

République Algérienne Démocratique et Populaire
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique



École Nationale Polytechnique d'Alger
Département du Génie de l'Environnement

MEMOIRE DE FIN D'ETUDES

Présenté par :

Mlle MIMI Imene

POUR L'OBTENTION DU DIPLOME D'INGENIEUR D'ETAT EN
GENIE DE L'ENVIRONNEMENT

THÈME

Influence de l'aération sur la bioremédiation
d'un sol pollué par du gasoil

Soutenu le : 29/09/2011 devant le jury suivant :

Président :	M. A. CHERGUI	Maître de conférences à l'ENP
Examinatrice:	Mme. N. ABDI	Professeur à l'ENP
Promotrice :	Mlle. J. ARRAR	Maître de conférences à l'ENP

PROMOTION 2010/2011

Dédicace

A mes chers parents et grands-parents

A mes frères

A mes tantes, oncles et cousins

Au petit boutchou Anís

A mes copines Níssa, Rym et Ilhem

A toutes les personnes chères à mon cœur

REMERCIEMENTS

Ce travail a été réalisé au Laboratoire des Sciences et Techniques de l'Environnement de l'Ecole Nationale Polytechnique.

*En premier lieu, je tiens à exprimer toute ma gratitude à **Mlle J. Arrar** maître de conférences à l'ENP, pour m'avoir donné la chance de travailler sur ce sujet, ainsi que pour toute son aide et sa générosité et ses précieux conseils.*

*Je tiens aussi à remercier particulièrement **Mr A. Chergui** maître de conférences à l'ENP d'avoir accepté de présider le jury examinant ce mémoire.*

*De même, je suis sincèrement reconnaissante envers **Mme N. Abdi** professeur à l'ENP, qui a bien voulu examiné le travail suivant.*

Je souhaiterais aussi exprimer mes remerciements envers mes camarades, en l'occurrence ; Hamza magister, Imad Necro, Chahra et Djidji.

Un sincère remerciement à mes amis les plus proches ; Rym, Anissa et son fiancé Redha, Ilhem, Maria, Tarik et Amin.

Et enfin je remercie mes parents qui m'ont permis d'être où j'en suis aujourd'hui.

Sommaire

Liste des abréviations

Liste des figures

Liste des tableaux

Nomenclature

Introduction générale.....1

Chapitre I : Revue bibliographique

I.1. Hydrocarbures.....3

I.1.1. Classification.....3

I.1.1.1. Hydrocarbures saturés.....3

I.1.1.2. Hydrocarbures aromatiques.....3

I.1.1.3. Résines.....3

I.1.1.4. Asphaltènes.....4

I.1.2. Raffinage.....4

I.1.3. Gasoil.....4

• Propriétés physico-chimiques du gasoil.....4

I.2. Pollution des sols par les hydrocarbures.....5

I.2.1. Origine des pollutions.....5

I.2.2. Généralités sur le sol.....6

I.2.2.1. Définition.....6

I.2.2.2. Caractéristiques du sol.....6

I.2.2.2.1. Granulométrie.....6

I.2.2.2.2. La porosité.....	8
I.2.2.2.3. Le régime hydrique et taux d'humidité.....	8
I.2.2.2.4. Le pH des sols.....	9
I.2.2.2.5. Le potentiel d'oxydoréduction.....	10
I.2.2.6. Les êtres vivants: la microflore.....	10
I.2.3. Devenir des hydrocarbures dans l'environnement.....	10
I.2.4. Principaux paramètres régissant le devenir des polluants dans le sol.....	12
I.3. Biodégradation des hydrocarbures.....	12
I.3.1. Biodégradation du gasoil.....	13
I.3.2. Facteurs influençant la biodégradation des hydrocarbures.....	14
I.3.2.1. pH.....	14
I.3.2.2. Humidité.....	14
I.3.2.3. Température.....	14
I.3.2.4. nutriments.....	15
I.3.2.5. Oxygène.....	16
I.3.2.6. Polluants.....	16
I.4. Réhabilitation des sols.....	17
• Biotraitabilité d'un sol contaminé.....	17
I.5. Bioréacteurs.....	18
I.5.1. Bioréacteurs à boues activées.....	19
I.5.2. Bioréacteurs en phase solide.....	20
Chapitre II : Matériel et méthodes	
II.1. Description du dispositif expérimental.....	21
II.2. Caractéristiques du sol.....	22

II.2.1. Caractéristiques physico-chimiques.....	22
II.2.1.1. Analyse granulométrique.....	22
II.2.1.2. Masse volumique.....	23
II.2.1.3. pH.....	24
II.2.1.4. Humidité.....	24
II.2.1.5. Nutriments.....	24
II.2.1.5.1. Nitrites.....	24
II.2.1.5.2. Nitrates.....	25
II.2.1.5.3. Azote ammoniacal.....	25
II.2.1.5.4. Phosphore.....	25
II.2.1.6. Demande chimique en oxygène.....	25
II.2.1.7. Carbone organique.....	25
II.2.2. Caractéristiques bactériologiques.....	26
II.2.2.1. Méthode de dilution.....	26
❖ Préparation des échantillons.....	26
❖ Ensemencement sur boîtes de Pétri.....	27
II.2.2.2. Méthode gravimétrique.....	27
II.2.3. Hydrocarbures du sol.....	27
❖ Densité du gasoil.....	27
II.2.4. Débit d'air.....	27

Chapitre III : Résultats expérimentaux et discussions

III.1. Etude du sol.....	30
III.1.1. Caractéristiques physico-chimiques du sol.....	30
III.1.2. Caractéristique bactériologique du sol.....	32
III.2. Pollution du sol.....	32

III.3. Traitement biologique du sol.....	32
III.3.1. Croissance microbienne.....	32
❖ Taux de croissance maximal μ_{\max}	34
❖ Matière sèche m_s	35
III.3.2. Remédiation du sol.....	36
III.3.2.1. Enlèvement du gasoil.....	36
III.3.2.2. Biodégradation du gasoil.....	39
III.3.3. Cinétique de dégradation du gasoil.....	40
III.3.3.1. Cinétique d'enlèvement du gasoil.....	40
III.3.3.2. Cinétique de biodégradation du gasoil.....	43
III.3.3.2.1. Influence de la biomasse sur la cinétique de biodégradation du gasoil.....	46
III.3.3.2.2. Modélisation des courbes de biodégradation: Influence de la fraction labile du gasoil.....	48
Conclusion générale.....	50

Références bibliographiques

Annexe

Liste des abréviations

ASTM : Organisme américain de normalisation.

ISO : Organisation internationale de normalisation.

TPH : Hydrocarbures totaux.

Liste des figures

Figure I.1 : Triangle des textures.....	9
Figure I.2 : Processus de la dégradation d'un substrat organique.....	12
Figure II.1 : Schémas d'un bioréacteur aéré.....	21
Figure II.2 : Bioréacteur aéré.....	22
Figure III.1 : Dispositif expérimental avec les différents systèmes utilisés.....	30
Figure III.2 : Evolution de la biomasse au cours du temps pour les différents systèmes biotiques.....	33
Figure III.3a : Evolution de la matière sèche pour les différents systèmes.....	35
Figure III.3b : Evolution du nombre des micro-organismes en fonction de la matière sèche pour les différents systèmes.....	36
Figure III.4a : Evolution de la concentration des hydrocarbures totaux (TPH) en fonction du temps pour les différents systèmes biotiques.....	37
Figure III.4b : Evolution de la concentration des hydrocarbures totaux (TPH) en fonction du temps pour différents systèmes.....	37
Figure III.5 : Rendement d'élimination du gasoil au cours du temps pour les différents systèmes étudiés.....	38
Figure III.6 : Rendement de biodégradation du gasoil au cours du temps pour les différents systèmes étudiés.....	39
Figure III.7.a : Variation de $\ln([TPH]_0/[TPH])$ en fonction du temps pour les différents systèmes biotiques.....	41
Figure III.7.b : Variation de $1/[TPH] - 1/[TPH]_0$ en fonction du temps pour les différents systèmes biotiques.....	42
Figure III.8 : Variation de $\ln([TPH]_0/[TPH])$ en fonction du temps pour les différents systèmes.....	43

Figure III.9 : Variation de $1/[TPH] - 1/[TPH]_0$ en fonction du temps pour les différents systèmes.....	45
Figure III.10 : Variation de $\ln ([TPH] / [TPH]_0)$ en fonction de (t/m) pour les différents systèmes.....	47

Liste des tableaux

Tableau I.1 : Les principaux constituants du sol.....	7
Tableau I.2 : Abondance des organismes vivants du sol.....	10
Tableau I.3 : Classification des techniques de réhabilitation des sols contaminés.....	18
Tableau III.1 : Les différents systèmes utilisés.....	29
Tableau III.2 : Caractéristiques physico-chimiques du sol.....	31
Tableau III.3 : Taux de croissance maximum pour les différents systèmes biotiques C/N/P = 100/10/1, Hu =15%.....	34
Tableau III.4 : Constantes cinétiques d'enlèvement du gasoil.....	42
Tableau III.6 : Constantes de cinétique de biodégradation du gasoil premier ordre.....	44
Tableau III.7 : Constantes de cinétique de biodégradation du gasoil deuxième ordre.....	45
Tableau III.8 : Comparaison des taux et constantes cinétiques de biodégradation du gasoil.....	46
Tableau III.9 : Constantes de cinétique de l'influence de la biomasse k pour les différents systèmes.....	47

Nomenclature

Lettres latines

C	: Différentes concentrations de la gamme étalon de la courbe d'étalonnage.....	(mg/L)
CO	: Carbone organique	(%)
d_a	: Diamètre arithmétique.....	(μm)
d_h	: Diamètre harmonique.....	(μm)
d_p	: Diamètre moyen des particules	(μm)
g	: Force gravitationnelle.....	(N/kg)
Hu	: Taux d'humidité (kg eau/kg de matière humide)	(%)
k	: Constante de la cinétique en tenant compte de la masse microbienne.....	(j^{-1})
k_1	: Constants de la vitesse d'enlèvement du gasoil 1 ^{er} ordre.....	(j^{-1})
k_2	: Constants de la vitesse d'enlèvement du gasoil 2 ^{ème} ordre.....	(g/g.j)
k_{11}	: Constante de vitesse de biodégradation de la fraction facilement dégradable.....	(j^{-1})
k_{22}	: Constante de vitesse de biodégradation de la fraction réfractaire.....	(j^{-1})
$k_{1\text{bio}}$: Constante de la vitesse de dégradation du gasoil 1 ^{er} ordre	(j^{-1})
$k_{2\text{bio}}$: Constante de la vitesse de dégradation du gasoil 2 ^{ème} ordre	(g/g.j)
m_{ex}	: La masse d'eau en excès.....	(g)
MO	: Matière organique (kg de MO/ kg de solide).	(%)
m_p	: La masse de l'eau dans les pores.....	(g)
m_t	: La masse totale.....	(g)
P	: Poids de la prise d'essai.....	(g)
Q	: Débit d'air de la pompe.....	(mL/s)
T	: Température	(°C)
t	: Temps.....	(s.j)

[TPH] : Concentration résiduelle du gasoil	(g/g)
[TPH] ₀ : Concentration initiale du gasoil.....	(g/g)
U _{mf} : Vitesse minimale de fluidisation.....	(cm/s)
v : Vitesse de la réaction de dégradation du gasoil.....	(g/g.j)
V : Volume d'eau chassé par l'air.....	(mL)
V' : Volume de l'aliquote.....	(mL)
v _p : Volume de l'eau dans les ports	(mL)
v _s : Volume du solide.....	(mL)
v _t : Volume total	(mL)
X : Nombre de la biomasse.....	(UFC/g)
X' : Volume de la solution de sel de Mohr utilisé pour doser l'échantillon de sol	(mL)
Y : Volume de la solution de sel de Mohr utilisé pour le dosage du témoin.....	(mL)

Lettres grecques

α : Fraction des hydrocarbures facilement dégradable.

ε : Porosité du solide.

ε_{mf} : Porosité du solide.

ρ : Masse volumique des particules solides..... (g/cm³)

ρ_g : Masse volumique du gasoil.....(g/cm³)

ρ_p : Masse volumique des particules.....(g/cm³)

\emptyset_p : Sphéricité des particules.

μ_g : Viscosité du gasoil.....(kg/m.s)

μ_{max} : Taux de croissance maximum..... (j⁻¹)

Introduction

générale

*« Tout est poison, rien n'est poison,
seule la dose fait le poison ».*

Paracelse, XVIe siècle

Si les hommes ont enfin pris conscience de la vulnérabilité de l'environnement, ils n'apprécient pas toujours le rôle particulier du sol, à ce point de vue : le sol constitue, en effet le point sensible de l'environnement terrestre et doit être l'objet prioritaire de leurs préoccupations [1]. Ce milieu est une ressource essentielle à la vie (biodiversité) et aux sociétés humaines (agriculture et urbanisme). Aussi, il est nécessaire de le protéger en prévenant les pollutions de toutes natures et en restaurant si nécessaire les compartiments pollués.

Les substances xénobiotiques susceptibles de contaminer les sols sont extrêmement nombreuses et diverses en raison des activités humaines multiples qui peuvent en être la source, mais l'attention est plus particulièrement portée, sur les hydrocarbures. Il n'y a guère de sens à établir une hiérarchie dans le caractère polluant de ces substances, tant elles diffèrent par leurs comportements dans les milieux physiques, par leurs effets biologiques et par les quantités susceptibles de contaminer ces milieux sous forme diffuse ou localement massive [2].

Plusieurs techniques de traitements sont utilisées pour la réhabilitation des sols faisant appel à des procédés thermiques, physiques, chimiques et/ou biologiques. La stratégie adoptée dépend du site, de son contexte géographique, du degré et du type de pollution. D'autre part, l'importance des coûts de traitement a conduit à la recherche de nouvelles techniques de dépollution plus performantes et plus économiques et un intérêt particulier est porté sur le développement des techniques biologiques mises en œuvre hors site qui offrent de bonnes perspectives tant au point de vue performance, qu'au point de vue respect environnemental. Leur mise en œuvre est de plus en plus envisagée dans la mesure où ce sont des technologies relativement simples [3]. La biodégradation des hydrocarbures, qui exploite la capacité des microorganismes à dégrader les molécules organiques, a été établie comme un moyen efficace, économique, polyvalent et écologique de traitement du sol [4].

Largement utilisé dans le monde, le carburant gasoil représente une source de pollution des sols. Dans ce cadre, nous nous intéresserons particulièrement à la biodégradation du gasoil. La problématique consiste à étudier la dépollution d'un sol pollué au niveau du laboratoire à raison de 10g de gasoil par kg de sol sec.

Notre choix s'est porté sur l'utilisation de la technique d'un traitement du sol en bioréacteur gaz-solide sous des conditions aérobies. Nous nous intéressons à l'influence de l'aération sur l'efficacité de la bioremédiation, l'oxygène étant un facteur limitant.

Le présent mémoire est organisé de la manière suivante :

- Le chapitre I : l'étude bibliographique introduit quelques notions essentielles pour la compréhension de la remédiation et la réhabilitation des sols pollués par les hydrocarbures ainsi que les différentes techniques de dépollution, en particulier les bioréacteurs.
- Le chapitre II : est consacré à la description du dispositif expérimental, du matériel et les méthodes de mesure des paramètres étudiés.
- Le chapitre III : est consacré à l'ensemble des résultats obtenus dans le cas du traitement d'un sol pollué par du gasoil dans un bioréacteur gaz-solide sous des conditions aérobies. Il porte sur l'influence des différents débits d'aération. L'influence de l'aération sur la biodégradation du gasoil est étudiée à partir du suivi de la biomasse par dénombrement et par mesure de la matière sèche des micro-organismes, ainsi que celle des hydrocarbures totaux (TPH), en fonction du temps, les cinétiques d'enlèvement et de biodégradation du gasoil, et la détermination des caractéristiques physico-chimiques et biologiques du sol sera nécessaire au préalable.

Chapitre I

Revue bibliographique

La pollution des milieux terrestres constitue un problème environnemental majeur parce que du fait de l'échelle massive à laquelle elle intervient, son impact sur la santé humaine et sur le fonctionnement de la biosphère est devenu très préoccupant. Les hydrocarbures sont les polluants organiques les plus fréquents, ce qui est compréhensible étant donné le rôle fondamental des produits pétroliers dans l'économie moderne et les quantités énormes utilisées de par le monde [5].

I.1. Hydrocarbures

Les hydrocarbures, au sens chimique du terme, sont des composés organiques ne contenant que du carbone et de l'hydrogène, associés en molécules d'une très grande diversité, de la plus simple, le méthane, constituant principale de gaz naturel, au plus complexe et mal connue qu'on trouve dans les fractions lourdes des pétroles bruts.

Le terme de pétrole ou d'huile couvre une très grande variété de compositions d'huile formées par des mélanges d'hydrocarbures et de composés de structures apparentées. Les constituants appartiennent à quatre familles [2].

