perturbé l'essai. Le débit devenait nul durant la nuit. Le dispositif B a dû être abandonné.

## CHAPITRE III : Résultats

### I. Conductivité hydraulique et teneur en eau initiale du sol

#### I.1. Conductivité hydraulique

- Les valeurs de conductivité hydraulique à saturation ( $K_s$ ) obtenues pour le sol étudié sont rapportées dans le tableau N° 8.

**Tableau N° 8 :** Conductivité hydraulique ( $K_s$ ) du sol mesurée à charge constante

SOLUTIONS	$K_s$ (cm h <sup>-1</sup> )
Eau distillée	3,427
Solution CaCl <sub>2</sub> 10 <sup>-2</sup> M	23,667
Solution KBr 10 <sup>-2</sup> M	25,640

Ces valeurs sont comparables à celles indiquées dans la littérature pour les sols limono-argileux considérés comme semi-perméables (Calvet 2003; Renard 2010).

#### I.2. Teneur en eau initiale

- Pour la teneur en eau initiale, les résultats obtenus sur deux échantillons du sol étudié sont rapportés dans le tableau N° 9.

**Tableau N° 9 :** Teneur en eau massique initiale du sol étudié

	Teneur en eau initiale (%)
$W_1$	5,42
$W_2$	5,65
$W_{moyen}$	5,53

La teneur en eau massique initiale est donc de 5,53 ; soit 0,055%. C'est la teneur en eau du sol introduit dans la colonne.

### II. Résultats des essais de traçage de l'écoulement

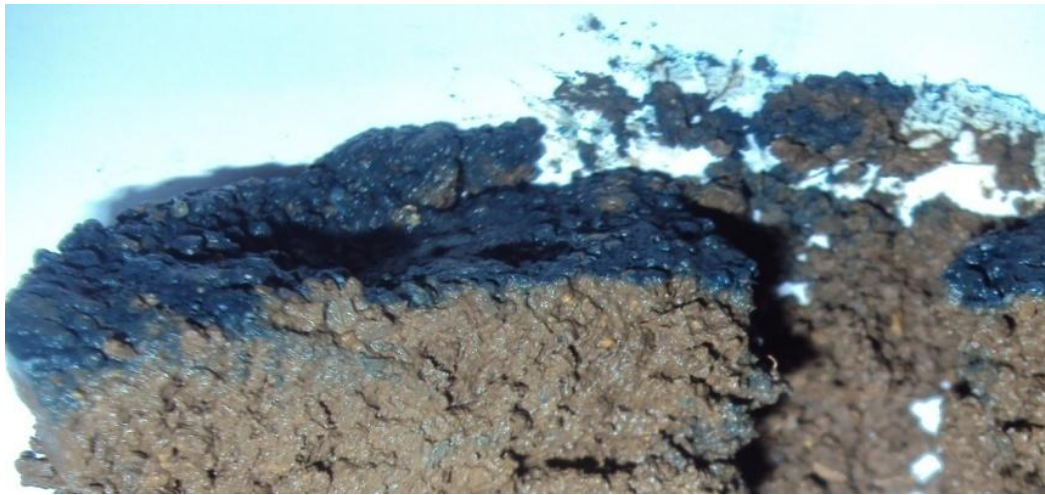
#### II.1. Essais de traçage au Bleu Brillant de Coomassie sur le dispositif A

Pour mettre en évidence visuellement la présence d'écoulements préférentiels dans le sol, une expérience de percolation sur colonne de sol (dispositif A) d'eau colorée au Bleu Brillant de Coomassie a été réalisée.



Une solution de 1200 mL de Bleu de Coomassie à  $0,5 \text{ g L}^{-1}$  a alimenté la colonne après atteinte de son état d'équilibre. Des éluats ont été récupérés et conservés jusqu'à analyse.

Le sol a été extrait délicatement de la colonne à la fin de l'essai. La colonne de sol a été coupée en deux dans le sens de la hauteur. Cela a permis ainsi d'observer la répartition de la couleur bleue sur les parois de la colonne de sol et à l'intérieur. Les photographies correspondantes sont rapportées sur les figures N° 15 à 18.



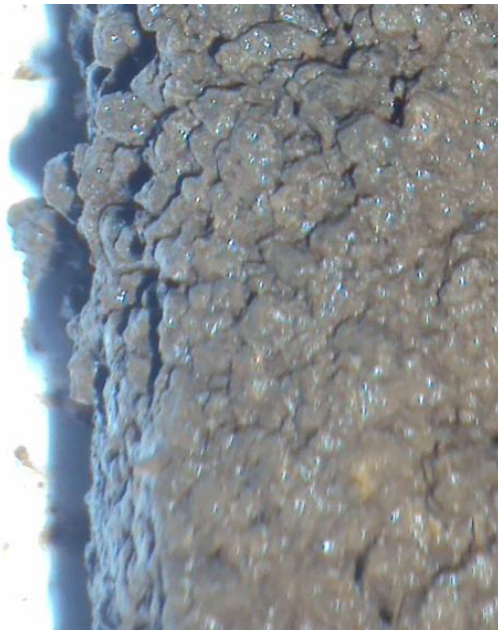
**Figure N° 15 :** Surface de la colonne de sol percolée au Bleu de Coomassie (Vue 1)



**Figure N° 16 :** Surface de la colonne de sol percolée au Bleu de Coomassie (Vue 2)



**Figure N° 17 :** Paroi et intérieur de la colonne de sol percolée au Bleu de Coomassie



**a/**

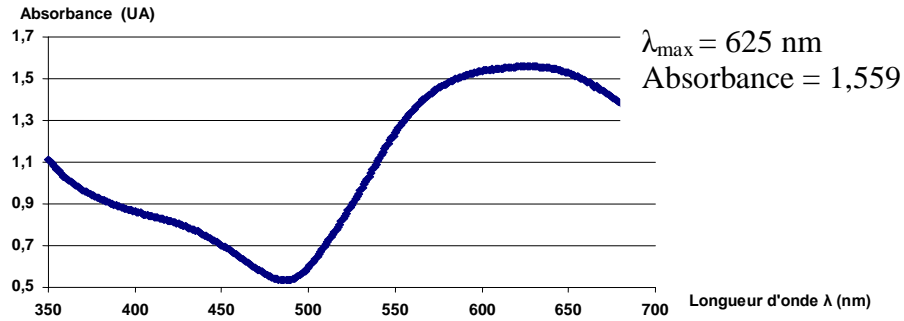


**b/**

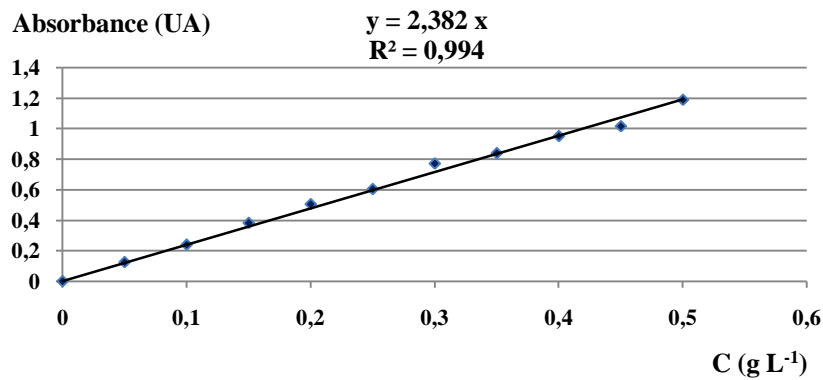
**Figure N° 18 :** **a/** Paroi et **b/**intérieur de la colonne de sol percolée au Bleu de Coomassie

En parallèle, le spectre d'absorption du Bleu de Coomassie, réalisé à l'aide du spectrophotomètre UV / Visible, a révélé une absorption maximale à  $\lambda = 625 \text{ nm}$  (Figure N° 19).