I.1.1. Classification

I.1.1.1. Hydrocarbures saturés

Cette famille est constituée d'une part par les paraffines normales (linéaires) et les isoparaffines (ramifiées) et d'autre part par les cycloparaffines, appelées aussi naphènes, qui peuvent être monocycliques ou polycycliques (cycle à 5 ou 6 atomes de carbone) avec un ou plusieurs groupements paraffiniques linéaires ou ramifiés (groupe alkyle), branchés sur un ou plusieurs cycles.

I.1.1.2. Hydrocarbures aromatiques

Ils comprennent les monoaromatiques (benzène et ses dérivés monoalkyles, polyalkyles et cycloparaffiniques) et les polyaromatiques de 2 à 7 cycles environ qui peuvent contenir en outre des cycles paraffiniques et des groupements alkyles branchés sur les noyaux.

I.1.1.3. Résines

Les résines regroupent essentiellement les composés contenant un ou plusieurs hétéroatomes leur conférant un caractère polaire marqué qui se traduit par une rétention sélective sur des adsorbants de séparation chromatographique ; ce sont principalement des

composés oxygénés tels qu'aldéhydes, cétones, éthers cyclique et acides, en particulier acide naphtéinique, ainsi que des composés azotés.

I.1.1.4. Asphaltènes

Ils sont constitués par des composés hétérocycliques lourds et complexes, dont certains contiennent en particulier le nickel et le vanadium, qui sont maintenus en suspension micellaire dans le pétrole par les résines et qui ont la propriété de précipiter lorsque le pétrole est dilué par un grand volume de paraffine légère liquide (propane, butane, pentane, hexane ou heptane).

I.1.2. Raffinage

Le raffinage conduit à des produits multiples, répondant chacun à des spécifications techniques très strictes. La composition en hydrocarbures variera donc d'un produit à l'autre en fonction des bruts utilisés et des schémas de raffinage mis en œuvre [5].

Les produits pétroliers commerciaux sont fabriqués à partir des coupes de distillation des bruts à pression atmosphérique et sous vide. Ils sont caractérisés par des intervalles de distillation plus ou moins larges, des plus légers, éthers de pétrole aux plus lourds, fioul lourd et bitume, en passant par les carburants auto, le gazol et le fioul domestique [2].

I.1.3. Gasoil

Le gasoil ou le gazol est un mélange de carburant complexe [6] de plus de 2000 composés, qui ne peuvent être tous séparés par chromatographie [7,8]. Ils contiennent principalement le naphthalène et certains de ses homologues alkylés, mais aussi des traces de polyaromatiques à 4 et 5 cycles [2] et de faibles concentrations de soufre, d'azote et d'oxygène [6]. En revanche, le nombre de carbone est compris entre 11 et 25 [9].

Le gasoil est utilisé dans les moteurs à combustion interne et allumage par compression (moteurs diesel) utilisés dans diverses applications telles que les automobiles, fourgonnettes, autobus, camions, locomotives, navires et applications stationnaires (groupes électrogènes, par exemple) [6].

- **Propriétés physico-chimiques du gasoil**

Les propriétés physico-chimiques des polluants organiques permettent de comprendre et de prédire le devenir de ces molécules dans les différents écosystèmes (mobilité, dégradation abiotique et biotique) [10].

- Etat physique : liquide ;
- Couleur : jaune paille ;
- Odeur : caractéristique ;
- pH : non applicable ;
- Masse volumique : 820 - 845 kg/m³ (a 15°C) ;
- Température d'ébullition : 180 à 380°C ;
- Densité de vapeur : > 5 (air=1) ;
- Point d'éclair : > 55 °C (ISO 2719) ;
- Température d'auto-inflammation : > = 250 °C (ASTM E 659) ;
- Viscosité : < 7 mm²/s à 40°C ;
- Solubilité : - Dans l'eau : Pratiquement non miscible ;
 - Dans les solvants organiques : Soluble dans un grand nombre de solvants usuels.

I.2. Pollution des sols par les hydrocarbures

La diversité des produits pétroliers se retrouve dans celle des polluants qu'ils deviennent une fois émis dans l'environnement à différents stades de leur utilisation [5].

I.2.1. Origine des pollutions

L'origine des pollutions, localisées ou diffuses, est liée aux activités industrielles, militaires et urbaines, contemporaines ou passées [2]:

- Déversements plus ou moins massifs lors d'accidents de transport d'hydrocarbures par route ou chemin de fer, lors de ruptures accidentelles d'oléoducs, lors d'incendies ou d'explosions d'unités de production industrielle ou de cuves de stockage hors sol dans les centres de distribution, lors des opérations de transfert et de distribution (fausses manœuvres humaines);
- Fuites d'oléoducs et de cuves enterrées, industrielles (stations-service par exemple) ou domestiques, résultant souvent de la corrosion des installations ;
- Infiltrations à partir de dépôts de déchets industriels et urbains contenant des hydrocarbures, mal stockés et mal contrôlés ;
- Déversements et enfouissements volontaires de déchets d'hydrocarbures, liés à des activités domestiques, artisanales, commerciales, agricoles ou industrielles ;
- Retombées atmosphériques dans les zones urbaines et industrielles ou leurs périphéries (hydrocarbures volatils, imbrûlés de combustions diverses).

I.2.2. Généralités sur le sol

Les sols dans lesquels s'écoulent les polluants sont des milieux complexes et variés. C'est pourquoi, nous introduisons quelques éléments de physique des sols et de pédologie [5].

I.2.2.1. Définition

Selon la définition de l'Organisation internationale de normalisation (ISO), le sol correspond à la couche supérieure de la croûte terrestre. D'une épaisseur de 30 cm en moyenne, il est constitué de particules minérales, de matière organique, d'eau, d'air et d'organismes vivants (racines, faune, micro-organismes). Extrêmement lente, sa formation résulte principalement de processus complexes d'altération des roches et de décomposition de la matière organique [11].

Les constituants minéraux et organiques en forment l'ossature solide ; la solution du sol est un des vecteurs privilégiés des matières alors que l'atmosphère du sol représente une interface gazeuse à l'intérieur du sol et avec le milieu extérieur (tableau I.1) [12].

I.2.2.2. Caractéristiques du sol

Selon la nature des roches initiales, de l'action des climats et des activités biologiques et humaines, les couches successives qui le composent ont des caractéristiques physiques, chimiques et biologiques variables [11].

I.2.2.2.1. Granulométrie

La granulométrie, ou texture, correspond à la répartition des minéraux par catégorie de grosseur (en fait, diamètre, les particules étant supposées sphériques), indépendamment de la nature et de la composition de ces minéraux. La granulométrie fournit un renseignement précieux sur la pédogenèse.

A la suite d'une convention internationale, les particules sont classées de la façon suivante, en fonction de leur diamètre [1] :

- *Cailloux et graviers* ($d > 2\text{mm}$) : ils sont classés à part, la granulométrie proprement dite concernant la terre fine (diamètre inférieur à 2mm) ; leur nature (souvent débris de roche-mère) est importante à déterminer ;
- *Sables* : de 2mm à 50 μm (sables grossiers : 2mm à 0,2mm ; sable fins : 0,2 à 50 μm) ;
- *Limons* : de 50 μm à 2 μm (limons grossiers : 50 μm à 20 μm ; limons fins : 20 μm à 2 μm) ;

- *Fraction fine* : $< 2\mu\text{m}$; cette fraction est communément appelée « argile », on subdivise souvent les argiles en fines, moyennes et grossières.

Tableau I.1 : Les principaux constituants du sol [13].

	Constituants solides		Constituants liquides (solution du sol)	Constituants gazeux (atmosphère du sol)
	Minéraux	Organiques		
Origine	Désagrégation physique et altération biochimique des roches	Décomposition des êtres vivants	Précipitation, nappe, ruissellement	Air hors sol, matière en décomposition, respiration
Critères de classement	Taille (granulométrie) Qualité (minéralogie)	Etat (vivant, mort) Qualité chimique (originelle, transformée)	Origine (météorique, phréatique) Etat physique (potentiel hydrique) Qualité chimique	Origine (air, organismes) Qualité chimique
Catégories	Selon granulométrie - Squelette ($>2\text{mm}$) - Terre fine ($<2\text{mm}$) Selon minéralogie - Quartz - Minéraux silicatés - Minéraux carbonatés	- Organismes vivants - Organismes morts - Matières organiques héritées : celluloses, lignines, résines - Matières organiques humifiées : acides fulviques et humiques, humines	- eau - substances dissoutes : glucides, alcools, acides organiques et minéraux, cations et anions	- gaz de l'air : N_2 , O_2 , CO_2 - gaz issus de la respiration et de la décomposition des organismes : CO_2 , H_2 , CH_4 , NH_3

La classification des textures offre une grande importance dans la mesure où elle permet de définir, en combinaison avec la structure, l'essentiel des propriétés physique du sol [1]. Elle est repérée dans un triangle des textures (figure I.1) [12].

Il est possible de regrouper les textures dans quatre catégories principales [1] :

- *Texture sableuse* : sol bien aéré, facile à travaillé, pauvre en réserve d'eau, pauvre en éléments nutritifs, faible capacité d'échange anionique et cationique ;
- *Texture limoneuse* : l'excès de limon et l'insuffisance d'argile peuvent provoquer la formation d'une structure massive, accompagnée de mauvaises propriétés physiques. Cette tendance est corrigée par une teneur suffisante en humus et en calcium ;
- *Texture argileuse* : sol chimiquement riche, mais à mauvaises propriétés physiques ; milieu imperméable et mal aéré, formant obstacle à la pénétration des racines ; travail du sol difficile, en raison de la forte plasticité (état humide), ou de la compacité (état sec). Une bonne structure favorisée par l'humification corrige en grande partie ces propriétés défavorables ;
- *Texture équilibrée* : elle correspond à l'optimum, dans la mesure où elle présente la plupart des qualités des trois types précédents, sans en avoir les défauts ;

I.2.2.2.2. Porosité

La porosité, c'est-à-dire le volume des vides, exprimé en pourcentage du volume total, divisé lui-même en deux parties : capacité en air, capacité en eau, est la meilleure expression de l'état actuel de la structure et donne les indications essentielles concernant les propriétés physiques [1].

I.2.2.2.3. Régime hydrique et taux d'humidité

Le régime hydrique du sol dépend directement des trois propriétés suivantes :

- La texture détermine les forces de rétention de l'eau ;
- La structure influence la circulation de l'eau ;
- La porosité définit le volume du réservoir hydrique du sol ;

La quantité totale d'eau retenue par un sol est la différence de poids d'un échantillon avant (poids frais) et après (poids sec) dessiccation à 105°C. Rapportée au poids sec, elle permet de calculer le taux d'humidité pondérale. Cette dernière ne comprend toutefois pas l'eau fixée chimiquement, par exemple sur des argiles, qui n'est évaporée qu'à 500°C [12].

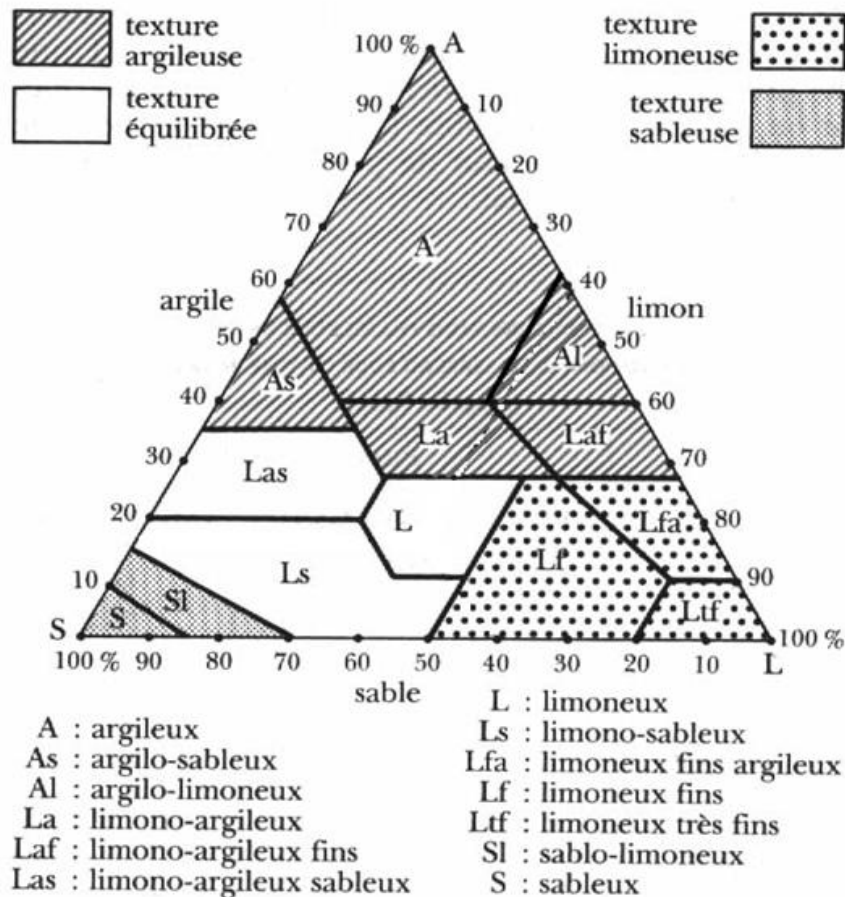


Figure I.1 : Triangle des textures [14].

I.2.2.2.4. pH des sols

Le pH exprime l'acidité actuelle du sol : c'est le cologarithme de la concentration en ions H^+ de la solution du sol.

Les sols à pH [1] :

- < 7 sont acides ;
- = 7 sont neutres ;
- > 7 sont basiques ;

Chaque sol présente un pouvoir tampon ; il garantit le maintien d'un système physico-chimique stable, dont profitent la végétation et la microflore [12].

I.2.2.2.5. Potentiel d'oxydoréduction

L'air du sol contient en moyenne 18 à 20% d'oxygène, ce qui est suffisant pour les organismes aérobies. Mais, dans ces cas précis, la concentration en oxygène peut diminuer fortement, jusqu'à des conditions réductrices.

I.2.2.2.6. Les êtres vivants : la microflore

Les organismes vivants du sol sont des bactéries, des champignons, des algues, les parties souterraines des plantes ainsi que des animaux très variés. Tous participent d'une manière ou d'une autre à la formation et à l'évolution du sol, en particulier de sa fraction organique. Leurs nombre et biomasse dans le sol dépassent souvent l'imagination (tableau I.2) [12].

Les bactéries du sol jouent un rôle important dans le cycle des éléments fondamentaux du sol, N, S, Fe, Mn en particulier en intervenant dans les processus d'oxydoréduction [1].

Tableau I.2 : Abondance des organismes vivants du sol [12].

Organismes	Nombre approximatif	
	Par gramme de sol sec	Par m ²
Bactéries	10 ⁶ - 10 ⁹	10 ¹¹ - 10 ¹⁴
Champignons	n.d.*	n.d.*
Algues	1000 - 10 ⁵	10 ⁸ - 10 ⁹
Protozoaires	10 ⁴ - 10 ⁶	10 ⁹ - 10 ¹¹
Faune de sol (sans protozoaires)	0,1 - 1000 Selon les groupes	10 - 5.10 ⁶ Selon les groupes

*n.d. = non déterminable

I.2.3. Devenir des hydrocarbures dans l'environnement

La connaissance du devenir des polluants dans l'environnement est essentielle pour définir des actions efficaces et réalistes en réponse aux problèmes complexes posés. Elle est indispensable pour évaluer l'acceptabilité des produits vis-à-vis de l'environnement, pour apprécier les perspectives et les possibilités de restauration des sites pollués. Les processus

gouvernant ce devenir sont deux types : les phénomènes physico-chimiques d'une part, et la biodégradation d'autre part [5]. Cette dernière est l'un des processus les plus importants [15].

La contamination par les hydrocarbures modifie la texture du sol, diminue la teneur en argile et augmente celle du sable. Ce changement de texture du sol peut être attribué à l'adsorption des hydrocarbures sur les colloïdes minéraux du sol tel les argiles et les substances humiques. La contamination par les hydrocarbures se traduit également par une diminution du pH et une augmentation significative de la conductivité [16].

- ❖ **Evaporation** : ce phénomène touche les fractions de faible poids moléculaires et dépend des conditions atmosphériques [17]. L'évaporation est généralement le principal processus d'altération au cours des premiers jours qui suivent un déversement. Elle peut être responsable de la perte d'un à deux tiers de la masse d'un déversement en l'espace de quelques heures ou d'une journée [18,19], pouvant conduire à une pollution atmosphérique [3,17]. Dans le cas de sols pollués par du pétrole brut à raison de 5%, la fraction volatilisée varie entre 10,5 et 33,1 % avec une moyenne de $21,0 \pm 2,4\%$ [20]. Dans les processus de décontamination des sols, le taux d'enlèvement des hydrocarbures par volatilisation se situe entre 14 et 35% [21] et entre 48 et 97% [22] ;
- ❖ **Solubilisation** : un hydrocarbure est d'autant plus soluble que sa masse moléculaire est faible et que sa polarité est élevée [23]. Il est important de noter que ces hydrocarbures solubles sont parmi les plus dangereux pour l'environnement, ils sont difficiles à éliminer et sont adsorbés par la faune et la flore [3,17] ;
- ❖ **Sédimentation** : c'est le passage du pétrole de la surface vers le fond [17]. Elle est le fait des fractions les plus lourdes qui conduit à la formation d'agrégats de haute densité difficilement biodégradables par voie naturelle ;
- ❖ **Photo-oxydation** : elle touche plus particulièrement les composés aromatiques (non volatils et photosensibles) présents en surface et les vapeurs atmosphériques. Elle conduit à la formation de nombreux composés chimiques [3] ;
- ❖ **Biodégradation naturelle** : est un processus non intrusif dont l'utilisation peut être envisagée lors de la remédiation des sites contaminés [24]. On parle alors d'atténuation naturelle (ou remédiation passive), comme outil de remédiation. Elle a été développée par l'US-EPA [25] sous le nom d'atténuation naturelle contrôlée, elle vise à exploiter les mécanismes naturels impliqués dans ce phénomène. Les micro-organismes jouent un rôle crucial dans le devenir des polluants, notamment dans la

dégradation des hydrocarbures pétroliers. L'effet des hydrocarbures sur les communautés microbiennes fait intervenir des mécanismes complexes dépendant de leurs capacités métaboliques, influencés par les paramètres environnementaux et la durée d'exposition aux polluants [26, 27, 28].

Des études de terrain s'accordent pour estimer que l'atténuation naturelle est lente, avec un temps de demi-vie d'au moins deux ans [29] et un rendement d'élimination de 1,7% [18].

I.2.4. Principaux paramètres régissant le devenir des polluants dans le sol

Le comportement et le devenir des polluants est complexe et est fonction [30] :

- ❖ Des conditions de déversement et de la quantité déversée ;
- ❖ Des conditions spatiotemporelles de pression et de température dans le sol et des conditions climatiques ;
- ❖ Des variations verticales de perméabilité et la porosité qui influenceront principalement le transport du polluant dans la phase liquide mobile dans laquelle il est dissout (advection) ;
- ❖ De la saturation en eau (perméabilité relative) ;
- ❖ Du temps de contamination et de l'activité biologique du milieu souterrain ;
- ❖ De la complexité des mélanges, les fractions les plus légères pouvant se déplacer plus rapidement que les composés les plus lourds et les plus visqueux qui restent liés à la matrice du sol.

I.3. Biodégradation des hydrocarbures

La biodégradation est une réaction de type redox qui aboutit à la dégradation des molécules organiques sous l'action de micro-organismes indigènes (autochtones) ou rapportés (allochtones) [22, 31, 32]. La figure I.2 résume le processus.

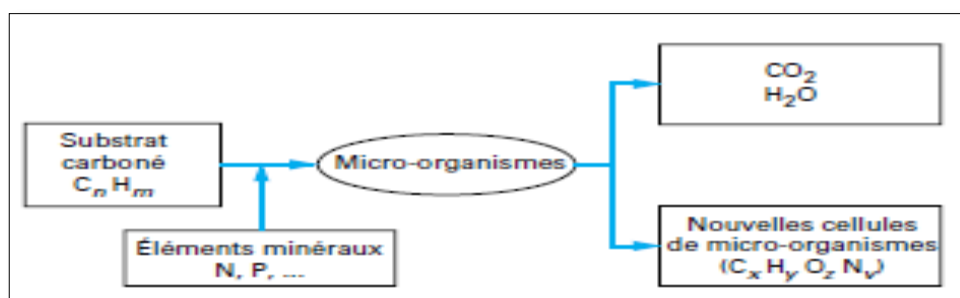


Figure I.2 : Processus de la dégradation d'un substrat organique [33].

Le processus se développe selon une réaction en chaîne, où les composés carbonés sont transformés (par cassures successives) en molécules de moins en moins complexes, jusqu'à l'obtention de sous-produits simples, généralement CO_2 et H_2O (la minéralisation). Les produits de transformation sont appelés métabolites.

En conditions oxydantes (aérobie), le rôle d'oxydant est tenu par l'oxygène. En conditions réductrices (anaérobie), ce rôle est tenu par les nitrates, les sulfates, le méthane [34].

I.3.1. Biodégradation du gasoil

La dégradation du gasoil commercial a été étudiée par plusieurs auteurs. Beaucoup de ces études réalisées avec des microcosmes de sol rapporté la dégradation incomplète de gasoil [35], et d'autres indiquent que le taux de biodégradation peut être proche de 100% lorsque les alcanes linéaires sont abondants [3].

La biodégradation du gasoil dépend de sa composition. C'est ainsi que le taux de biodégradation varie entre 60 et 73% [9] et entre 70 et 90% [29].

A la fin d'un traitement biologique, les n-alcanes sont complètement éliminés alors que la concentration des molécules lourdes est considérablement réduite [35]. Et 67 à 98% d'une fraction du gasoil ($\text{C}_{15} - \text{C}_{22}$) sont dégradés après 30 jours de traitement [36].

L'augmentation du débit d'air ou de la température augmente considérablement le processus de dégradation biologique du gasoil [37]. Par ailleurs, une atténuation complète du gasoil est obtenue au bout de 74 jours [38].

La biodégradation anaérobie du gasoil a été étudié dans des réacteurs anaérobies à boues de sol en utilisant divers accepteurs d'électrons (sulfate, nitrate,...). Les meilleurs résultats sont observés dans le cas d'un mélange d'accepteurs d'électrons suivi du sulfate. Le taux d'enlèvement du gasoil après 290 jours de traitement atteint 80,5% dans le cas d'un mélange d'accepteurs d'électrons et 55% dans le cas du sulfate. Enfin, cette étude a mis en évidence que la population microbienne hétérogène endogène a les capacités métaboliques pour dégrader le gasoil [34].

I.3.2. Facteurs influençant la biodégradation des hydrocarbures

L'application réussie de la technologie de bioremédiation pour les systèmes contaminés nécessite la connaissance des caractéristiques du site et les paramètres qui affectent la biodégradation microbienne des polluants [39, 40, 41, 42]. Cependant, un certain nombre des facteurs limitants ont été reconnues pour affecter la biodégradation des hydrocarbures [43] dont [33]:

- ✓ La disponibilité d'accepteurs d'électrons absolument nécessaires à l'action microbienne (oxygène) ;
- ✓ La teneur en eau (humidité);
- ✓ Le pH ;
- ✓ La température ;
- ✓ La disponibilité de nutriments minéraux (N et P) ;
- ✓ La nature du polluant, sa concentration dans le milieu et son accessibilité.

I.3.2.1. pH

Le pH du milieu peut affecter l'activité microbienne. La plupart des bactéries sont capables de se développer dans un intervalle de pH allant de 5 à 9, avec un optimum se situant aux alentours de 7 [33, 44].

I.3.2.2. Humidité

La présence d'eau est évidemment nécessaire pour le bon déroulement des processus biologiques, mais l'humidité assure également un rôle protecteur car elle permet de diluer la concentration du polluant et donc d'atténuer sa toxicité directe pour les microorganismes [5].

Les taux d'humidité du sol inférieurs à 2% limitent la croissance microbienne et les vitesses de biodégradation [33, 45]. Les taux d'humidité préconisés dans la littérature, varient selon les auteurs, certains proposent 10% [33], 14% [45], ou un taux d'humidité supérieur à 15% tandis que d'autres suggèrent qu'il soit ajusté à 60% de la capacité de rétention d'eau du sol [39].

I.3.2.3. Température

La température est également importante, elle joue un rôle dans la biodégradation des hydrocarbures pétroliers. D'abord, par son effet direct sur la chimie des polluants, et d'autre part, son effet sur la physiologie et la diversité dans le milieu microbien [46]. Globalement,

l'activité double quand la température augmente de 10°C, jusqu'à un optimum de 37°C pour les bactéries mésophiles [5].

Le métabolisme microbien et la biodégradation des composés organiques augmentent avec l'augmentation de la température [47, 48] ; cette dernière ne semble pas avoir un effet marqué sur l'abondance des micro-organismes totaux et hétérotrophes mais induit une légère augmentation des micro-organismes spécifiques de la dégradation des hydrocarbures [49].

L'augmentation de la température de 21°C à 30°C accélère la cinétique initiale d'enlèvement des hydrocarbures mais le taux d'enlèvement ultime reste inchangé. Cela suggère que c'est le phénomène de désorption qui limite le taux d'enlèvement des hydrocarbures et non l'activité biologique [50].

Le taux de dégradation des hydrocarbures diminue avec la diminution de la température de 20 à 5°C quand la population microbienne est en phase de croissance. En revanche, le taux de dégradation est indépendant de la température en phase stationnaire [47].

I.3.2.4. Nutriments

Si les hydrocarbures sont une source de carbone et d'énergie pour les microorganismes, ils n'apportent pas les nutriments essentiels à la croissance microbienne. Les principaux facteurs limitant dans le sol sont l'azote et le phosphore ainsi que le potassium, le fer, le soufre et d'oligo-éléments à des concentrations plus faibles pour assurer la croissance de la microflore [5]. Les sols contaminés où les teneurs en N et P sont faibles, nécessitent l'ajout des nutriments pour améliorer la biodégradation des polluants pétroliers [51,52].

En général, le rapport (carbone/azote/phosphore) est considéré comme optimal pour $(C/N/P) = 100/10/1$ [33, 38, 39, 53]. Et selon d'autres chercheurs, le rapport C/N est optimal pour la biodégradation s'étend de 14/1 [54] jusqu'à 560/1 [55].

Des essais de bioremédiation pendant 10 jours de sol pollués par des hydrocarbures dans des réacteurs agités ont mis en évidence un taux d'enlèvement des hydrocarbures plus important de 76% comparé à 66% dans le cas de sol amendé par des produits inorganiques. Une augmentation de la population bactérienne est également observée. L'addition de consortium bactérien pour différents amendements augmente de façon significative le taux d'enlèvement des hydrocarbures [3].

I.3.2.5. Oxygène

C'est le plus important des facteurs, à savoir la disponibilité en accepteurs d'électrons qui constitue, dans la majorité des situations, l'élément limitant au développement des processus microbiologiques, dans les sols [33].

L'oxydation par l'oxygène semble être le mécanisme primaire dans la biodégradation des hydrocarbures [56].

Le processus biologique aérobie est spécialement souhaitable pour la remédiation des sols contaminés par le diesel [35]. Lorsque l'oxygène est consommé par les micro-organismes, une nouvelle biomasse est synthétisée [57]. La concentration en oxygène doit être supérieure à 10% pour stimuler la dégradation par voie aérobie [48, 58]. La dégradation anaérobie des composés hydrocarbonés par les micro-organismes peut se produire mais les cinétiques sont beaucoup plus lentes que celles de la biodégradation aérobie [18].

Une texture argileuse et la présence de matières organiques affectent la teneur de l'oxygène dans le sol.

En général, les taux de conversion et les cinétiques de biodégradation dans des conditions aérobies sont considérablement plus élevés que ceux dans des conditions anaérobies [18,35].

I.3.2.6. Polluants

La vitesse de dégradation des composés organiques dépend de leur structure chimique. À titre d'exemple, dans la famille des hydrocarbures, ce sont les n-alcanes qui sont le plus rapidement métabolisés, les hydrocarbures aromatiques polycycliques à nombre de cycles élevés (≥ 4) sont plus résistants. Plus une molécule est substituée, plus elle est difficile à dégrader, la position des substituants jouant un rôle important puisque les positions ortho et méta augmentent la résistance des molécules, comme le font aussi les substitutions sur le carbone en alpha, comparativement à celles en oméga.

La résistance d'un produit peut découler de sa trop forte concentration qui provoquera l'inhibition ou l'inactivation des micro-organismes [18].

I.4. Réhabilitation des sols

D'importants et rapides progrès en recherche ont permis le développement de nombreuses techniques de traitement des sols contaminés nécessitant une réhabilitation parce qu'il présente un risque pour l'environnement. Le choix des techniques de traitement nécessite la compréhension de son principe de fonctionnement et de ses contraintes de mise en application, étroitement liées à des considérations d'environnement (pédologie, polluants présents, biodégradation, biotransformation, toxicité, risque encourus en utilisant tel ou tel traitement, etc.) [59].

Ces techniques peuvent être classées généralement suivant leur mode d'exécution, soit en l'occurrence ; techniques in situ, et techniques ex situ.

Chaque technique peut avoir quatre procédés différents ; les procédés thermiques, les procédés physiques, les procédés chimiques et les procédés biologiques. Un résumé des techniques disponibles ainsi que leur application est donné dans le tableau I.3.

• Biotraitabilité d'un sol contaminé

L'étude de traitabilité d'un sol contaminé représente une étape préalable et obligatoire dont les résultats vont aider à la prise de décision sur la réalisation d'un traitement et sur le choix de la technique la mieux adaptée à la résolution du problème posé.

Plusieurs types d'analyses devront être effectués sur des échantillons de sols prélevés à plusieurs endroits et profondeurs du terrain pollué [33] :

- Des analyses physiques afin de bien connaître les caractéristiques du sol (nature, granulométrie, perméabilité...) et d'évaluer leurs influences sur l'activité des micro-organismes ;
- Des analyses chimiques (nature, teneur, présence de contaminants minoritaires, par exemple des métaux qui pourraient inhiber les phénomènes microbiologiques, concentration en nutriments minéraux, oxygène...) afin de bien préciser les limitations aux processus biologiques ;
- Des analyses microbiologiques permettant de vérifier la présence et la capacité des micro-organismes du sol à dégrader les polluants en place.

Tableau I.3 : Classification des techniques de réhabilitation des sols contaminés [60].

Catégorie de traitement	Processus	Exemple (s)	Nature de la pollution
In situ	Thermique	Injection de vapeur	Solvants chlorés volatils
		chauffage imposé par fréquence radio, vitrification	
	Physique	injection d'air	Solvants chlorés volatils
		Lavage des sols, vitrification, stabilisation/solidification, extraction sous vide, réhabilitation, électrochimique	
		Oxydation, réduction chimique	
	Biologique	Atténuation naturelle, extraction triphasique biologique (bioslurping), biosparging	
		bioventilation	Volatils résiduels, huiles et lubrifiants du gasoil
Ex situ	Thermique	Incinération, vitrification	
	Physique	Lavage des sols, stabilisation/solidification vitrification	
	Chimique	Neutralisation	
		extraction par solvants	Semi-volatils halogénés, volatils et semi-volatils non halogénés, PCB
	Biologique	biotertres, bioréacteurs	
		Biopiles	Gasols, PCB

I.5. Bioréacteurs

Les techniques de bioremédiation hors site sont plus rapides, plus faciles à contrôler, et adaptées pour traiter un large éventail de contaminants et de types de sol que les techniques in situ. Parmi les techniques ex situ, les bioréacteurs sont davantage utilisés lorsque la pollution est importante et permettent en outre, le contrôle des paramètres environnementaux (pH, température, nutriments, taux d'humidité...).

Un bioréacteur peut être défini comme une enceinte de confinement qui contient un milieu fixe ou en suspension de biomasse et qui opère de façon aérobie ou anaérobie [61].

Ces réacteurs fonctionnent soit en continu soit en discontinu, les temps de séjour variant avec la biodégradabilité des polluants. Ils accélèrent considérablement la vitesse de dégradation des polluants et présentent plusieurs avantages dans le cadre des réacteurs gaz-solide-liquide :

- Meilleur contrôle des paramètres de culture (pH, température, nutriments) ;
- Oxygénation plus efficace ;
- Contact entre micro-organismes et polluants plus intimes ;
- Transfert de matière et thermique accrus ;
- Maintien des conditions optimales de biodégradation par sélection de souches adaptées ;

Les micro-organismes sont soit ceux du sol concerné, soit des micro-organismes extraits du même sol (endogènes) ou d'autres sites pollués et adaptés aux polluants à traiter, ou un consortium de souches pures dégradantes [62].

Deux types de réacteurs sont en général utilisés :

I.5.1. Bioréacteurs à boues activées

Dans les bioréacteurs à boues, le sol tamisé au préalable est mis en suspension dans l'eau moyennant une agitation mécanique, avec des pourcentages de solide compris entre 20 et 70% en masse [63,64]. Les vitesses d'agitation utilisées doivent être réduites mais suffisantes pour maintenir le sol en suspension et réduire le cisaillement du floc microbien.

En général, l'aération est assurée par de l'air comprimé à partir des diffuseurs situés au fond du réacteur. L'air est saturée en eau au préalable pour réduire les pertes par évaporation et les débits d'air sont ajustés pour maintenir une teneur en oxygène dans le réacteur proche de celle de saturation, c'est-à-dire approximativement de 6,5 mg/L, la teneur en oxygène étant directement liée au débit d'aération [65].

La circulation d'air et la vitesse d'agitation sont des facteurs importants affectant l'efficacité de la biodégradation dans les bioréacteurs à boues. L'aération combinée à un système d'agitation vise à améliorer les transferts d'oxygène et les contacts entre les phases biotique et abiotique.