La courbe d'étalonnage est représentée sur la figure N° 20.

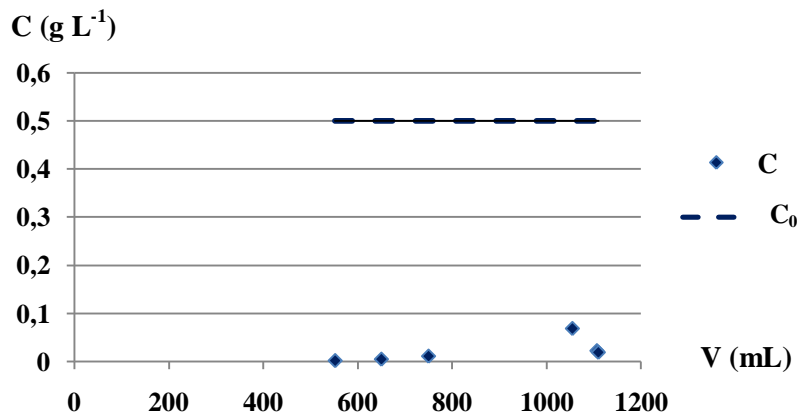


**Figure N° 19 :** Spectre d'absorbance visible du Bleu Brillant de Coomassie



**Figure N° 20 :** Courbe d'étalonnage du Bleu Brillant de Coomassie ( $\lambda = 625 \text{ nm}$ )

La figure N° 21 représente la courbe de percée lors du traçage dans le sol au Bleu de Coomassie.



**Figure N° 21:** Courbe de percée du Bleu Brillant de Coomassie lors du traçage sur le dispositif A

### *Interprétation des résultats de l'essai au Bleu Brillant de Coomassie*

Les photos montrent que tout le sol s'est imprégné de la solution de Bleu de Coomassie. On peut observer néanmoins une couleur bleue accentuée sur la surface de la colonne de sol, à travers quelques fissures aux tous premiers centimètres de la surface du sol et le long des parois.

Par ailleurs, la concentration maximale obtenue dans les éluâts est de  $0,068 \text{ g L}^{-1}$ , soit 13,6% de la concentration initiale introduite qui est de  $0,5 \text{ g L}^{-1}$ . Ce résultat n'est pas surprenant car les photos montrent clairement la rétention du Bleu Brillant de Coomassie sur tout le sol. Le Bleu Brillant de Coomassie est donc très adsorbé sur le sol et ne peut alors être utilisé, dans le cas du sol étudié, que pour un effet visuel des flux préférentiels.

## **II.2. Essais de traçage aux ions chlorures**

### **II.2.1. Avec le dispositif B**

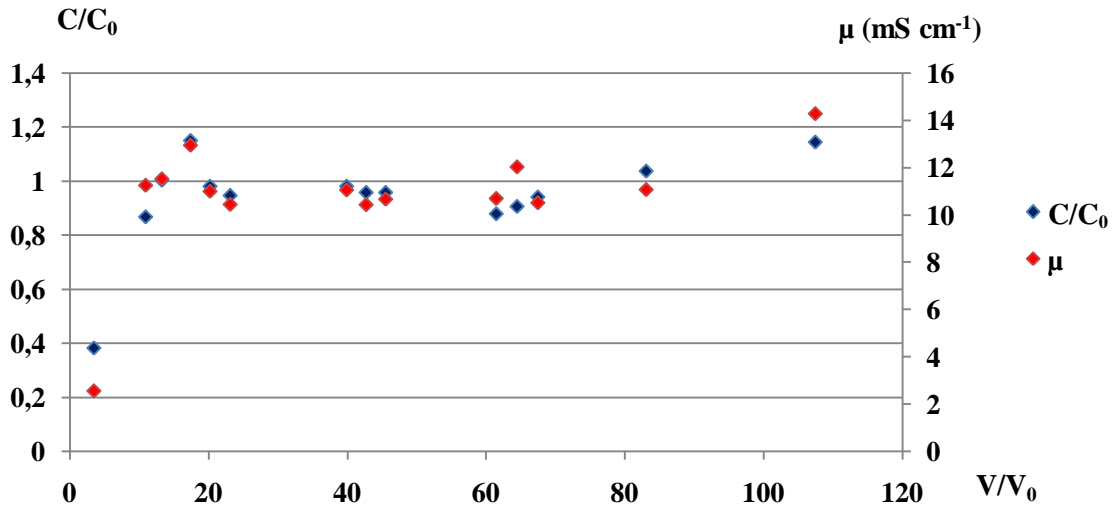
La colonne a été alimentée avec une solution de  $\text{CaCl}_2$  à un débit initial d'environ  $0,2 \text{ mL min}^{-1}$ . Les conditions hydrodynamiques de cet essai sont réunies dans le tableau N° 10.

**Tableau N° 10** : Paramètres hydrodynamiques du sol lors du traçage aux chlorures (Dispositif B)

<b><math>\rho_{\text{colonne de sol}}</math> (<math>\text{g cm}^{-3}</math>)</b>	1,732
<b>W durant l'essai (%)</b>	8,40
<b><math>\theta</math> durant l'essai (%)</b>	14,55
<b>Volume de pore (<math>\text{cm}^3</math> ou mL)</b>	10,67

La figure N° 22 montre l'allure des courbes d'éluution obtenues durant cet essai.

Elles indiquent une bonne restitution des ions chlorures. Néanmoins, l'essai sur le dispositif B n'a pas été concluant car le débit fluctuait beaucoup durant l'essai et devenait presque nul durant la nuit. Le dispositif B n'a donc pas été utilisé pour les essais suivants.



**Figure N° 22 :** Courbes d'élution des ions chlorures dosés respectivement par la méthode de Mohr et par mesure de la conductivité électrique, lors du traçage avec le dispositif B (Débit d'alimentation :  $0,2 \text{ mL min}^{-1}$ )

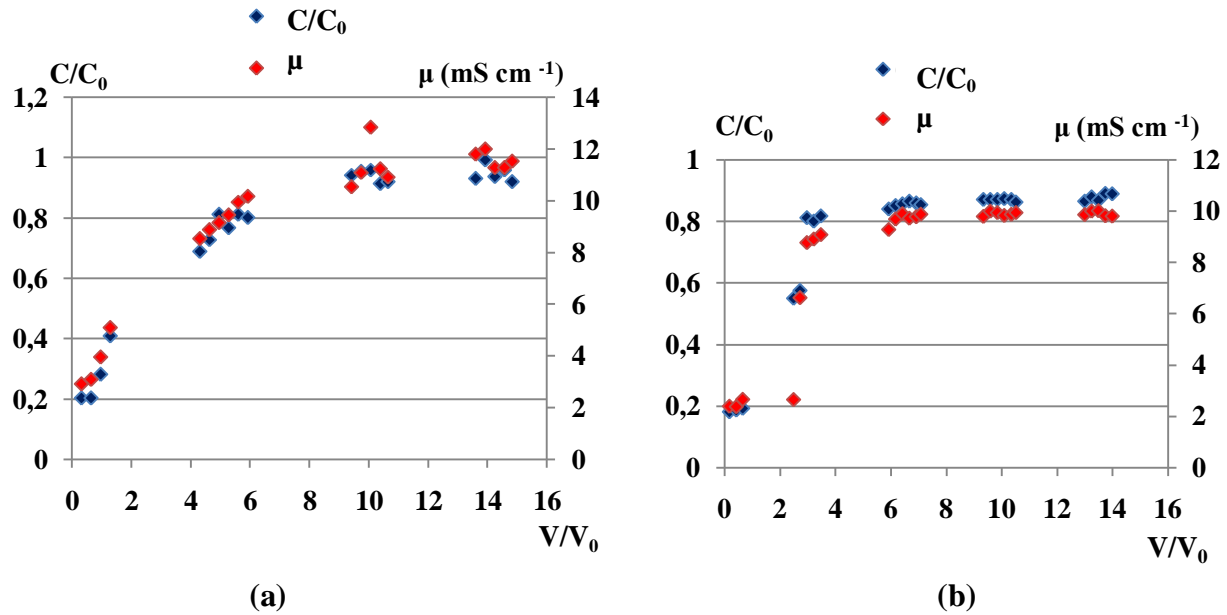
### II.2.2. Avec le dispositif A

Deux essais ont été réalisés avec le dispositif A. Une solution de deux litres de  $\text{CaCl}_2 \cdot 5 \cdot 10^{-2} \text{ M}$  est appliquée à un débit de  $0,38 \pm 0,03 \text{ mL min}^{-1}$  pour le premier essai et de  $0,28 \pm 0,03 \text{ mL min}^{-1}$  pour le second essai. Les percolâts ont été récupérés et conservés au réfrigérateur jusqu'à analyse.