Rhykerd et al. [77] ont étudié et comparé l'influence de deux méthodes d'aération (labourage, aération forcée) en présence et en l'absence d'agents de tassement utilisés pour augmenter la porosité dans le cas d'un sol pollué à 10% d'hydrocarbures totaux de pétrole (TPH) durant 30 semaines. La teneur en TPH diminue dans tous les cas tandis que la présence d'agents de tassement accélère le processus de bioremédiation. La cinétique est beaucoup plus importante durant les 12 premières semaines du traitement où les TPH ont diminué de 82% dans le cas le plus favorable comparé à 33% dans le cas le plus défavorable.

I.5.2. Bioréacteurs en phase solide

Dans les bioréacteurs en phase solide, l'eau est introduite pour maintenir un taux d'humidité suffisant et constant. Ce bioréacteur est peu coûteux, il exige une faible quantité d'énergie pour l'aération forcée ce qui rend la bioremédiation en phase solide plus attrayante car plus rentable même lorsque les durées de traitement sont très longues. Toutefois, l'enlèvement non uniforme des hydrocarbures, les faibles cinétiques et taux de biodégradation ; attribués à une distribution non homogène des nutriments et des micro-organismes dans le sol ; réduisent souvent l'efficacité de traitement en phase solide [64].

Chapitre II

Matériel et méthodes

Ce chapitre est consacré à la description du matériel et des méthodes utilisées dans le cadre du traitement d'un sol pollué par du gasoil sous des conditions aérobie et la détermination des caractérisations du sol.

II.1. Description du dispositif expérimental

Le dispositif expérimental schématisé sur la figure II.1, a été mis en place à l'échelle du laboratoire. Il est composé essentiellement d'un réacteur à lit fixe aéré à l'aide d'un ou deux diffuseur(s) d'air relié(s) à une pompe d'aquarium. Le réacteur à lit fixe est un béccher d'une capacité d'un litre, d'un diamètre intérieur de 9,5cm et d'une hauteur de 17cm, à l'intérieur duquel une couche de gravier est surmontée d'un distributeur (toile en tissu) sur lequel repose une quantité de sol à traiter. L'aération (alimentation forcée) est assurée à l'aide d'un ou deux diffuseur(s) enfoncés dans la couche de gravier. La pompe d'aquarium peut délivrer trois débits d'aération.

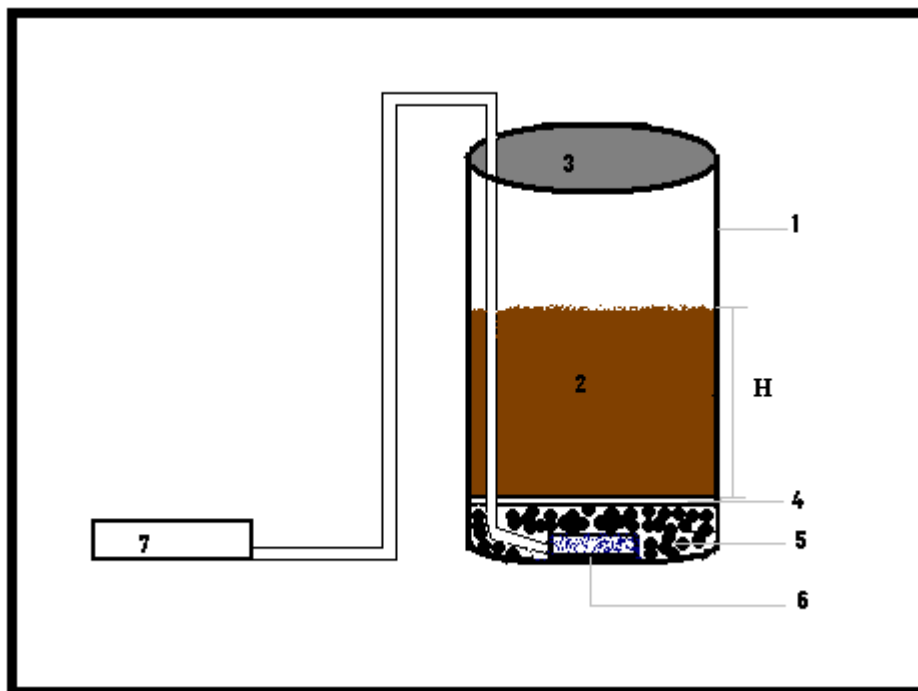


Figure II.1 : Schémas d'un bioréacteur aéré.

1. Becher 1L ; 2. Sol a traité ; 3. Couvercle ; 4. Distributeur ; 5. Support (gravier) ;
6. Diffuseur d'air ; 7. Pompe d'aquarium ; H. Hauteur du sol a traité ;



Figure II.2 : Bioréacteur aéré.

II.2. Caractéristiques du sol

II.2.1. Caractéristiques physico-chimiques

II.2.1.1. Analyse granulométrique

La répartition selon la taille est obtenue par l'analyse granulométrique par la méthode du tamisage (annexe 1). Cette opération consiste à placer un échantillon représentatif de particules solides dans un appareil de tamisage comportant plusieurs tamis d'ouvertures déterminées disposés dans le sens décroissant des ouvertures des mailles de haut en bas. Les particules dont les dimensions sont inférieures à celles des ouvertures traversent le tamis lorsqu'il est mis en vibration, alors que les plus grosses particules sont retenues. A la fin de l'opération, la masse du solide recueillie sur chacun des tamis est pesée.

Donc, les différents diamètres moyens peuvent être déterminés comme suit :

- Diamètre arithmétique :
$$d_A = \frac{\sum_i m_i d_i}{\sum_i m_i} \quad (\text{II.2-1})$$

- Diamètre harmonique :
$$d_H = \frac{\sum_i m_i}{m_i} \quad (\text{II.2-2})$$

Avec :

m_i : la masse du solide recueilli dans le tamis i (g) ;

d_i : le diamètre moyen des deux tamis consécutifs de diamètre d_{T_i} et $d_{T_{(i-1)}}$ (μm).

$$\text{Tel que : } d_i = \frac{d_{T_{(i-1)}} + d_{T_{(i)}}}{2} \quad (\text{II.2-3})$$

II.2.1.2. Masse volumique

La masse volumique d'un sol consiste à définir le poids de celui-ci par unité de volume. Elle est déterminée par la méthode de l'éprouvette graduée (annexe 2) dont le principe consiste à introduire une masse bien déterminée du solide dans une éprouvette graduée et à combler les interstices avec de l'eau jusqu'à un certain volume. La masse totale du système m_t ainsi obtenu est :

$$m_t = m_s + m_p + m_{ex} \quad (\text{II.2-4})$$

Et le volume total du solide immergé est :

$$V_t = V_s + V_p \quad (\text{II.2-5})$$

Avec :

m_t : masse totale (g) ;

m_s : masse du solide (g) ;

m_{ex} : masse d'eau en excès (g) ;

m_p : masse de l'eau dans les pores (g) ;

V_p : volume d'eau emprisonné dans les pores (cm^3) ;

V_s : volume du solide (cm^3) ;

V_t : volume apparent du solide (cm^3).

La masse volumique du solide ρ_s s'écrit donc :

$$\rho_s = \frac{m_s}{V_s} = \frac{m_s}{V_t - V_p} \quad (\text{II.2-6})$$

Avec :

$$V_P = \frac{m_T - m_S - m_{ex}}{\rho_{eau}} \quad (\text{II.2-7})$$

Et $m_{ex} = V_{ex} \cdot \rho_{eau}$ (II.2-8)

II.2.1.3. pH

Le pH du sol est déterminé selon la norme (NF ISO 10 390) comme suit :

(10 ± 0,1) g de terre fine mélangés avec 25mL d'eau distillée dans un bécher haut de 100mL, qui sont agités énergiquement avec une baguette en verre pendant quelque minute, puis laissés reposer pendant 2 heures. La lecture est ensuite effectuée à l'aide d'un pH-mètre.

II.2.1.4. Humidité

L'humidité est déterminée selon la norme (NF X 31-102). Le principe est un séchage à l'étuve à 105°C d'une masse donnée de l'échantillon du sol pendant 24 heures.

L'humidité résiduelle (Hu) exprimée en pourcentage de l'échantillon de sol est égale à :

$$Hu(\%) = \frac{m_0 - m_1}{m_0} \times 100 \quad (\text{II.2-9})$$

Où :

m_0 : masse de la prise d'essai avant séchage (g) ;

m_1 : masse de la prise d'essai après séchage (g) ;

Hu : taux d'humidité (%)

II.2.1.5. Nutriments

Les méthodes de dosage des nutriments sont effectuées après leur extraction de la matrice du sol (annexe 3).

II.2.1.5.1. Nitrites

Selon la norme (ISO 677-NF EN 26777), les nitrites sont dosés par la méthode de réactif de diazotation (annexe 3). La diazotation de l' amino-4-benzènesulfonamide par les nitrites en milieu acide et sa copulation avec le dichlorure de N-(naphtyl-1) diamino-1,2-

éthane donne un complexe coloré pourpre susceptible d'un dosage calorimétrique à la longueur d'onde $\lambda=537$ nm (annexe 3).

II.2.1.5.2. Nitrates

Selon la norme (NF T 90 102), les nitrates sont transformés en dérivé nitro-phénol-sulfonique coloré au moyen d'acide sulfophénique (par la méthode de réactif sulfophénique) annexe 3.

II.2.1.5.3. Azote ammoniacal

Selon la norme (NF 90-015), l'azote ammoniacal est dosé par le réactif de Nessler. En présence d'hydroxyde de potassium ou de sodium, il se produit une réaction entre les ions NH_4^+ et le réactif de Nessler (iodo-mercurate de potassium alcalin) avec formation d'un composé de coloration variant du rouge au brun. L'ajout dans le milieu réactionnel de tartrate double de sodium et de potassium a pour rôle d'éviter la formation d'un trouble dû à l'interférence du calcium et du magnésium présents dans la solution du sol (annexe 3).

II.2.1.5.4. Phosphore

Le phosphore est dosé selon la norme (NF EN 1189). Les ions ortho-phosphates en solution acide (H_2SO_4) et en présence d'ions molybdate d'ammonium et le tartrate double d'antimoine et de potassium forment un complexe d'antimonyl-phosphomolybdate qui après réduction par l'acide ascorbique, donne un complexe de molybdène fortement coloré en bleu susceptible d'un dosage calorimétrique à la longueur d'onde $\lambda=800$ nm (annexe 3).

II.2.1.6. Demande chimique en oxygène

Méthode de reflux en système fermé suivi d'un dosage par colorimétrie avec le bichromate de potassium, selon le centre d'expertise en analyse environnementale du Québec [67]. La matière oxydable contenue dans un échantillon est oxydée par chauffage à reflux en milieu fortement acide avec une quantité connue de bichromate de potassium dans une éprouvette fermée. La consommation d'oxygène par l'échantillon provoque un changement de couleur dont l'absorbance est proportionnelle à la quantité de bichromate de potassium réduit et se mesure en équivalent d'oxygène (annexe 3).

II.2.1.7. Carbone organique

Selon la méthode Anne (NF ISO 14235), la détermination de la teneur en matière organique MO du sol passe par le dosage du carbone organique du sol qui se fait par oxydation à chaud avec une solution de bichromate de potassium en milieu sulfurique (source de chaleur). La quantité de bichromate doit être en excès par rapport à la quantité nécessaire à

l'oxydation du carbone organique du sol. L'excès de bichromate de potassium qui n'a pas réagi est ensuite titré par une solution de sel de Mohr en présence de diphénylamine (annexe 3).

Le carbone organique est calculé à partir de l'équation suivante :

$$CO(\%) = \frac{(Y-X') \times 0,615 \times (100/V')(100/P)}{1000} \quad (\text{II.2-10})$$

Tel que :

X' : volume de la solution de sel de Mohr utilisé pour doser l'échantillon de sol (mL) ;

Y : volume de la solution de sel de Mohr utilisé pour le dosage du témoin (mL) ;

P : poids de la prise d'essai (g) ;

V' : volume de l'aliquote (20mL) ;

CO : carbone organique (%).

II.2.2. Caractéristiques bactériologiques

II.2.2.1. Méthode de dilution

Cette analyse est basée essentiellement sur le dénombrement de la population microbienne autochtone présentes dans un échantillon du sol, en utilisant la méthode de dilution et ensemencement sur boîte de pétri.

❖ Préparation des échantillons

Un échantillon de 1g de sol est mis dans un tube contenant 10mL d'eau physiologique stérile et la suspension est agitée pendant une minute. A partir de cette suspension, on récupère la solution mère et à partir de cette solution, on prépare une série de dilutions dans des tubes à essai stérile contenant chacun 9mL d'eau physiologique. Il s'agit de prélever 1mL de la solution mère à l'aide d'une micropipette stérile, que l'on transfère dans le premier tube d'eau physiologique pour obtenir une dilution de 10^{-1} . 1mL est ensuite prélevé de ce premier tube pour être transféré dans un deuxième tube pour obtenir une dilution de 10^{-2} , et ainsi de suite jusqu'à la dilution voulue.

❖ **Inoculation sur boîtes de Pétri**

1mL de chacune des dilutions est prélevé à l'aide de micropipette et est mis dans une boîte de Pétri. 10 à 15mL de gélose nutritive liquéfiée (tempérée à 45°C) sont ensuite coulés dans les boîtes de pétri que l'on étale pour mélanger uniformément (par rotation et mouvement de huit) le milieu nutritif et l'inoculum. Laisser solidifier la gélose sur une surface à niveau plane. Après une incubation de 24 à 48 heures à 30°C, les colonies développées sont dénombrées. Une moyenne des nombres de germes pour chaque dilution dénombrable est exprimée en unités formant les colonies UFC/g.

II.2.2.2. Méthode gravimétrique

Cette méthode est utilisée pour déterminer la masse des micro-organismes présents dans le sol. Une quantité de 1g de sol est mise dans 9mL d'eau physiologique stérile, la solution est ensuite agitée pendant 1h, puis laissée à décanter. Un volume de 4mL est prélevé, pesé, puis mis dans l'étuve à 105°C pour le sécher jusqu'à obtention d'un poids constant.

II.2.3. Hydrocarbures du sol

L'extraction des hydrocarbures du sol a été réalisée dans un extracteur ultrason (firm Bioblock 88155) à température ambiante en utilisant le solvant dichlorométhane par la méthode de bi-lavage. Le mélange (dichlorométhane + extrait) est filtré au préalable. La détermination des hydrocarbures totaux (TPH) du sol est réalisée par pesée de l'extrait recueilli après évaporation du solvant en utilisant un rotavapor (firm Buchi Rotavapor R II) (annexe 4).

❖ **Densité du gasoil**

La mesure de la densité du gasoil est effectuée à l'aide d'un densimètre à une température de 20°C (annexe 4).

II.2.4. Débit d'air

Le débit d'air entrant dans chaque réacteur a été assuré par une pompe d'aquarium à deux sorties avec trois débits différents, est déterminé expérimentalement comme suit :

Dans une éprouvette de 1000mL remplie d'eau, on place un ou deux diffuseur(s) d'air relié(s) à une pompe d'aquarium, on renverse le système et on le plonge dans un sceau rempli d'eau. Après avoir mis la pompe en marche, on note le volume d'eau chassé par l'air dans l'éprouvette et le temps correspondant. Les résultats sont donnés dans l'annexe 5.

Le débit d'air est calculé comme suit :

$$Q = \frac{V}{t} \quad (\text{II.2-11})$$

Avec :

V : volume d'eau chassé par l'air (mL) ;

t : temps correspondant au volume d'eau chassé par l'air (s) ;

Q : débit d'air de la pompe (mL/s) ;

Chapitre III

*Résultats
expérimentaux et
discussions*

L'objectif de notre travail est d'étudier l'influence de l'aération sur la bioremédiation d'un sol pollué par du gazoil dans un bioréacteur gaz-solide sous des conditions aérobies. A cet effet, nous suivrons l'évolution temporelle de la biomasse (dénombrement et matière sèche des micro-organismes), des hydrocarbures totaux (TPH) et de l'humidité maintenue constante durant toute l'opération de traitement. Le traitement biologique portera sur des systèmes biotiques et abiotiques afin d'évaluer les taux et les cinétiques d'enlèvement et de biodégradation du gazoil dans le cas du sol étudié.

Six réacteurs (figure III.1) sont utilisés simultanément en faisant varier la masse et par conséquent la hauteur du sol (stérile et non stérile), ainsi que le débit d'aération selon que soit utilisé un ou deux diffuseurs reliés à la pompe d'aquarium.

Pour s'assurer des conditions de fonctionnement d'un réacteur en lit et minimiser les pertes de gazoil par évaporation et transport [3], nous avons opté pour le plus faible débit d'aération et par conséquent la plus faible vitesse d'aération ($U_{a\acute{e}ration} \ll U_{mf}$ – annexe 5). Le tableau III.1 représente les différents systèmes utilisés.

Tableau III.1 : Les différents systèmes utilisés.