Les conditions d'essais ainsi que les valeurs des paramètres hydrodynamiques concernant ces essais sont résumées dans le tableau N° 11 et la figure N° 23 représente les courbes d'élution.

**Tableau N° 11:** Paramètres hydrodynamiques du sol lors des traçages aux ions chlorures (Dispositif A)

	Essai 1- Débit d'alimentation : $0,38 \pm 0,03 \text{ (mL min}^{-1}\text{)}$	Essai 2- Débit d'alimentation : $0,28 \pm 0,03 \text{ (mL min}^{-1}\text{)}$
$\rho_{\text{colonne de sol}} \text{ (g cm}^{-3}\text{)}$	1,433	1,392
<b>W</b> durant l'essai (%)	29,40	29,38
<b>θ</b> durant l'essai (%)	42,13	40,89
<b>Volume de pore</b> ( $\text{cm}^3$ )	133,00	121,00



**Figure N°23 :** Courbes d'éluion des ions chlorures dosés respectivement par la méthode de Mohr et par mesure de la conductivité électrique, lors du traçage avec le dispositif A :  
 (a) Essai 1 à  $0,38 \pm 0,03 \text{ mL min}^{-1}$  ; (b) Essai 2 à  $0,28 \pm 0,03 \text{ mL min}^{-1}$

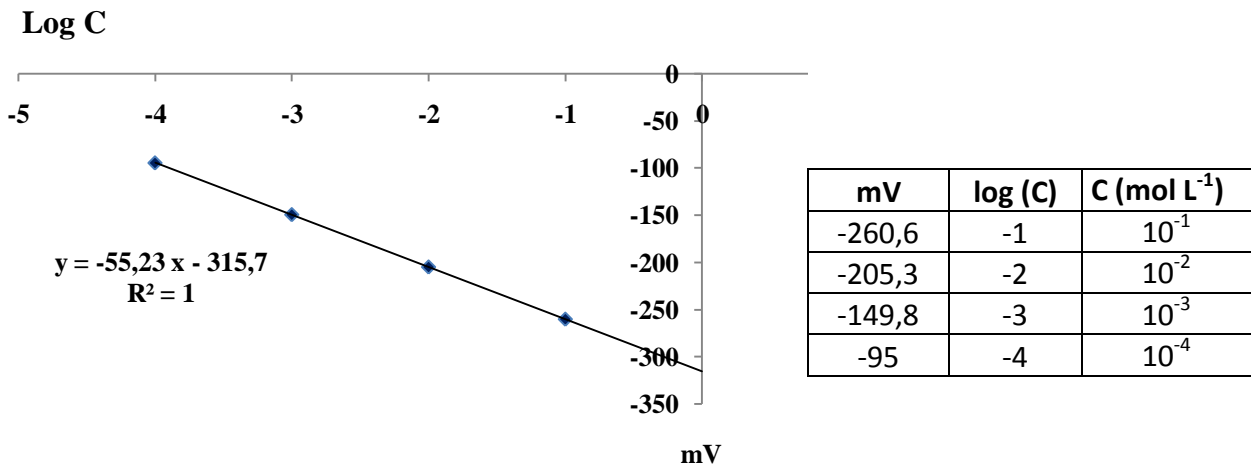
Les incertitudes sur les mesures sont pour :

- La conductivité :  $\Delta\mu = 0,12 \text{ mS cm}^{-1}$
  - L'électrode spécifique aux bromures :  $\Delta C = 0,0004 \text{ mol L}^{-1}$
  - La méthode de Mohr (titrimétrie) :  $\Delta C = 0,002 \text{ mol L}^{-1}$
- La concentration maximale obtenue pour l'essai 1 est :  $C = 0,048 \pm 0,002 \text{ mol L}^{-1}$  à  $V/V_0 = 9,10$  ;  
soit une restitution du traceur de :  $C/C_0 = 96\%$ .
- La concentration maximale obtenue durant l'essai 2 est de  $C = 0,045 \pm 0,002 \text{ mol L}^{-1}$  à  $V/V_0 = 9,33$ , soit une restitution de :  $C/C_0 = 87\%$ , un peu moins bonne que pour l'essai 1.
- La conductivité électrique pour l'essai 1 indique une valeur maximale de  $12,83 \pm 0,12 \text{ mS cm}^{-1}$ .  
La conductivité électrique de la solution d'alimentation est de  $10,50 \pm 0,12 \text{ mS cm}^{-1}$ .
- Pour l'essai 2, la conductivité électrique maximale obtenue pour les éluats est de  $9,99 \pm 0,12 \text{ mS cm}^{-1}$ . La conductivité de la solution d'alimentation est de  $9,60 \pm 0,12 \text{ mS cm}^{-1}$ .
- La conductivité électrique maximale, supérieure à celle de la solution d'alimentation, pour les deux essais, peut être expliquée par un possible relargage de différents ions présents dans le sol.
- Le volume relatif  $V/V_0$  pour lequel le maximum de restitution est obtenu est pratiquement le même pour les deux essais (9,10 et 9,33).

### II.3. Essais de traçage aux ions bromures sur le dispositif A

Deux essais de traçage aux ions bromures ont été réalisés à l'aide du dispositif A. Deux litres de solution aqueuse d'ions  $\text{Br}^-$   $5 \cdot 10^{-2}$  M ont été préparés avec du KBr. Les conditions des essais sont les mêmes que pour les essais avec les ions chlorures. Les débits sont de  $0,38 \pm 0,03 \text{ mL min}^{-1}$  pour l'essai 1 et de  $0,25 \pm 0,03 \text{ mL min}^{-1}$  pour l'essai 2.

La courbe d'étalonnage obtenue avec l'électrode spécifique aux bromures est rapportée sur la figure N° 24.