Système	Biotique			Abiotique		
Dénomination	H1D1NS	H2D1NS	H2D2NS	H1D1S	H2D1S	H2D2S
Hauteur (cm)	4	8	8	4	8	8
Masse (g)	300	600	600	300	600	600
Débit (cm ³ /s)	16,89	16,89	33,78	16,89	16,89	33,78
Nombre de diffuseur	1	1	2	1	1	2



Figure III.1 : Dispositif expérimental avec les différents systèmes utilisés.

Le traitement du sol en bioréacteur nécessite des opérations d'homogénéisation, de tamisage..., une caractérisation physico-chimique et biologique préalable du sol afin de réunir les conditions environnementales (la présence de micro-organismes appropriés, la disponibilité des nutriments, le pH, le taux d'humidité,...) optimale de biodégradation.

III.1. Etude du sol

Le sol étudié est un mélange équimassique de deux sols. Les deux sols (sol1 et sol2) qui proviennent :

- de la plage de Boumerdes (est Alger) à coté d'une bouche d'égout pour le sol 1;
- de l'école nationale polytechnique pour le sol 2.

Le prélèvement est effectué selon la norme (NF X 31-100) dont le principe consiste à exécuter un certain nombre de prélèvements élémentaires dans une zone présumée homogène et une couche de profondeur donnée.

Le sol a été séché à l'air libre et tamisé à travers un tamis de 0,8mm de diamètre, seules les particules inférieures à 0,8 mm ont été prises en considération. Il a été ensuite homogénéisé par la méthode des quartiers selon la norme (NF X 31-412).

III.1.1. Caractéristiques physico-chimiques du sol

Les caractéristiques physico-chimiques du sol avant contamination par le gasoil sont présentées dans le tableau III.2.

La détermination de ces caractéristiques est d'une grande importance puisqu'elle nous donne l'idée préliminaire sur le volume du sol, sur les performances de l'aération et sur son

comportement vis-à-vis de l'eau et de la biomasse qui conditionnée par les teneurs en nutriments, le pH et l'humidité.

Tableau III.2 : Caractéristiques physico-chimiques du sol.

d_p (μm)	345	pH	7,9
ρ (g/cm^3)	2,13	Hu (%)	0,94
ε	0,52	NO_2^- (g/g) $\times 10^6$	9,11
β (cm/h)	14,18	NO_3^{2-} (g/g) $\times 10^5$	7,77
% sable	27,54	NH_4^+ (g/g) $\times 10^5$	7,42
% limons	58,46	PO_4^{3-} (g/g) $\times 10^6$	6,12
% argiles	14,00	MO (%)	4,44
Texture	limoneuse	CO(%)	2,58

Le sol étudié est de texture limoneuse, la teneur en limon (58,46%) est en excès peuvent provoquer la formation d'une structure massive. La mesure de la perméabilité ($\beta = 14,18\text{cm}/\text{h} = 3,93 \times 10^{-5} \text{ m/s} < 6 \times 10^{-5} \text{ m/s}$) donne aussi une texture limono-sableuse, cette valeur permet une perméabilité modérée (oxygénation des bactéries) [1].

Nous remarquons que, le taux d'humidité est très faible ($< 2\%$) et constitué par conséquent un facteur limitant de la croissance microbienne et les vitesses de biodégradation [33, 45].

Le pH du sol est légèrement alcalin et est dans l'intervalle optimal $5 < \text{pH} < 9$, il est donc favorable pour la croissance des bactéries autochtones dégradantes des hydrocarbures [33, 44].

Les teneurs intrinsèques du sol en nutriments indispensables à l'activité et au développement des micro-organismes sont très faibles dans le cas d'une pollution par le gasoil à 1%. En effet, le rapport molaire C/N/P est de l'ordre 330/12,75/1, comparé aux rapports optimums donnés par la littérature qui sont de 100/10/1 [33, 38, 39, 53] et de Redfield 106/16/1 [71], ce qui nécessitera l'ajout de l'azote et du phosphore [3] pour améliorer la biodégradation des polluants [51,52].

III.1.2. Caractéristique bactériologique du sol

L'analyse biologique du sol met en évidence que les micro-organismes sont largement présents dans le sol avant pollution ($1,1 \times 10^6$ UFC/g). D'après les données de la littérature, la présence minimale est de 10^6 UFC/g de sol dans le cas d'un traitement biologique [66].

III.2. Pollution du sol

La pollution du sol par le gasoil a été faite au niveau du laboratoire à raison de 10g de gasoil/kg de sol sec biotique et abiotique (soit 12,16mL/kg), le sol abiotique étant un sol stérilisé à l'étuve à 105°C pendant 48h [73]. L'addition du gasoil n'affecte pas la valeur de pH qui demeure constant.

Les échantillons des sols pollués biotique et abiotique sont humidifiés à 15% [45] et amendés en azote sous forme de NH_4Cl et en phosphore sous forme de KH_2PO_4 selon le rapport C/N/P : 100/10/1. Ils ont été conservés en absence de la lumière et à la température ambiante dans une enceinte fermée pendant 3 jours afin que la flore autochtone puisse s'adapter au milieu, pour être ensuite traités dans un réacteur gaz-solide aéré durant 30 jours.

Dans le cas des systèmes abiotiques de référence, après addition du gasoil, des nutriments et de l'eau, une solution de chlorure de mercure HgCl_2 (4%) à raison de 12,5mL/kg y est injectée, avant le début du traitement.

III.3. Traitement biologique du sol

Après 3 jours d'incubation, le traitement biologique a été entamé. Le suivi de la biomasse, des TPH a été réalisé tous les 5 jours tandis que celui de la teneur en humidité et en nutriment étaient réalisés quotidiennement afin de maintenir constant le taux d'humidité (15%) et le taux des nutriments (C/N/P=100/10/1), par l'ajout d'une solution composée de 1g de NH_4Cl , 0,25g de KH_2PO_4 dans un litre d'eau distillée. Pour les systèmes abiotiques, on ajoute à cette dernière 1g de HgCl_2 [76].

III.3.1. Croissance microbienne

La figure III.2 représente la courbe de croissance des micro-organismes au cours du traitement pour les différents systèmes biotiques.

Au début de traitement ($t = 0$), on observe une diminution de la biomasse de $1,1 \times 10^6$ à $1,5 \times 10^5$, cela peut être dû à la toxicité du polluant (gasoil).

Les courbes de croissance microbienne présentent en général différentes phases : de latence, d'accélération, de croissance exponentielle, de ralentissement et de déclin [48]. Il ressort des résultats de mesure de la biomasse dans le cas du sol pollué par le gasoil à 1%, une phase de latence, une phase exponentielle suivie d'une phase stationnaire.

- La phase de latence ou phase d'adaptation est observée au début de traitement jusqu' au 11^{ème} jour pour les trois réacteurs, ceci est probablement dû à l'adaptation des micro-organismes avec le milieu contaminé ;
- La phase exponentielle où le nombre des micro-organismes augmente de façon linéaire pour atteindre un maximum de $3,90 \times 10^8$, $3,40 \times 10^9$, $1,24 \times 10^9$ UFC/g pour les systèmes respectifs H1D1NS, H2D1NS et H2D2NS. Cela correspond à l'étape où la dégradation des hydrocarbures est plus active et est accélérée. La phase de croissance exponentielle arrive à terme au bout de 20^{ème} jour ;
- La phase stationnaire où une légère diminution des micro-organismes est observée à partir du 20^{ème} jour pour se stabiliser entre le 25^{ème} et le 29^{ème} jour. Cette phase renseigne sur la stabilité du taux de croissance de la microflore qui atteint son maximum, les micro-organismes ne se reproduisant plus. L'épuisement des nutriments et l'épuisement de la fraction de substrat facilement biodégradable pourraient être responsables.

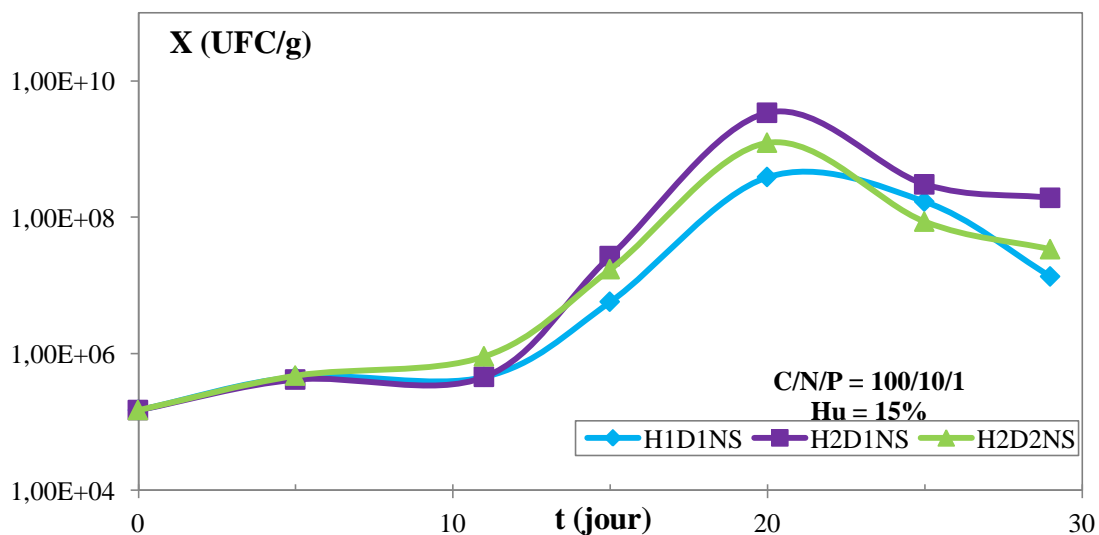


Figure III.2 : Evolution de la biomasse au cours du temps pour les différents systèmes biotiques.

Greer *et al.* [56] mettent en évidence que l'amendement du sol génère un accroissement de la flore microbienne qui passe de 3×10^7 à 10^8 UFC/g après quatre semaines de traitement.

Coulon et al. [7] *Sarkar et al.* [68], *Arrar et al.* [74] n'observent pas de phase de latence dans le cas de la bioremédiation d'un sol pollué par du gasoil. Selon *Mukherji et al.* [69], la phase de croissance exponentielle arrive à terme au bout de 8^{ème} jours. Les travaux de *Ghazali et al.* [36], dans le cas de la bioremédiation d'un sol contaminé par du gasoil (1,4%), mettent en évidence une augmentation du nombre des micro-organismes indigènes de 99,5% après 60 jours d'inoculation. L'addition d'un inoculum pour accroître le nombre de micro-organismes de 10^5 à $2,6 \times 10^7$ UFC/g s'accompagne d'une diminution les 30 premiers jours ($4,5 \times 10^6$ UFC/g) suivie d'une croissance bactérienne pour atteindre entre $9,2 \times 10^6$ et $1,2 \times 10^7$ UFC/g. *Sarkar et al.* [68] enregistrent un accroissement de la biomasse après une semaine de traitement de 57% en l'absence de fertilisant et de $124 \pm 140\%$ avec l'ajout de fertilisant ($1,2 \times 10^9$ UFC/g).

Il ressort des résultats de mesure de la biomasse que :

Pour un même débit d'aération, la croissance microbienne est plus importante lorsque la hauteur de sol est élevée (système H2D1NS).

Pour une même hauteur de sol c'est le débit d'aération le plus faible qui génère l'accroissement optimal de la biomasse (système H2D1NS). *Li et al.* [18] mettent en évidence que l'augmentation de l'aération ne stimule pas le nombre des micro-organismes.

❖ Taux de croissance maximal μ_{\max}

Le taux de croissance maximal est déterminé à partir des pentes des droites moyennes représentées par $\ln(X/X_0) = f(t)$ de la phase exponentielle de la croissance bactérienne. Les différents taux de croissance obtenus sont regroupés dans le tableau III.3. Les représentations graphiques sont données en annexe 6.

Tableau III.3 : Taux de croissance maximum pour les différents systèmes biotiques

C/N/P = 100/10/1, Hu = 15%.

Système	$\left(\frac{\text{Hauteur}}{\text{Diamètre}}\right)_{\text{colonne du sol}}$	Débit d'air (cm ³ /s)	μ_{\max} (j ⁻¹)	R ²
H1D1NS	0,42	16,89	0,752	0,993
H2D1NS	0,84	16,89	0,988	0,999
H2D2NS	0,84	33,78	0,802	0,998

Les résultats mettent en évidence un taux de croissance optimal de $0,988 \text{ j}^{-1}$ pour le système H2D1NS.

Les résultats de mesure de la biomasse, dans le cas de la bioremédiation de sols pollués par du gasoil, donnent des taux de croissance maximum de $0,038 \text{ j}^{-1}$ [34].

❖ Matière sèche m_s

Nous avons également suivi dans le cadre de l'étude de la croissance bactérienne, l'évolution de la matière sèche en fonction du temps pour les différents systèmes étudiés. La figure III.3 représente l'évolution temporelle de la matière sèche dans les différents systèmes biotiques.

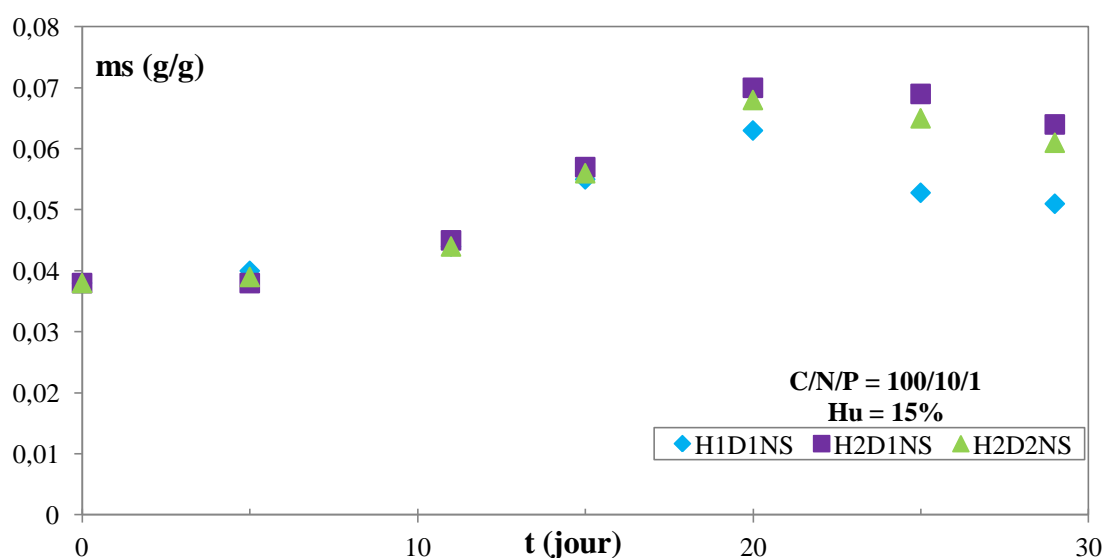


Figure III.3a : Evolution de la matière sèche pour les différents systèmes.

On remarque, une bonne corrélation entre le nombre des micro-organismes et la matière sèche (figure III.3a et 3b) et plus particulièrement durant les phases de latence et exponentielles. Aussi, il sera plus simple de suivre l'évolution de la biomasse à partir de la détermination de la matière sèche que celle de dénombrement qui nécessite 48 heures d'incubation. En se référant à la phase exponentielle, on trouve pratiquement que la croissance microbienne à travers la détermination de la matière sèche est similaire pour les trois systèmes biotiques étudiés.

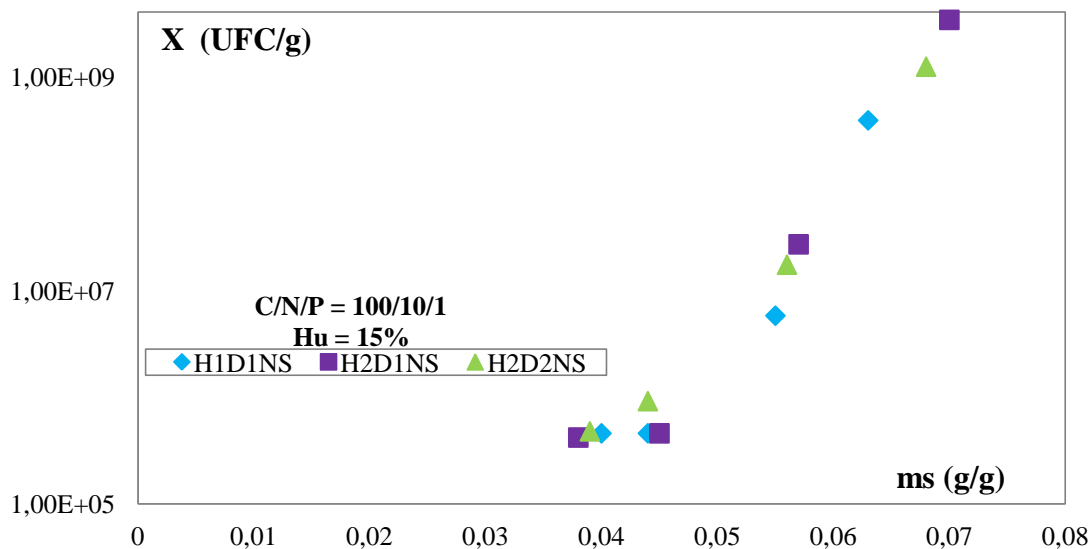


Figure III.3b : Evolution du nombre des micro-organismes en fonction de la matière sèche pour les différents systèmes.