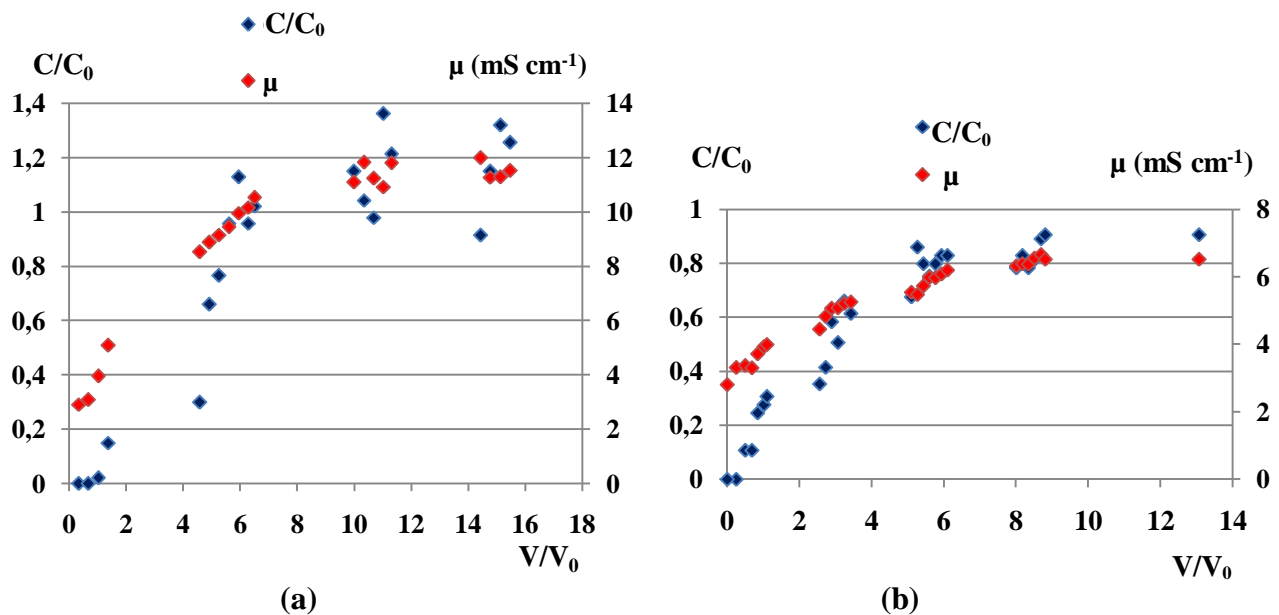


**Figure N° 24 :** Etalonnage de l'électrode spécifique aux ions bromures

Les conditions d'essais réalisés sur le dispositif A avec les ions bromures, ainsi que les valeurs des paramètres hydrodynamiques concernant ces essais sont résumées dans le tableau N° 12 et la figure N° 22 représente les courbes d'éluion correspondantes.

**Tableau N° 12 :** Paramètres hydrodynamiques du sol lors des traçages aux ions bromures  
(Dispositif A)

	Essai 1 –Débit d'alimentation : <b>0,38 ± 0,03 (mL min<sup>-1</sup>)</b>	Essai 2 –Débit d'alimentation : <b>0,25 ± 0,03 (mL min<sup>-1</sup>)</b>
<b><math>\rho_{\text{colonne de sol}}</math> (g cm<sup>-3</sup>)</b>	1,45	1,399
<b>W durant l'essai (%)</b>	27,40	30,48
<b><math>\theta</math> durant l'essai (%)</b>	39,73	42,67
<b>Volume de pore (cm<sup>3</sup>)</b>	117,00	120,00



**Figure N° 25:** Courbes d'éluion des ions bromures dosés respectivement par électrode spécifique aux bromures et par mesure de la conductivité électrique, lors du traçage avec le dispositif A : (a) Essai 1 à  $0,38 \text{ mL min}^{-1}$  ; (b) Essai 2 à  $0,25 \text{ mL min}^{-1}$

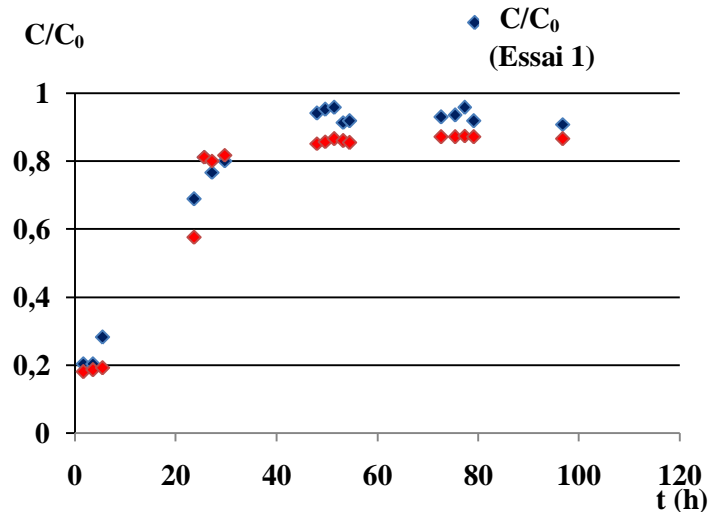
Les résultats obtenus montrent que:

- La concentration de la solution d'alimentation obtenue par mesure avec l'électrode spécifique aux ions bromures est de  $0,047 \pm 0,001 \text{ mol L}^{-1}$  ; cette valeur est en accord avec celle de la solution préparée qui est de  $0,05 \text{ mol L}^{-1}$ .
- La concentration maximale  $C$  obtenue pour l'essai 1 est  $0,064 \pm 0,001 \text{ mol L}^{-1}$ .  $C/C_0$  est dans ce cas égal à 1,36. Cette augmentation par rapport à la concentration initiale de la solution d'alimentation ( $0,05 \text{ mol L}^{-1}$ ) pourrait être due à la sensibilité de l'électrode spécifique aux différents ions qui pourraient être transportés par les éluats.
- Pour l'essai 2 par contre, la concentration maximale est  $C = 0,049 \pm 0,001 \text{ mol L}^{-1}$  pour un volume relatif  $V/V_0 = 8,8$ .  $C/C_0$  max est donc égal à 0,907. Dans ce cas, la restitution est de 90,7%.
- La conductivité électrique maximale pour les éluats de l'essai 1 est de  $11,99 \pm 0,12 \text{ mS cm}^{-1}$  ; elle dépasse légèrement celle de la solution d'alimentation qui est de  $10,90 \pm 0,12 \text{ mS cm}^{-1}$ .
- Pour l'essai 2, la conductivité électrique maximale des éluats est de  $6,67 \pm 0,12 \text{ mS cm}^{-1}$  ; elle dépasse aussi celle de la solution d'alimentation qui est de  $5,92 \pm 0,12 \text{ mS cm}^{-1}$ . Ceci peut s'expliquer de la même manière que pour les essais aux ions chlorures.



### III. Comparaison des courbes d'élution en fonction des temps d'élution

La figure N° 26 montre le tracé des courbes d'élution des ions chlorures en fonction du temps.

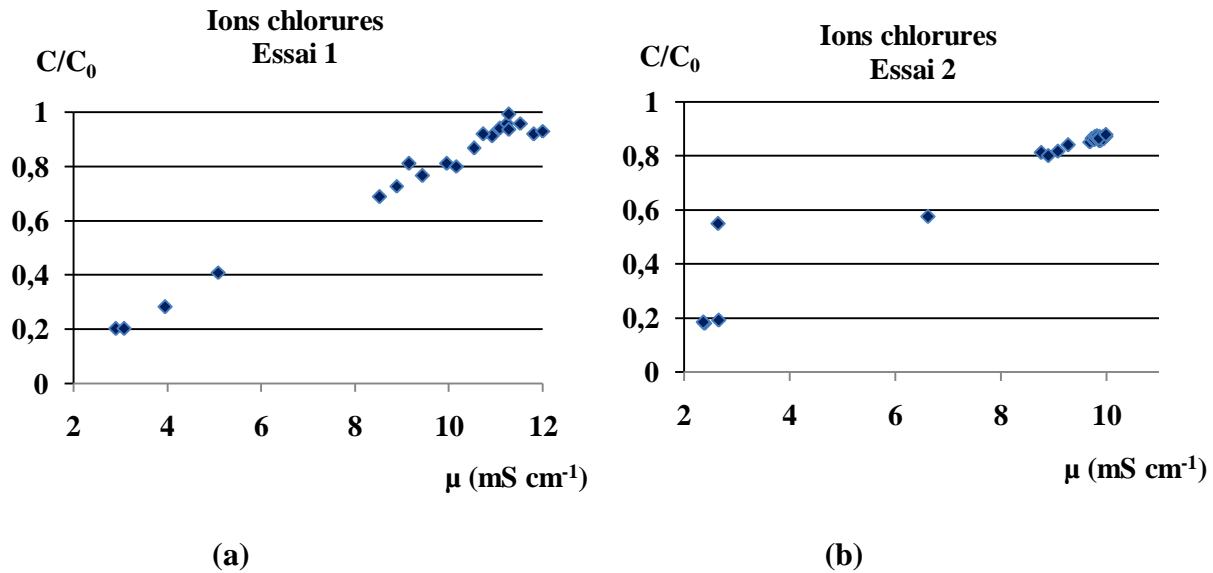


**Figure N° 26:** Courbes d'élution des essais aux ions Chlorures en fonction du temps d'élution

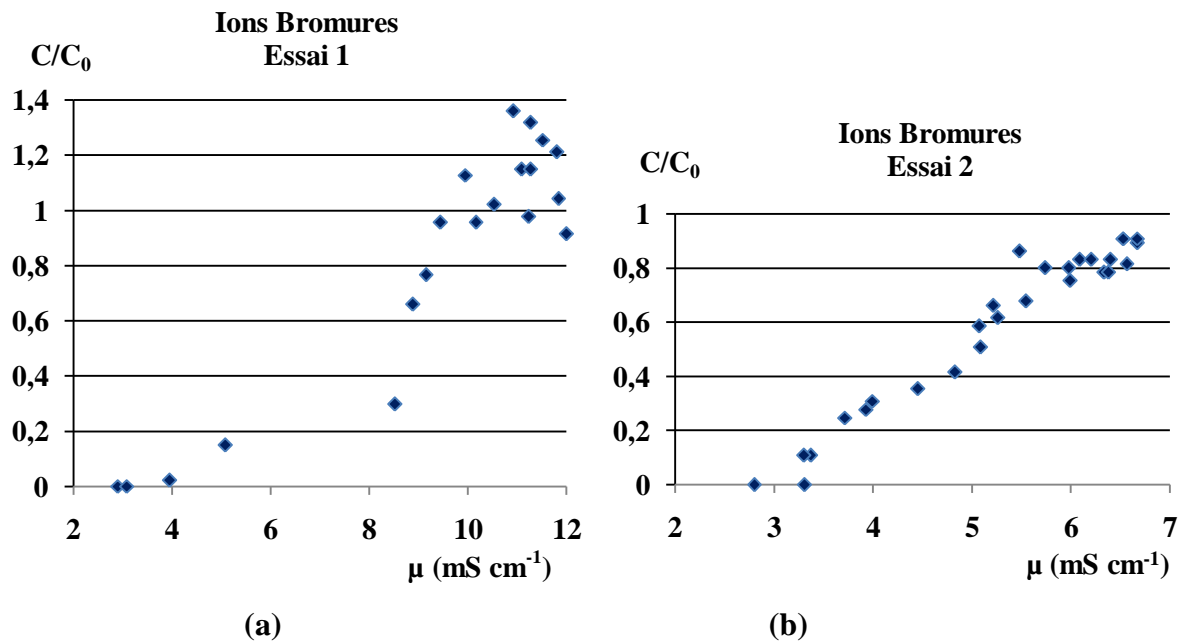
Les courbes d'élution des ions chlorures en fonction du temps d'élution indiquent pratiquement la même allure de courbe bien que le débit soit différent :  $0,38 \pm 0,03 \text{ mL min}^{-1}$  pour l'essai 1 et  $0,28 \pm 0,03 \text{ mL min}^{-1}$  pour l'essai 2.

### IV. Comparaison des analyses des éluats par conductivité électrique et électrode spécifique

Les figures N° 27 et 28 permettent une comparaison entre les résultats d'analyses obtenus par la méthode volumétrique pour les ions chlorures et l'électrode spécifique pour les ions bromures, et la conductivité électrique correspondante. Cela permet de voir s'il y a une bonne corrélation entre ces méthodes d'analyses.



**Figure N° 27:** Courbes de la concentration relative  $C/C_0$  des ions Chlorures obtenues par titrimétrie et par conductivité électrique : (a) Essai 1 ; (b) Essai 2



**Figure N° 28:** Courbes de la concentration relative  $C/C_0$  des ions Bromures obtenues par électrode spécifique en fonction de la conductivité électrique pour l'essai 1 : (a) Essai 1 ; (b) Essai 2

Ces figures indiquent qu'il existerait une compatibilité de résultats entre la conductivité électrique et les analyses spécifiques des ions Chlorures et bromures ; sauf pour l'essai 1 des ions bromures qui semble donner des résultats non satisfaisants.

### V. Essai d'adsorption en batch pour les ions chlorures et bromures

Un essai d'adsorption a été effectué, cette fois en batch, sur le sol étudié avec les solutions de  $\text{CaCl}_2$   $5.10^{-2}$  M et  $\text{KBr}$   $5.10^{-2}$  M utilisées lors des traçages, afin de vérifier si ces traceurs sont adsorbés sur le sol.

Des solutions de  $\text{CaCl}_2$  et de  $\text{KBr}$  contenant 10 g de sol, avec un rapport Liquide / Solide de 1/10, ont été mis en agitation durant 48 heures. Les échantillons ont ensuite été centrifugés et filtrés. Les résultats d'analyses sont regroupés dans le tableau N°13.

**Tableau N° 13 :** Dosage des ions chlorures et bromures après adsorption en batch sur le sol étudié

	Ions Chlorures		Ions Bromures	
	Méthode titrimétrique	Conductivité électrique	Electrode spécifique	Conductivité électrique
<b>Blanc <math>\text{CaCl}_2</math> (sans sol)</b>	$0,045 \pm 0,002$ (mol L <sup>-1</sup> )	$9,42 \pm 0,03$ (mS cm <sup>-1</sup> )	-	-
<b>Blanc <math>\text{KBr}</math> (sans sol)</b>	-	-	$0,056 \pm 0,002$ (mol L <sup>-1</sup> )	$5,88 \pm 0,18$ (mS cm <sup>-1</sup> )
<b><math>\text{CaCl}_2</math> 0,05 M + sol</b>	$0,044 \pm 0,002$ (mol L <sup>-1</sup> )	$9,09 \pm 0,09$ (mS cm <sup>-1</sup> )	-	-
<b><math>\text{KBr}</math> 0,05 M + sol</b>	-	-	$0,045 \pm 0,002$ (mol L <sup>-1</sup> )	$6,18 \pm 0,18$ (mS cm <sup>-1</sup> )

Les valeurs obtenues par électrode spécifique pour  $\text{KBr}$  et par titrimétrie pour  $\text{CaCl}_2$ , indiquent une faible adsorption des traceurs sur le sol étudié.

### VI. Résultats de l'étude du transfert de la métribuzine dans la colonne de sol

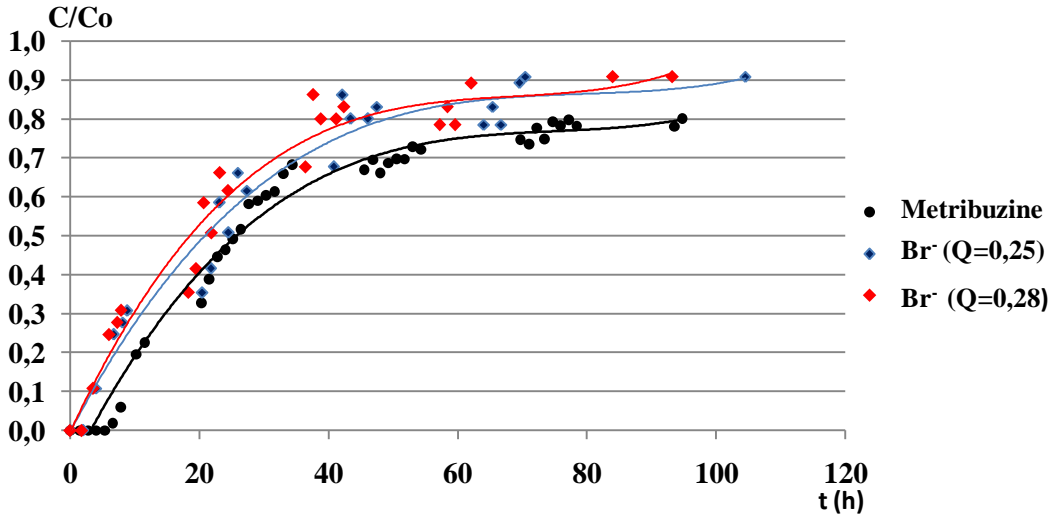
Un essai d'éluion avec de la métribuzine à  $25\text{mg L}^{-1}$  a été fait sur le dispositif A, avec un débit de  $0,28 \pm 0,03$  mL min<sup>-1</sup>. Les caractéristiques hydrodynamiques de la colonne de sol sont données dans le tableau N° 14.