III.3.2. Remédiation du sol

Le suivi des hydrocarbures totaux TPH pour les différents systèmes biotiques et abiotiques dans le temps, nous a permis de déterminer les rendements d'enlèvement et de biodégradation du gasoil dans le sol traité.

Les taux d'enlèvement et de biodégradation du gasoil sont déterminés à partir des équations suivantes :

$$\text{Taux d'enlèvement du gasoil} = \frac{[TPH]_0 - [TPH]_{bio}}{[TPH]_0} \quad \text{III.1}$$

$$\text{Taux de biodégradation} = \frac{[TPH]_{abio} - [TPH]_{bio}}{[TPH]_0} \quad \text{III.2}$$

Avec :

$[TPH]_0$: la concentration initiale du gasoil ;

$[TPH]_{bio}$: la concentration du gasoil à l'instant t pour le système biotique;

$[TPH]_{abio}$: la concentration du gasoil à l'instant t pour le système abiotique.

III.3.2.1. Enlèvement du gasoil

D'après la figure III.4a, une légère diminution est observée les 10-15 premiers jours pour les trois systèmes. Cette diminution est ensuite plus prononcée jusqu'à la fin du

traitement pour les deux systèmes H2D1 et H2D2. Dans le cas du système H1D1, la diminution est encore plus prononcée comparée aux deux systèmes derniers jusqu'au 25^{ème} jour pour ensuite se stabiliser.

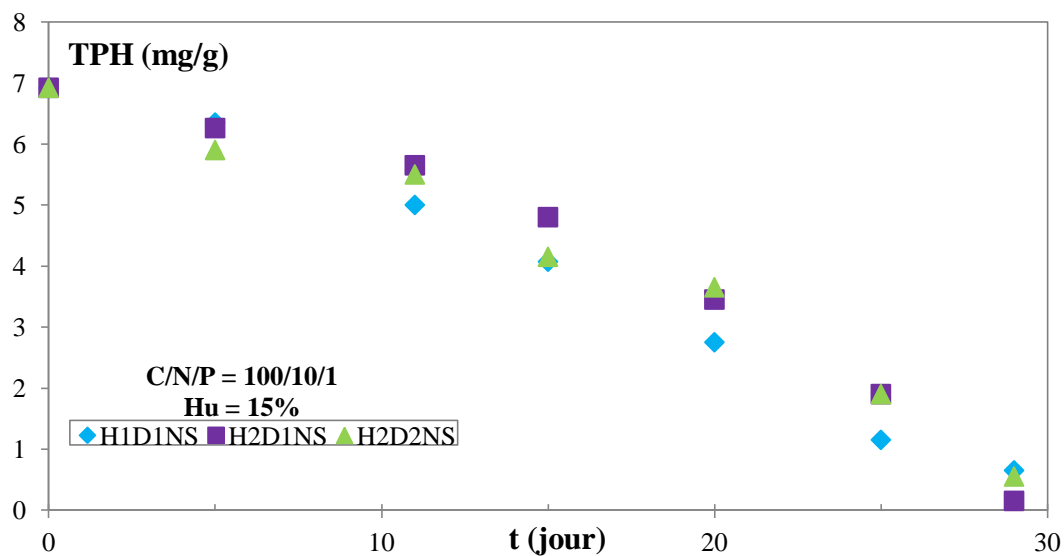


Figure III.4a : Evolution de la concentration des hydrocarbures totaux (TPH) en fonction du temps pour les différents systèmes biotiques.

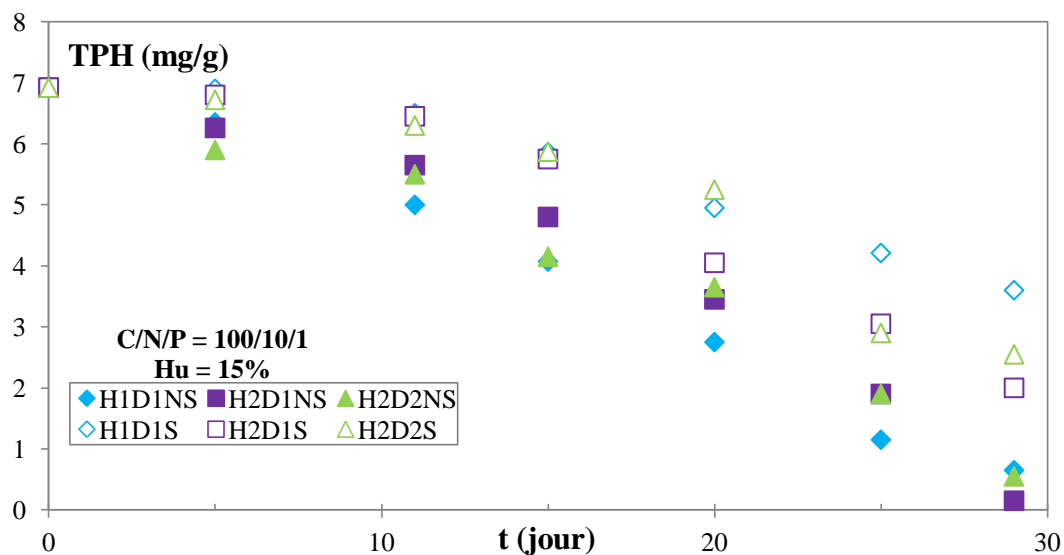


Figure III.4b : Evolution de la concentration des hydrocarbures totaux (TPH) en fonction du temps pour différents systèmes.

La même tendance est observée pour les différents systèmes abiotiques (figure III.4b), la concentration des hydrocarbures totaux (TPH) est relativement plus faibles que pour les systèmes biotiques.

L'élimination du gasoil est due aux processus biotique (minéralisation complète, production de biomasse et de métabolites) et abiotique (entraînement, volatilisation). Les systèmes biotiques impliquent des processus abiotiques et biotiques tandis que dans les systèmes abiotiques, seule la volatilisation, est à l'origine de l'élimination du gasoil [3].

L'évaporation est généralement le principal processus d'altération au cours des premiers jours qui suivent un déversement. Les molécules de faible poids moléculaires s'évaporent plus rapidement que celles de poids moléculaires élevés qui persistent dans le sol [70]. Le taux d'enlèvement des hydrocarbures par volatilisation se situe selon *Allen-King et al.* [21] entre 14 et 35% et selon *Chaplin et al.* [22] entre 48 et 97%.

Pour cela, nous avons jugé nécessaire d'estimer le taux d'enlèvement du gasoil pour chaque essai et de quantifier le taux de dégradation généré par les microorganismes.

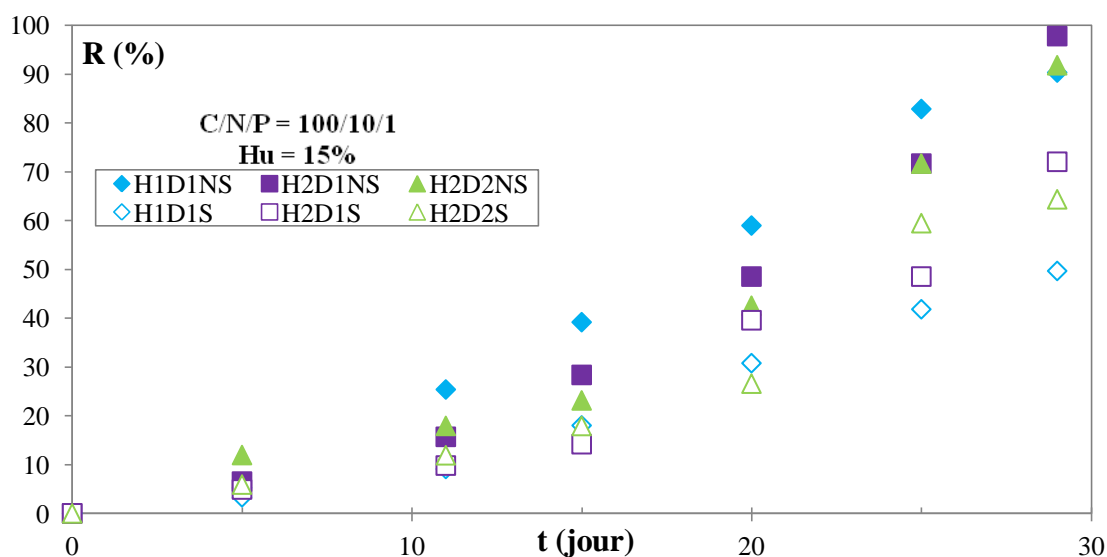


Figure III.5 : Rendement d'élimination du gasoil au cours du temps pour les différents systèmes étudiés.

La figure III.5 représente les rendements d'enlèvement du gasoil au cours du temps dans les différents systèmes. Le taux d'enlèvement augmente graduellement les dix premiers jours et puis de façon exponentielle à partir du 15^{ème} jour pour tous les systèmes biotiques. Il est à noter qu'à partir du 20^{ème} jour, les conditions de températures ambiantes (25 - 35°C) sont différentes de celle des premiers jours de traitement (entre 20 - 23°C).

Nous remarquons également pour les différents systèmes biotiques, que lorsque la hauteur de sol augmente, le taux d'enlèvement diminue, et pour une hauteur de sol constante,

l'augmentation du débit d'aération influe négativement sur le taux d'enlèvement des hydrocarbures du sol.

Il ressort clairement que le taux d'évaporation augmente avec les débits d'aération. Le taux d'enlèvement du gasoil par les phénomènes abiotiques (évaporation et transport) est relativement faible les premiers jours, il n'excède pas les 15% après 15 jours de traitement. Au delà du 15^{ème} jour, c'est une croissance exponentielle qui est d'autant plus importante que le débit est élevé (phénomène de transport).

III.3.2.2. Biodégradation du gasoil

La figure III.6 représente les rendements de biodégradation du gasoil dans les différents systèmes. Le taux de biodégradation augmente graduellement les quinze premiers jours, à partir du 15^{ème} jour, nous observons une augmentation importante pour le système H1D1 où il atteint une valeur maximum de 40,14% et une phase de stabilisation pour le système H2D2.

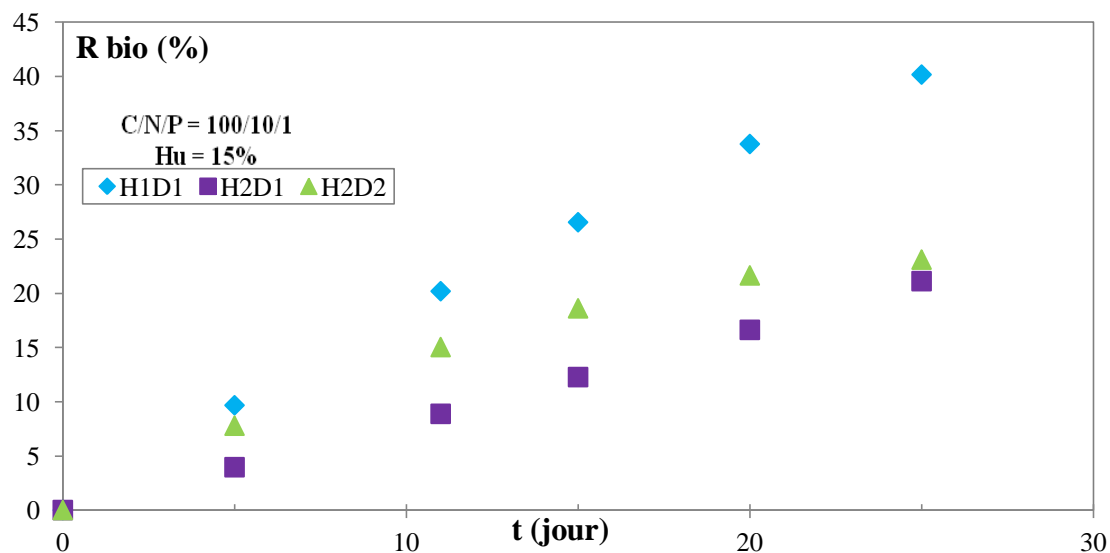


Figure III.6 : Rendement de biodégradation du gasoil au cours du temps pour les différents systèmes étudiés.

Il ressort des résultats de mesure que :

La variation d'une hauteur de sol influe négativement sur le rendement de biodégradation, il atteint 40,14% pour le système H1D1 et 21,10% pour le système H2D1.

Il ressort pour une même hauteur H2 et des débits différents que le débit d'aération influe peu sur le taux de biodégradation qui atteint 21,10% pour H2D1 et 23,09% pour H2D2.

Il semblerait que l'influence du débit dans le domaine étudié est négligeable comparé à celui de la hauteur de sol.

Selon certains auteurs [35], à la fin d'un traitement biologique, les n-alcanes sont complètement éliminés alors que la concentration des molécules lourdes est considérablement réduite, et 67% à 98% d'une fraction du gasoil (C₁₅ – C₂₂) sont dégradés après 30 jours de traitement [36].

Arrar [3] a montré pour une vitesse d'aération élevée (18,0cm/s), le lit est plus expansé et le taux de biodégradation diminue. Le meilleur taux de biodégradation de gasoil est obtenu pour un état de lit au minimum de fluidisation (13,4cm/s) et est égal à 64 %.

Chekir [70] a trouvé que le taux de biodégradation est très important dans le cas d'un lit préfluidisé. Il atteint une valeur de 85% en l'absence de jet et en présence de jet, il atteint des valeurs de 72% et 69% pour des vitesses de jet respectivement égales à 37 m/s et 42 m/s.

Fotinich et al. [37] ont montré l'augmentation du débit d'air ou de la température augmente considérablement le processus de dégradation biologique du gasoil.

III.3.3. Cinétique de dégradation du gasoil

III.3.3.1. Cinétique d'enlèvement du gasoil

Plusieurs études indiquent que la biodégradation des hydrocarbures est régie par un modèle cinétique du premier ordre [75,76]. *Arrar et al.* [74] et *Sarkar et al.* [68] ont montré que la cinétique de dégradation des hydrocarbures du gasoil peut également suivre une cinétique du deuxième ordre. *Khalladia et al.* [73] ont étudié les deux modèles cinétiques d'enlèvement du gasoil.

Nous supposons la réaction d'enlèvement du gasoil comme étant respectivement du premier et du deuxième ordre. Les vitesses de dégradation du gasoil sont données par les équations 3 et 4 :

$$v = -\frac{d[TPH]}{dt} = k_1 * [TPH] \quad (\text{III.3-a})$$

$$[TPH] = [TPH]_0 * \exp(-k_1 * t) \quad (\text{III.3-b})$$

$$v = -\frac{d[TPH]}{dt} = k_2 * [TPH]^2 \quad (\text{III.4-a})$$

$$\frac{1}{[TPH]} - \frac{1}{[TPH]_0} = k_2 * t \quad (\text{III.4-b})$$

Sachant que :

v : vitesse de la réaction (g/g.j);

[TPH] : concentration résiduelle du gasoil (g/g);

[TPH]₀ : concentration initiale du gasoil (g/g);

k_1 : constante de vitesse d'enlèvement 1^{er} ordre (j⁻¹) ;

k_2 : constante de vitesse d'enlèvement 2^{ème} ordre (g/g.j).

Le tracé des courbes $\ln ([\text{TPH}]_0/[\text{TPH}])$ et $1/[\text{TPH}] - 1/[\text{TPH}]_0$ en fonction du temps pour les différents systèmes biotiques, mettent en évidence des droites de pente respectives k_1 et k_2 . Seuls les 20 premiers jours de traitement ; où la température est constante et comprise entre 20÷23°C ; sont pris en considération. *Gray et al.* [50] ont montré l'augmentation de la température de 21°C à 30°C accélère la cinétique d'enlèvement des hydrocarbures mais le taux d'enlèvement ultime reste inchangé. Cela suggère que c'est le phénomène de désorption qui limite le taux d'enlèvement des hydrocarbures et non l'activité biologique [50].