**Tableau N° 14 :** Paramètres hydrodynamiques du sol lors de l'essai avec la métribuzine à  $25\text{ mg L}^{-1}$  (Dispositif A)

<b><math>\rho_{\text{colonne de sol}}</math> (g cm<sup>-3</sup>)</b>	1,410
<b>W durant l'essai (%)</b>	32,50
<b><math>\theta</math> durant l'essai (%)</b>	45,82
<b>Volume de pore (cm<sup>3</sup> ou mL)</b>	135,00

Ces valeurs sont en bon accord avec le type de sol étudié.

La figure N° 29 représente les courbes d'éluion de l'essai de percolation de la métribuzine et des essais de traçage aux ions Bromures réalisés dans les mêmes conditions expérimentales.



**Figure N° 29 :** Courbes d'éluion de la métribuzine à  $25 \text{ mg L}^{-1}$  (débit :  $0,28 \text{ mL min}^{-1}$ ) et des ions bromures (débits :  $0,25$  ;  $0,28 \text{ mL min}^{-1}$ ) - Dispositif A

Ces résultats montrent une faible rétention par adsorption sur le sol et des temps de séjour courts.

## VII. Facteurs de comparaisons entre l'essai à la métribuzine et l'essai 2 aux ions bromures

### VII.1. Détermination des temps de séjour moyens des solutés utilisés pour les différents essais et du facteur retard de la métribuzine

Le tableau N° 15 regroupe les temps de séjour moyens ( $t_s$ ) des solutés dans la colonne de sol pour les différents essais.

**Tableau N° 15 :** Temps de séjour moyens des traceurs et de la métribuzine au cours des différents essais

Essai	$t_s$ moyens (h)
<i>Ions chlorures – essai 1</i>	5,83
<i>Ions bromures – essai 1</i>	5,13
<i>Ions chlorures – essai 2</i>	7,20
<i>Ions bromures – essai 2</i>	7,14
<i>Métribuzine</i>	8,04

Le facteur retard de la métribuzine est calculé par rapport à l'essai 2 des ions bromures.

$$R = t_s(\text{métribuzine}) / t_s(\text{ions bromures})$$

$$R = 1,126$$

La métribuzine présente donc un léger retard par rapport aux bromures. Cela confirme sa faible rétention par le sol.

Ces résultats montrent une faible rétention par adsorption de la métribuzine dans le sol. En effet, au temps d'équilibre et pour un débit de  $0,28 \text{ mL mn}^{-1}$ ,  $C/C_0$  est de l'ordre de 0,9 pour le traceur  $\text{Br}^-$  et de 0,8 pour la métribuzine.

On peut également constater que les temps de séjour de la métribuzine et du traceur dans la colonne de sol sont courts (moins de 10 heures).

## VII.2. Calcul de la masse de métribuzine adsorbée sur le sol

La masse de métribuzine adsorbée est calculée en faisant la différence entre les surfaces sur les courbes d'élutions de l'essai 2 des ions bromures et de la métribuzine. Le calcul des surfaces a été fait sur MATLAB.

La surface entre les deux courbes d'élution des ions bromures et de la métribuzine  $C/C_0 = f(V/V_0)$  est de :  $2,730 \pm 0,281$ . Cette surface, multipliée par  $C_0.V_0$  permet d'obtenir la masse de métribuzine adsorbée :

- La masse de métribuzine retenue est de  $4,61 \pm 0,94$  mg par litre de solution d'alimentation.
- La masse de sol introduite dans la colonne est de 415 g.
- La masse de sol sec introduite, obtenue en soustrayant le volume en eau initial (évalué en séchant une quantité de sol à  $105^\circ\text{C}$ ) est de 398,3g.
- La masse de métribuzine adsorbée par gramme de sol est donc de  $0,011 \pm 0,940$  mg par gramme de sol.

Cette masse de métribuzine retenue par le sol n'est qu'une évaluation, le traceur  $\text{Br}^-$  utilisé comme référence à ce calcul est légèrement adsorbé par le sol.

Ces résultats confirment bien, néanmoins, qu'il y a adsorption de la métribuzine par le sol à un taux d'environ  $11 \mu\text{g}$  par gramme de sol.

Le sol est tamisé à 2 mm, il n'est donc plus à l'état naturel. Il serait donc judicieux de refaire l'essai avec une colonne de sol non remanié (porosité naturelle du sol) pour se rapprocher des conditions naturelles du sol.

---

## CONCLUSION

Ce travail a permis, après une étude bibliographique, de mettre au point, après plusieurs essais préliminaires, un dispositif d'étude du transfert de polluants à travers une colonne de sol. Les caractéristiques principales sont : une colonne en plexiglas de 5 cm de diamètre et 16,8 cm de hauteur que l'on remplit d'un sol limono-argileux sur une hauteur de 15 cm en assurant un compactage léger afin de ne pas colmater la colonne. Le système d'alimentation, dont le débit est contrôlé manuellement, est basé sur le principe du vase de Mariotte et est en mode descendant pour mieux simuler l'infiltration des eaux de pluie ou d'arrosage ; la répartition du liquide à la surface du sol est réalisée de manière uniforme et homogène à l'aide d'un système d'aiguilles hypodermiques fines. Les éluats sont recueillis au bas de la colonne.

Ce dispositif est simple, peu coûteux et facile à mettre en œuvre.

Les conditions expérimentales de fonctionnement du dispositif ont ensuite été optimisées après une série d'essais fastidieux (du fait du caractère semi-perméable du sol étudié), de manière à conserver, pour des essais de plusieurs jours, un débit constant et faible ( $< 0,4 \text{ mL min}^{-1}$ ), une charge d'eau constante et éviter la formation de lames d'eau à la surface de la colonne de sol. Les essais de percolation sont réalisés selon le protocole suivant :

- Remplissage des colonnes avec le sol et mesure de la compacité de ce dernier ;
- Mise en eau des colonnes (humidification du sol) ;
- Drainage des colonnes ;
- Conditionnement des colonnes de sol avec une solution de  $\text{CaCl}_2 10^{-2} \text{ M}$  ;
- Essais de traçage de l'écoulement: trois traceurs ont été testés (le colorant Bleu Brillant de Coomassie et les ions  $\text{Cl}^-$  et  $\text{Br}^-$  qui sont deux traceurs anioniques) ;
- Percolation du polluant.

Pour chaque essai, les paramètres hydrodynamiques (masse volumique du sol en colonne, teneur en eau massique et volumique durant l'essai et volume de pore) ont été calculés.

Parmi les traceurs testés, seul le Bleu Brillant de Coomassie a montré une forte adsorption sur le sol ; les deux autres peuvent être considérés comme des traceurs acceptables pour le sol étudié, bien qu'ils y soient faiblement retenus.

L'analyse des éluats recueillis au cours du temps a permis, après chaque essai, de tracer les courbes d'éluion (courbes de percée). L'analyse des éluats a été réalisée par différentes méthodes: UV/Visible pour le Bleu Brillant de Coomassie, méthode titrimétrique de Mohr pour les ions chlorures, mesure de la conductivité électrique pour les ions chlorures et les ions bromures, mesure par électrode spécifique pour les ions bromures et HPLC pour la métribuzine.

L'application du dispositif mis au point a pu enfin être réalisée sur une solution d'un pesticide polluant, la métribuzine. Elle a permis de conclure à des résultats satisfaisants et donc à l'efficacité du dispositif pour l'étude du transfert à travers une colonne de sol. La métribuzine est faiblement retenue par adsorption sur le sol et les temps de séjour sont faibles, ce qui permet de penser à des risques potentiels de contamination des eaux souterraines.

Le dispositif mis au point pourra être utilisé par la suite pour toute étude future de transfert de polluants dans un sol, en complément d'une étude d'adsorption en batch. L'ensemble des résultats obtenus pourront être traités, grâce à des logiciels spécifiques (HYDRUS par exemple), de manière à pouvoir faire des prévisions des risques de transfert des polluants vers les eaux souterraines.



## BIBLIOGRAPHIE

- Al Bitar, A. ; 2007 ; « Modélisation des écoulements en milieu poreux hétérogènes 2D / 3D, avec couplages surface/souterrain et densitaires » ; Thèse de doctorat ; Institut National Polytechnique ; Toulouse.
- Al Rajab, A.J. ; 2007 ; « Impact sur l'environnement d'un herbicide non sélectif : le glyphosate » ; Institut National Polytechnique de Lorraine- INPL ; Université de Nancy.
- Baran, N. ; 2002 ; « Contributions respectives de la macro- et de la microporosité dans les transferts de phytosanitaires au travers de lysimètres de taille décimétrique : expérimentations de laboratoire et modélisation » ; Etude réalisée dans le cadre du projet de recherche 01-EAU-R3 pollution diffuse - B.R.G.M.
- Barriuso, E., Calvet, R., Schiavon, M., Soulas, G. ; 1996 ; « Les pesticides et les polluants organiques des sols - transformations et dissipation » ; Etude et gestion des sols - Numéro spécial 3 ; Forum : « le sol, un patrimoine menacé ? » ; Paris.
- Bélanger, S. ; 1993 ; « Modélisation du mouvement vertical de l'eau en milieu non saturé » ; mémoire de maîtrise ; INRS-Eau ; Université du Québec.
- Benmahdi, F. ; 2008 ; « Etude de la rétention d'un herbicide dans un sol agricole » ; Mémoire de Magister ; Option Chimie de l'eau, dessalement et environnement ; Université du Colonel Hadj Lakhdar ; Batna.
- Blanchard, C. ; 2000 ; « Caractérisation de la mobilisation potentielle des polluants inorganiques dans les sols pollués » ; thèse de doctorat ; Institut National des Sciences Appliquées ; Lyon.
- Calderon, M. J., Hermosin, M. C., Aguer J. P., Belderrain, J., Cornejo, J. ; 2001 ; « Organoclays to reduce herbicide soilleaching » ; Scientific registration n° : 2422 ; Symposium n° : 7 ; Instituto de Recursos Naturales y Agrobiología de Sevilla ; Spain.
- Calvet, R. ; 2003 ; « Le sol- Propriétés et fonctions- Tome 2- Phénomènes physiques et chimiques- Applications agronomiques et environnementales » ; Editions France Agricole ; Dunod.
- Calvet, R. ; Barriuso, E. ; Benoit, P ; Charnay, M.-P. ; Coquet, Y. ; 2005 ; « Les pesticides dans le sol - Conséquences agronomiques et environnementales » ; Editions France Agricole.
- Camobreco, V. J. ; Richards, B. K. ; Steenhuis, T.S. ; Peverly, J. H. ; McBride, M.B. ; 1996 ; « Movement of heavy metals through undisturbed and homogenized soil columns » ; Soil Science 161 ; p 740-750.
- CORPEN ; 2007 ; « Les fonctions environnementales des zones tampons - Protection des eaux » ; Comité d'orientation pour des pratiques agricoles respectueuses de l'environnement CORPEN ; Ministère de l'Ecologie, de l'Energie, du Développement Durable et de l'Aménagement du Territoire ; Paris.
- Cox, L., Celis, R., M.C. Hermosin, M.C., Becker, A., Cornejo, J. ; 1997 ; « Porosity and herbicide leaching in soils amended with olive-mill wastewater » ; Agriculture Ecosystems and Environment 65 ; p151-161 ; Elsevier.
- Crosnier, J. 1999 ; « Devenir de la pollution métallique drainée par les eaux pluviales » , thèse de Doctorat ; Université Claude Bernard ; Lyon I.

- Daian, J. ; 2010; «Equilibre et transferts en milieux poreux - Première partie : Etats d'équilibre» ; Ex. Maître de Conférences à l'Université Joseph Fourier; Chercheur bénévole au L.T.H.E.
- Degoutte, G. ; 2009 ; « Aide-mémoire de mécanique des sols » ; C.G.A.A.E.R. - Cemagref; Publication de l'ENGREF.
- Delmas-Gadras, C. ; 2000 ; « Influence des conditions physico-chimiques sur la mobilité du plomb et du Zinc dans un sol et un sédiment en domaine routier » ; thèse de doctorat ; Université de PAU et des pays de L'ADOUR- U.F.R. Sciences.
- Dousset, S., Molvet, C. ; 1997; « Lessivage de la terbuthylazine et de l'atrazine en colonnes de sol au laboratoire » ; Surface Géosciences ; Elsevier ; Paris.
- Duwig, C. ; 2009 ; « Le transfert multi échelle des produits agroalimentaires dans les sols tropicaux d'origine volcanique » ; H.D.R. ; Université Joseph Fourier ; Grenoble I.
- EPA 712-C-08-010; 2008; « Fate, Transport and Transformation Test Guidelines »; Leaching Studies; Prevention, Pesticides and Toxic Substances (7101); United States Environmental Protection Agency.
- Fevrier, L. ; 2001 ; « Transfert d'un mélange Zn-Cd-Pb dans un dépôt fluvio-glaciaire carbonaté. Approche en colonnes de laboratoire » ; Institut National des Sciences Appliquées ; Lyon.
- Gabet, S. ; 2004 ; « Remobilisation d'Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP) présents dans les sols contaminés à l'aide d'un tensioactif d'origine biologique » ; thèse de doctorat ; Faculté des Sciences et Techniques ; Université de Limoges.
- Garric, L. ; 2008 ; « Etude comparative du devenir de pesticides infiltrés dans des colonnes de sols non remaniés de zones tampons enherbées. » ; Mémoire de fin d'études et de Master2 Géoscience, Environnement et Risques, Spécialité ; Ecole Nationale du Génie de l'Eau et de l'Environnement de Strasbourg ENGEES.
- Guimont, S. ; 2005 ; « Devenir des pesticides dans les sols en fonction de l'état d'humidité et du mode de circulation de l'eau dans le sol » ; thèse de doctorat ; Institut National Polytechnique de Lorraine.
- Gujisaite, V. ; 2008 ; « Transport réactif en milieux poreux non saturés » ; thèse de doctorat ; Institut National Polytechnique de Lorraine.
- ISO/DIS 18772 (DRAFT INTERNATIONAL STANDARD); 2006; « Soil quality - Guidance on leaching procedures for subsequent chemical and ecotoxicological testing of soils and soil materials »; International Organization for Standardization.
- Lamy, E. ; 2008 ; « Ecoulement et transfert colloïdal dans des matrices hétérogènes et stratifiées. Application à des milieux poreux » ; thèse de doctorat ; Ecole Centrale de Nantes.
- Landry, D., Dousset, S., Andreux, F. ; 2004; « Laboratory leaching studies of oryzalin and diuron through three undisturbed vineyard soil columns »; Chemosphere 54 ; p735-742; Elsevier.
- Lassabatere, L. ; 2002 ; « Modification du transfert de trois métaux lourds (Zn, Pb et Cd) dans un sol issu d'un dépôt fluvio-glaciaire carbonaté par l'introduction de géotextile » ; thèse de doctorat ; Université de Laval ; Québec.