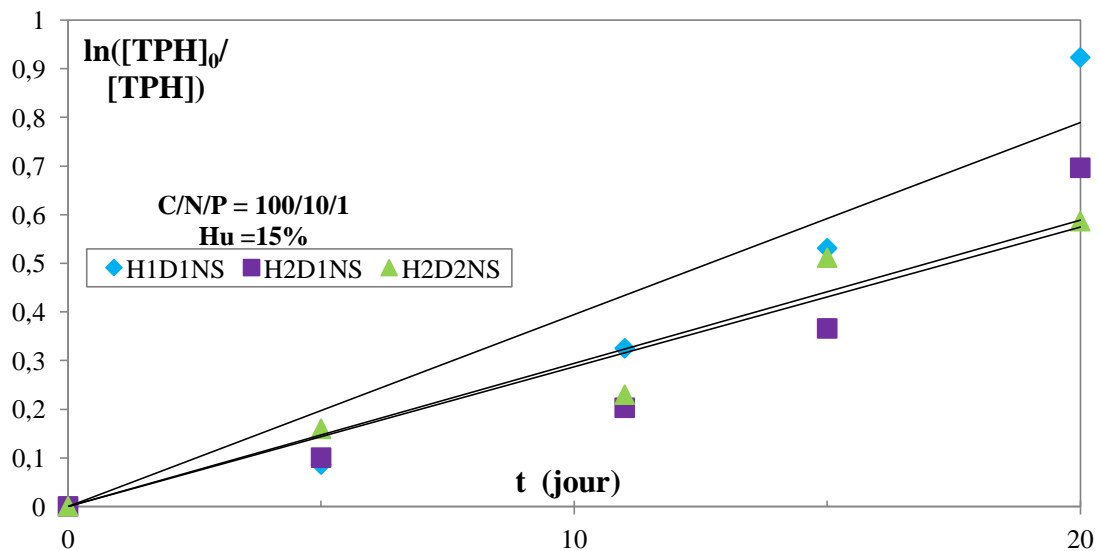


Figure III.7.a : Variation de $\ln ([\text{TPH}]_0/[\text{TPH}])$ en fonction du temps pour les différents systèmes biotiques.

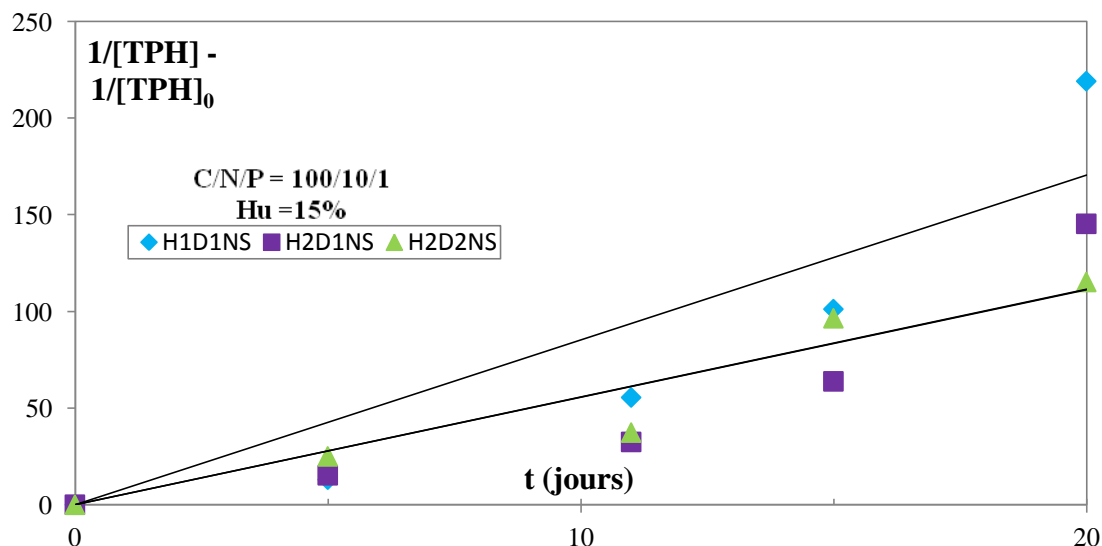


Figure III.7.b : Variation de $1/[TPH] - 1/[TPH]_0$ en fonction du temps pour les différents systèmes biotiques.

Des figures III.7.a et III.7.b, la constante k est donnée par la pente. Les valeurs des constantes de vitesse k_i et des coefficients de régression R^2 sont données dans le tableau III.4.

Tableau III.4 : Constantes cinétiques d'enlèvement du gasoil.

Système	Cinétique du premier ordre		Cinétique du deuxième ordre	
	k_1 (j^{-1})	R^2	k_2 (g/g.j)	R^2
H1D1NS	0,0395	0,87	8,528	0,83
H2D1NS	0,0287	0,88	5,574	0,81
H2D2NS	0,0295	0,94	5,560	0,92

Nous constatons que l'augmentation de débit d'aération n'influe pas sur la cinétique d'enlèvement du gasoil, la valeur de la constante k_1 ne change pratiquement pas pour les deux systèmes H2D1 ($0,0287 j^{-1}$) et H2D2 ($0,0295 j^{-1}$), alors que lorsque la hauteur du sol varie, la cinétique est plus accélérée pour une faible hauteur de sol ; la constante k_1 étant plus importante dans le cas du système H1D1 ($0,0395 j^{-1}$) que pour le système H2D1 ($0,0287 j^{-1}$).

En considérant la cinétique d'ordre 2, nous remarquons à partir de calcul de la constante de vitesse que les résultats sont concluants pour les différents systèmes comme dans le cas de la cinétique d'ordre 1. La variation de débit d'aération n'influe pas sur la cinétique d'enlèvement (H2D1, $5,574 j^{-1}$ et H2D2, $5,560 j^{-1}$), et la constante k_2 est plus importante dans

le système d'hauteur H1 (système H1D1, $8,528j^{-1}$) par rapport au système d'hauteur H2 (système H2D1, $5,574j^{-1}$). Donc, il est préférable d'utiliser la cinétique d'ordre 1.

Il semblerait que l'influence du débit sur la cinétique d'enlèvement est négligeable comparé à celui de la hauteur de sol pour les systèmes étudiés.

III.3.3.2. Cinétique de biodégradation du gasoil

D'après la littérature [72], la dégradation des hydrocarbures totaux par les micro-organismes suit une loi cinétique du premier ordre. *Arrar et al.* [74] et *Sarkar et al.* [68] ont montré également que la cinétique de biodégradation des hydrocarbures du gasoil peut également suivre une cinétique du deuxième ordre.

Afin de déterminer l'ordre de la réaction de biodégradation. Dans une première étape, nous supposons que la biodégradation des hydrocarbures présents dans le sol suit une cinétique du premier ordre où la vitesse de dégradation s'écrit comme suit :

$$[TPH] = [TPH]_{abio} - [TPH]_{bio} = [TPH]_0 * \exp(-k_{1bio} * t) \quad (III.5)$$

$[TPH]_{abio}$: concentration résiduelle du gasoil pour le système abiotique (g/g);

$[TPH]_{bio}$: concentration résiduelle du gasoil pour le système biotique (g/g);

$[TPH]$: concentration résiduelle du gasoil (g/g);

k_{1bio} : la constante de vitesse de biodégradation 1^{er} ordre (j^{-1}).

La représentation de $\ln([TPH]_0/[TPH])$ en fonction du temps pour les différents systèmes (figure III.8) mettent en évidence des droites de pente k , montrant ainsi que les vitesses de biodégradation du gasoil évoluent selon une cinétique d'ordre 1 indépendamment du système.

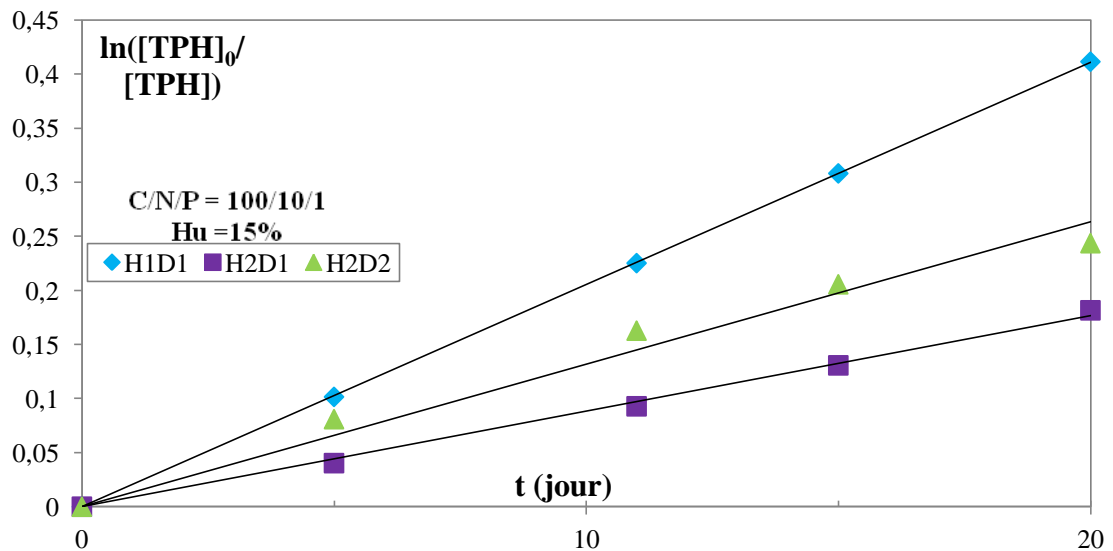


Figure III.8 : Variation de $\ln ([\text{TPH}]_0/[\text{TPH}])$ en fonction du temps pour les différents systèmes.

A partir des pentes des tracés de $\ln ([\text{TPH}]_0/[\text{TPH}])$, les constantes de vitesses de dégradation pour les différents systèmes sont déterminées et consignées dans le tableau III.6.

Tableau III.6 : Constantes de cinétique de biodégradation du gasoil premier ordre.

Système	$k_{1\text{bio}} (\text{j}^{-1})$	R^2
H1D1	0,0205	1
H2D1	0,0088	0,99
H2D2	0,0132	0,97

Nous remarquons que les cinétiques de biodégradation sont nettement plus faibles que celles de dégradation qui font intervenir les phénomènes de biodégradation, de volatilisation et de transport.

Les constantes cinétiques suivent la même évolution que celles de dégradation dans les différents systèmes. Nous constatons que l'augmentation de débit d'aération augmente la valeur de la constante $k_{1\text{bio}}$ de 50% (H2D1 ($k_{1\text{bio}} = 0,0088 \text{ j}^{-1}$) et H2D2 ($k_{1\text{bio}} = 0,0132 \text{ j}^{-1}$)), alors que dans le cas du système H1D1 la cinétique est plus accélérée ; la constante $k_{1\text{bio}}$ est plus importante et est supérieure de 132% comparée à celle du système H2D1 ($0,0088 \text{ j}^{-1}$).

Arrar *et al.* [74] ont montré pour un réacteur fluidisé à jet gaz-solide avec un rapport de C/N/P = 100/10/1 et taux d'humidité 15%, la valeur de la constante k trouvée pour une vitesse d'aération de 13,4cm/s, durant un traitement de 15jours est de $k = 0,221 \text{ j}^{-1}$. Cette différence

peut être attribuée notamment à la différence des textures des sols et des systèmes considérés (hauteur du sol, diamètre de la colonne).

Dans une deuxième étape, nous supposons que la biodégradation des hydrocarbures présents dans le sol suit une cinétique du deuxième ordre où la vitesse de dégradation s'écrit comme suit :

$$\frac{1}{[TPH]} - \frac{1}{[TPH]_0} = \frac{1}{([TPH]_{abio} - [TPH]_{bio})} - \frac{1}{[TPH]_0} = k_{2bio} * t \quad (III.6)$$

k_{2bio} : la constante de vitesse de biodégradation 2^{ème} ordre (j^{-1}).

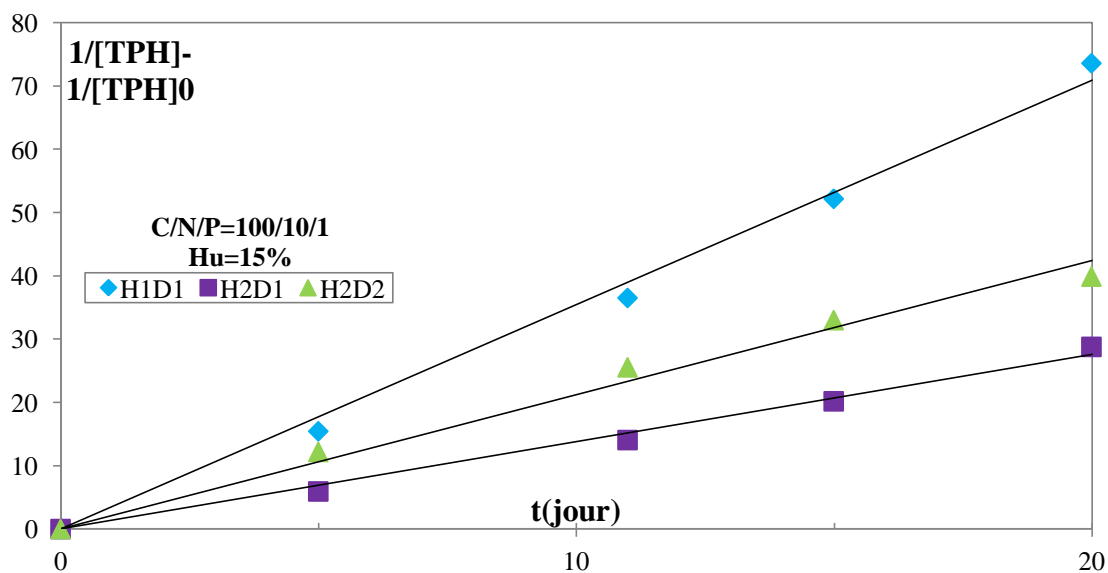


Figure III.9 : Variation de $1/[TPH] - 1/[TPH]_0$ en fonction du temps pour les différents systèmes.

A partir des pentes des tracés de $1/[TPH] - 1/[TPH]_0$, les constantes de vitesses de dégradation pour les différents systèmes sont déterminées et consignées dans le tableau III.7.

Tableau III.7 : Constantes de cinétique de biodégradation du gasoil deuxième ordre.

Système	k_{2bio} (j^{-1})	R^2
H1D1	3,545	0,99
H2D1	1,378	0,99
H2D2	2,120	0,98

Les coefficients de corrélation (R^2) indiquent que le modèle cinétique de biodégradation de deuxième ordre est également adapté pour décrire la biodégradation du gasoil.

On observe dans ce cas (tableau III.7), l'augmentation de la hauteur de sol ralentit la cinétique de biodégradation $k_{2\text{bio}}$, tandis que l'augmentation débit d'air accélère le processus de biodégradation.

La comparaison des cinétiques de biodégradation du gasoil k_{bio} obtenues avec celles données dans la littérature (tableau III.8) montre d'une part, que les cinétiques dépendent du système considéré, du degré de pollution et des caractéristiques du sol. Toutefois, un taux d'oxygénation important accélère le processus d'oxydation du gasoil comme il a été observé dans le cas des cinétiques de deuxième ordre et comme donné dans la littérature [3].

Tableau III.8 : Comparaison des taux et constantes cinétiques de biodégradation du gasoil.

Système	Temps (jours)	[TPH] (mg/g)	k_{bio} (j^{-1})	Efficacité (%)	Référence
Réacteur aérobie gaz-solide ; Humidité : 70% ; Aération : 100mL/min ; Sol : limoneux-sableux ;	30	10000	0,037 ^a	65	[72]
Réacteur fluidisé à jet gaz-solide / 16kg de sol ; Sol : sableux ; Humidité : 15% ; C/N/P : 100/10/1 ; Q_{air} : 13L/s ;	15	40000	0,221 ^a	98	[74]
Réacteur aérobie gaz-solide (1,4L) /500g de sol ; Humidité : 60% ; Sol argileux + biosolides : 1 :0,05 (C/N/P : 27/4/1) ;	56	3350	$1,3 \cdot 10^{-5}$ ^b	96	[68]

^a : 1^{er} ordre ;

^b : 2^{ème} ordre.

III.3.3.2.1. Influence de la biomasse sur la cinétique de biodégradation du gazoil

L'importante multiplication cellulaire que traduit l'évolution de la biomasse et par conséquent de la matière sèche nous amène à considérer l'influence de celle-ci traduit par l'équation suivante III.8.

Pour cela, on se réfère au modèle cinétique d'ordre 1, d'après l'équation (III.3-b) en supposant que la constante cinétique k est inversement proportionnelle à la matière sèche par gramme de sol, on aura :

$$k_{bio} = k/m \quad (III.7)$$

$$[TPH] = [TPH]_0 * \exp \left(-\frac{k}{m_t} * t \right) \quad (III.8)$$

Avec :

m_t : La concentration massique microbienne à l'instant t (g/g de sol).

k : Constante de la cinétique en tenant compte de la masse microbienne (j^{-1}).