- Lérau, J. ; 2006 ; «géotechnique 1 - cours» ; Maitre de conférences ; Institut National des Sciences Appliquées ; Toulouse.
- Lhoste, B. ; 2006 ; « Modélisation bidimensionnelle de la dissipation d'herbicides en conditions dynamiques dans des sols alluviaux » ; Master 2 Sciences de l'Univers, Environnement, Écologie ; École Nationale du Génie Rural des Eaux et des Forêts.
- Limousin, G. ; 2006 ; « Transfert de solutés réactifs dans la zone non saturée des sols à différentes échelles d'observation » ; thèse de doctorat ; Université Joseph Fourier ; Grenoble I.
- Mahmoud, K. ; 2010 ; « Caractérisation hydrodynamique des sols en vue d'une recherche des conditions de reconstitution de parcelles d'infiltration » ; Master de Recherche en Sciences et Techniques des Environnements urbains ; Ecole Centrale de Nantes.
- Majumdar, K., Singh,N., 2007; « Effect of soil amendments and mobility of metribuzin in soils »; Chemosphere 66; p 630-637; ScienceDirect.
- Marcos, L. ; 2001 ; « Eude expérimentale et modélisation du transfert du zinc et du plomb dans des milieux sableux modèles » ; Thèse de doctorat ; Ecole Polytechnique de l'Université de Nantes.
- Mathieu, C. ; Pieltain, F. 1998 ; « Analyse physique des sols, méthodes choisies» ; Editions Lavoisier, Tec&Doc.
- Mazet, P. ; 1992 ; « Influence des écoulements transitoires sur la mobilité du strontium dans les sols partiellement saturés en eau » ; thèse de doctorat ; Université Joseph Fourier ; Grenoble I.
- Mermoud, A. ; 2006 ; « Cours de physique du sol, Généralités » ; Ecole Polytechnique Fédérale ; Lausanne.
- Mermoud, A. ; 2006 ; « Propriétés de base du sol et de la phase liquide » ; Cours de physique du sol ; Ecole Polytechnique Fédérale ; Lausanne.
- Moeys, J. ; 2007 ; « Variabilité spatiale et déterminismes agro-pédologiques du devenir d'un herbicide dans l'horizon de surface » ; thèse de doctorat ; institut des Sciences Appliquées du Vivant et de l'Environnement ; AgroParisTech.
- Nordtest Technical Report 473; 2000; « Use of lysimeters for characterisation of leaching from soil and mainly inorganic waste materials »; Nordtest project 1494-00; Final Report.
- Novak, S.M., Portal, J.M., Schiavon, M.; 2000; « Effet de la taille des agrégats sur le transport de deux herbicides et d'un traceur de l'eau » ; Earth and Planetary Sciences 331; p 111–117; Elsevier.
- Oukali-Haouchine O., Moussaoui, K. M., Harik, D., Mayata, Y.;2011; «Metribuzin adsorption on a silty clay soil of Algeria: effects of fertilizer and pH»; Ecole Nationale Polytechnique; Laboratory of Environmental Sciences and Technologies; Algiers; Algeria; XIV symposium in pesticide chemistry: pesticides in the environment; fate, modeling and risk mitigation; Piacenza; Italy.
- O.C.D.E.; 2004; « Guidelines 312 for the testing of chemicals- Leaching in soil columns ».
- Olayiwola, A.G.O.; 2009; « Studying Pollutant Solute Transport in Saturated MSW using Multi-Tracer Tests»; PhD; University of Ado-Ekiti ; Nigeria - West Africa; Australian Journal of Basic and Applied Sciences 2(4); p 3727-3740; AIBAS.

- Paris Anguela, T.; 2004; «Etude du transfert d'eau et de solutés dans un sol a nappe superficielle drainée artificiellement»; thèse de doctorat; Ecole Nationale du Génie Rural, des Eaux et Forêts ENGREF ; Paris.
- Pomerleau G. ; 1997 ; «Modélisation du transfert d'eau et de soluté dans les sols non saturés » ; grade de Maître des Sciences ; INRS-Eau ; Université du Québec.
- Pot, V., Simunek, J., Benoit, P., Coquet, Y., Yra, A.;2005; « Impact of rainfall intensity on the transport of two herbicides in undisturbed grassed filter strip soil cores » ; Journal of Contaminant Hydrology 81; p 63-88; ScienceDirect.
- Prado Pano, B.L. ; 2006 ; « Etude du mouvement de l'eau et du transfert réactif du nitrate dans les sols volcaniques du bassin versant élémentaire de la Loma- Mexique » ; thèse de doctorat ; Université Joseph Fourier ; Grenoble I.
- Renard, F. ; 2010; « Cours d'hydrogéologie - Licence Professionnelle ».
- Rousseau, M. ; 2003 ; « Transport préférentiel de particules dans un sol non saturé : de l'expérimentation en colonne lysimétrique à l'élaboration d'un modèle à base physique » ; Thèse de doctorat ; Institut National Polytechnique ; Grenoble.
- Saiba, A. ; 2008 ; « Etude de l'adsorption d'un herbicide - la métribuzine- sur un sol cultivé » ; mémoire de magister ; Département du Génie de l'Environnement ; Ecole Nationale Polytechnique ; Alger.
- Schudel, B., Biaggi, D., Dervev, T., Kozel, R., Müller ; I., Ross, J.H., Schindler, U. ; 2002 ; « Utilisation de traceurs artificiels en hydrogéologie » ; Groupe de travail Traçage de la Société Suisse d'Hydrogéologie S.S.H.
- Sebih, S. ; 2008 ; « Transport du cuivre à travers un sol : étude des principaux paramètres physico-chimiques et mécanismes influençant la modélisation » ; mémoire de magister ; Département de Génie de l'Environnement ; Laboratoire des Sciences et Techniques de l'Environnement (LSTE) ; Ecole Nationale Polytechnique ; Alger.
- Siczek, A., Kotowska, U., Jerzy Lipiec, J., Nosalewicz, A.; 2008; « Macro-porosity and leaching of atrazine in tilled and orchard loamy soils»; Chemosphere 70; p 1973-1978; ScienceDirect.
- Szencknect, S. ; 2003 ; « Transfert de radioéléments en zone non saturée. Etude expérimentale et modélisation appliquées au Site Pilote de Tchernobyl » ; Institut de Radioprotection et de Sécurité Nucléaire ; Nanterre.
- U.S.D.A.; 1975; «Soil taxonomy, Agriculture handbook Nr 436, soil survey staff U.S.» ; Department of agriculture; Washington.
- Vincent, A. ; 2003 ; «Impact de l'implantation de bandes enherbées sur le transport d'herbicides: étude sur colonnes de sol non perturbé- Etude de la dissipation des pesticides dans les sols à l'aide de colonnes de sol non perturbé » ; Unité Environnement et Grandes Cultures, Equipe Sol, UMR INRA - INA P-G, 78850 Thiverval ; Grignon-France.
- Walker, A., Rodriguez-Cruz, M.S., Mitchell, M.J.; 2005; « Influence of ageing of residues on the availability of herbicides for leaching »; Environmental Pollution 133; p 43-51; Elsevier.
- Yra, A.;2002 ; «Modalité de transfert d'eau et d'herbicides dans un sol sous bande enherbée : étude sur colonne de sol non perturbé»; DEA ; Université Pierre et Marie Curie ; INRA-Grignon.