La figure III.10 représente le tracé de $\ln ([TPH]_0/[TPH])$ en fonction du (t/m) :

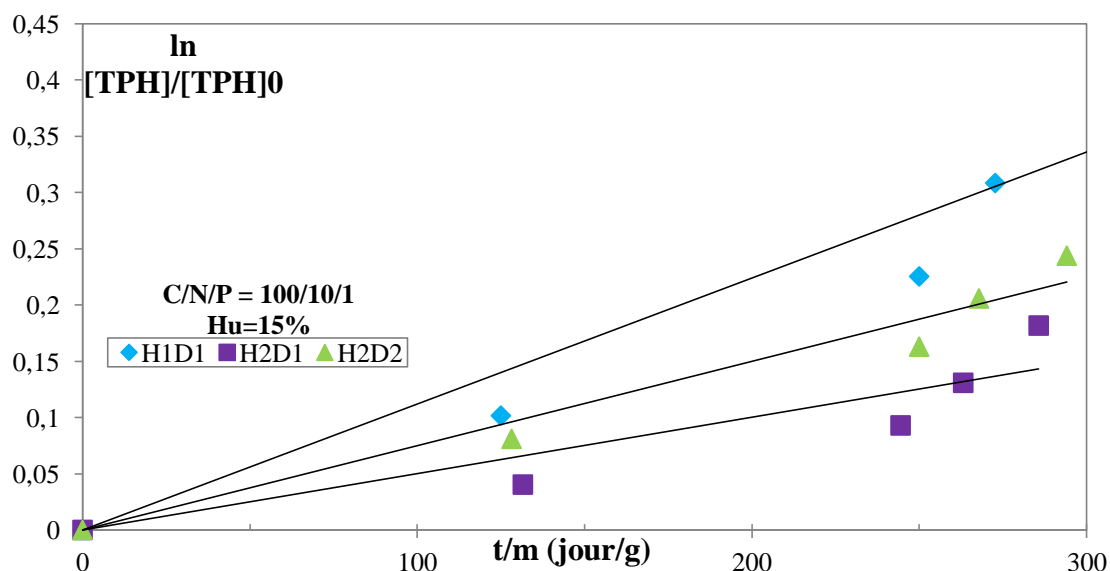


Figure III.10 : Variation de $\ln ([TPH] / [TPH]_0)$ en fonction de (t/m) pour les différents systèmes.

Tableau III.9 : Constantes de cinétique de l'influence de la biomasse k pour les différents systèmes.

Système	k (j^{-1})	R^2
H1D1	0,0011	0,92
H2D1	0,0005	0,85
H2D2	0,0007	0,96

Le suivi de la cinétique en tenant compte de la matière sèche des micro-organismes montre que la vitesse de dégradation est moins importante. Les nouvelles constantes de vitesse sont nettement inférieures en considérant la croissance microbienne de l'ordre de 16,5 à 18 fois pour les différents systèmes comparés à celles trouvées par l'équation (III.3-b) et en considérant uniquement la première phase de biodégradation du gasoil où la vitesse de la réaction est importante.

III.3.3.2.2. Modélisation des courbes de biodégradation: Influence de la fraction labile du gasoil

Dans le cas du gasoil ; mélange complexe d'hydrocarbures, le modèle cinétique doit tenir compte des fractions facilement biodégradables et récalcitrante, chacune se dégradant selon une cinétique d'ordre 1 (équation III.9-a). Ce modèle à deux exponentielles tient compte des deux phases rapide et lente qu'illustrent toutes les courbes de biodégradation.

$$[TPH] = [TPH]_0 * \alpha * \exp(-k_{11} * t) + (1 - \alpha) * \exp(-k_{22} * t) * [TPH]_0$$

(III.9-a)

Où:

k_{11} : constante de vitesse de biodégradation de la fraction facilement dégradable ;

k_{22} : constante de vitesse de biodégradation de la fraction réfractaire;

α : fraction des hydrocarbures facilement dégradable.

En supposant les conditions extrêmes, la biodégradation du gasoil peut donc être modélisée sous la forme simplifiée (équation III.9-b)

$$[TPH] = \alpha * [TPH]_0 * \exp(-k' * t) + (1 - \alpha) * [TPH]_0$$

(III.9-b)

Le taux de biodégradation du gasoil s'exprimerait ainsi:

$$1 - \left(\frac{[TPH]}{[TPH]_0} \right) = \alpha * (1 - \exp(-k' * t)) \quad (\text{III.9-c})$$

A partir des résultats obtenus, les constantes k' et α sont déterminés en utilisant l'approximation mathématique selon *Thomas* :

$$1 - \exp(-k' * t) \cong k' * t * [1 + \left(k' * \frac{t}{6} \right)]^{-3} \quad (\text{III.9-d})$$

La résolution de l'équation (III.9-d) par la progression non linéaire ou par les approximations mathématiques donne les résultats suivants :

Pour les systèmes H1D1 et H2D2, le modèle à deux exponentielles qui tient compte des fractions facilement biodégradable et récalcitrante décrit parfaitement les processus de biodégradation avec des coefficients de régression élevés (R^2 (H1D1) = 0,998 et R^2 (H2D2) = 0,983) sur une durée de traitement de 30jours. La détermination des constantes de vitesse de biodégradation k_{H1D1} et k_{H2D2} et la fraction des hydrocarbures facilement biodégradables sont respectivement :

$$k_{H1D1} = 0,02 \text{ (j}^{-1}\text{)} \text{ et } \alpha_{H1D1} = 1.$$

$$k_{H2D2} = 0,066 \text{ (j}^{-1}\text{)} \text{ et } \alpha_{H2D2} = 0,28.$$

Dans le cas du système H2D1, le modèle cité ci-dessus n'ai pas adapté pour décrire les résultats de biodégradation ($R^2 = 0,2183$). Le processus pourrait être représenté par le modèle à plusieurs cinétiques du 1^{er} ordre qu'il s'agira d'établir par régression non linéaire. On remarque toutefois que le même modèle peut être appliqué aux 20 premiers jours pour donner les résultats suivants :

$$R^2 = 0,8894.$$

$$k_{H2D1} = 0,255 \text{ (j}^{-1}\text{)} \text{ et } \alpha_{H2D1} = 0,12.$$

Dans le premier système (H1D1), tous les hydrocarbures résiduels du gasoil sont facilement biodégradables ce qui met en évidence l'enlèvement des fractions facilement biodégradables et récalcitrante par les processus abiotiques. Lorsque la hauteur du sol augmente, l'enlèvement des fractions facilement biodégradables et récalcitrante est moindre pour les systèmes H2D1 et H2D2. Ces résultats ne pourraient être corroborés que à l'aide de l'analyse par CPG et HPLC.

Conclusion

générale

L'objectif de ce travail était d'étudier l'influence de l'aération sur le traitement biologique d'un sol pollué par du gasoil à 1% dans des bioréacteurs gaz-solide sous des conditions aérobies. Dans ce but, nous avons utilisé six réacteurs (stérile et non stérile) simultanément en faisant varier la hauteur du sol et le débit d'aération pour un traitement de 30 jours.

Les échantillons des sols pollués biotiques et abiotiques sont humidifiés à 15% et amendés en nutriments selon le rapport C/N/P = 100/10/1. Nous avons déterminé les différents paramètres physico-chimiques et biologiques du sol avant la contamination.

Le suivi de la biomasse par dénombrement a donné une croissance microbienne plus importante dans le cas du système H2D1NS ($3,40 \times 10^9$ UFC/g) pour $Q_{\text{air}}=16,89 \text{ cm}^3/\text{s}$ et $\left(\frac{\text{Hauteur}}{\text{Diamètre}}\right)_{\text{colonne du sol}} = \left(\frac{8 \text{ cm}}{9,5 \text{ cm}}\right) = 0,84$. Il ressort des résultats : pour un même débit d'aération ($Q_{\text{air}}=16,89 \text{ cm}^3/\text{s}$), la croissance microbienne est plus importante lorsque la hauteur de sol est élevée ($H=H_2=8 \text{ cm}$) et pour une même hauteur de sol ($H=H_2=8 \text{ cm}$) c'est le débit d'aération le plus faible ($Q_{\text{air}}=16,89 \text{ cm}^3/\text{s}$) qui génère l'accroissement optimal de la biomasse.

La corrélation trouvée entre le nombre des micro-organismes et leurs matière sèche met en évidence que l'évolution de la biomasse peut être suivi à partir de la détermination de la matière sèche que celle de dénombrement qui nécessite 48h d'incubation.

Le suivi des hydrocarbures totaux (TPH) a donné :

- Le taux d'élimination du gasoil est important tandis que le taux de biodégradation du gasoil est relativement faible (< 50%) du fait de l'importance des processus abiotiques (évaporation et transport) et éventuellement des phénomènes d'adsorption des hydrocarbures par le sol.
- Le taux de biodégradation est élevé pour le système H1D1 (42,6%) pour un débit d'aération $Q_{\text{air}}=16,89 \text{ cm}^3/\text{s}$ et $\left(\frac{\text{Hauteur}}{\text{Diamètre}}\right)_{\text{colonne du sol}} = 0,42$.
- Le taux d'enlèvement est plus important dans le cas du système H2D1 (97,76%) lorsque $Q_{\text{air}}=16,89 \text{ cm}^3/\text{s}$. L'augmentation du débit d'aération influe négativement sur le taux d'enlèvement des hydrocarbures du sol.
- Les cinétiques de biodégradation des hydrocarbures du gasoil peuvent être parfaitement décrites par les modèles du 1^{er} ordre et 2^{ème} ordre dans le cas d'un sol limoneux-sableux.

Les résultats montrent que le traitement d'un sol pollué par du gasoil dans un bioréacteur gaz-solide sous des conditions aérobies dans le cas d'un sol limoneux-sableux est potentiellement applicable.

A partir de là, il serait intéressant d'approfondir l'étude de l'influence de l'aération sur la bioremédiation du sol en utilisant un autre système H1D2 c-à-d avec un débit d'aération $Q_{\text{air}}=33,78\text{cm}^3/\text{s}$ et $\left(\frac{\text{Hauteur}}{\text{Diamètre}}\right)_{\text{colonne du sol}}=0,42$.

***Références
bibliographiques***

- [1]: P. Duchaufour, Introduction a la science du sol, Paris, Eds Dunod, (2001) P331.
- [2]: C. Bocard, Marées noires et sols pollués par des hydrocarbures, Paris, Eds Technip, (2006) P297.
- [3]: J. Arrar, Etude d'un réacteur fluidisé à jet central ascendant gaz-solide. Application au traitement d'un sol pollué par du gasoil, Thèse de doctorat, Ecole nationale polytechnique, Alger, (2007).
- [4]: M. R. Mehrasbi, B. Haghghi, M. Shariat, S. Naseri et K. Naddafi, Biodegradation of petroleum hydrocarbons in soil, Iranian Journal Public Health, Vol. 32 N°. 3 (2003) P28-32.
- [5]: J. P. Vandecasteele, Microbiologie pétrolière, volume 2, Paris, Eds Technip, (2005) P795.
- [6]: URL: www.br.com.br/portalbr. Portal Petrobrás.
- [7]: F. Coulon, E. Pelletier, L. Gourhant et D. Delille, Effects of nutrient and temperature on degradation of petroleum hydrocarbons in contaminated sub-Antarctic soil, Chemosphere, 58 (2005) P439–1448.
- [8]: D. Feng, L. Lorenzen, C. Aldrich et P. W. Mari, Ex situ diesel contaminated soil washing with mechanical methods, Minerals Engineering, 14 (2001) P1093–1100.
- [9]: R. Marchal, S. Penet, F. Solano-Serena et J.P. Vandecasteele, Gasoline and diesel oil biodegradation, Oil & gas science and technology , Vol. 58 N°.4 (2003) P441-448.
- [10]: CONCAWE : rapport 6/05 et 01/54. IUCLID Data set, (2000). <http://www.total.bf/os/content/NT0003580A.pdf>
- [11]: D. Gasquet, Le sol : un capital vivant à entretenir, Eds Galileo, (2005).
- [12]: J. M. Gobat, M. Aragno et W. Matthey, Le sol vivant, Lausanne, Eds Presses polytechniques et universitaires romandes, (2010) P568.
- [13]: D. Soltner, Les bases de la production végétale, Tome 1 : le sol. Ste-Gemmes-sur-Loire, Eds Coll.Sciences et Techniques agricole, (1996).
- [14]: USDA, Soil taxonomy: a basic system of soil classification for making and interpreting soil surveys. Washington D.C, Soil Conservation Service, (1999).
- [15]: K. R. Hinga, Degradation rates of low molecular weight PAH correlate with sedimenthydrocarbon using non ionic surfactants in soil slurry, Applied Geochemistry, 16 (2004) P1419-1428.

- [16]: F. Caravaca et A. Roldá, Assessing changes physical and biological properties in a soil contaminated by oil sludges under semiarid mediterranean conditions, *Geoderma*, Vol.117 (2003) P 53-61.
- [17]: M. Soltani, Distribution lipidique et voies métaboliques chez quatre bactéries Gram-négatives hydrocarbonoclastes. Variation en fonction de la source de carbone, Thèse de doctorat, Université Pierre et Marie Curie, Paris, (2004).
- [18]: G. Li, W. Huang, D. N. Lerner et X. Zhang, Enrichment of degrading microbes and bioremediation of petrochemical contaminants in polluted soil, *Water Research*, Vol.34 N° 15 (2000) P3845-3853.
- [19]: T. A. T. Abul-Kassim et B. R. T. Simoneit, Pollutant-solid phase interaction, Mechanisms, chemistry and modeling, Germany, Edt spring, (2001).
- [20]: I. Franco, M. Contin, G. Bragato et M. De Nobili, Microbiological resilience of soils contaminated with crude oil, *Geoderma*, (2003).
- [21]: R. M. Allen-King, R. W. Gillham, J. F. Barker et E. A. Sudicky, Fate of dissolved toluene during steady infiltration through unsaturated soil II, Biotransformation under Nutrient-limited conditions, *Journal Environment Quality*, Vol 25 (1996) P287- 295.
- [22]: B. P. Chaplin, G. N. Delin, R. J. Baker et M. A. Lahvis, Long-term evolution of biodegradation and volatilization Rates in crude oil contaminated aquifer, *Bioremediation Journal*, Vol. 6 N° 3 (2002) P237- 255.
- [23]: J. Costes et V. Druelle, Les hydrocarbures aromatiques polycycliques dans l'environnement : La réhabilitation des anciens sites industriels, *Revue de l'Institut Français du Pétrole*, Vol. 52 N° 4 (1997) P425-440.
- [24]: M. J. Jourdain et A. M. Charissou, Etat des connaissances sur le devenir de polluants organiques dans les sols lors de la biodégradation naturelle et après biotraitement : Identification des composés métabolites et des cinétiques, *Record N°05-0513/1A*, (2007) P148.
- [25]: l'US-EPA, Directive 9200.4-17P, (1999).
- [26]: W. F. M. Röling, M. G. Milner, D. M. Jones, K. Lee, F. Daniel, R. J. P. Swannell et I. M. Head, Robust hydrocarbon degradation and dynamics of bacterial communities during nutrient-enhanced oil spill bioremediation, *Applied and Environmental Microbiology*, 68 (2002) P5537-5548.

- [27]: M. M. Yakimov, G. Gentile, V. Bruni, S. Cappello, G. D'Auria, P. N. Golyshin et L. Giuliano, Crude oil-induced structural shift of coastal bacterial communities of rod bay (Terra Nova Bay, Ross Sea, Antarctica) and characterization of cultured cold-adapted hydrocarbonoclastic bacteria, *FEMS Microbiology Ecology*, 49 (2004) P419-432.
- [28]: S. Bordenave, M. S. Goñi-Urriza, P. Caumette et R. Duran, Effects of heavy fuel oil on the bacterial community structure of a pristine microbial mat, *Applied and Environmental Microbiology*, 73 (2007) P6089-6097.
- [29]: J. P. Vandecasteele, F. Fayolle, R. Marchal, S. Chauvaux, P. Béguin et F. Monot, Biodégradation des produits pétroliers. Le cas des essences et des éthers carburants, *Bulletin de la Société Française de Microbiologie*, Vol. 16 N° 3 (2001) P184-189.
- [30]: F. Collin et coordinateurs, Pollution localisée des sols et sous-sols par les hydrocarbures et par les solvants chlorés, Paris, Eds Tec et Doc, (2000).
- [31]: J. Milcic-Terzic, Y. Lopez-Vidal, M. M. Vrvic, S. Saval, Biodegradation potential assessment of microbial consortia isolated from a diesel contaminated soil, *Water Science and Technology*, 42 (5-6) (2000) P403-406.
- [32]: P. Lecompte, Les Sites pollués : Traitement des sols & des eaux souterraines, Eds Lavoisier Tec Et Doc, (1998).
- [33]: D. Ballerini, Traitements biologiques des sols. Technique de l'ingénieur, G 2 620, (1999).
- [34]: R. Boopathy, Use of anaerobic soil slurry reactors for the removal of petroleum hydrocarbons in soil, *International Biodeterioration & Biodegradation*, 52 (3), (2003), P161-166.
- [35]: D. Brinkmann, J. Rohrs et K. Schugerl, Bioremediation of diesel contaminated soil in a rotating bioreactor, Influence of oxygen saturation, *Chemical Engineering Technology*, 21 (2) (1998) P168-172.
- [36]: M. Ghazali, R. N. Z. A. Rahman, A .B. Salle et M. Basri, Biodegradation of hydrocarbon in soil by microbial consortium, *International Biodeterioration & Biodegradation*, 54 (2004) P61-67.
- [37]: A. Fotinich, V. K. Dhir et S. Lingineni, Remediation of simulated soils contaminated with Diesel, *Journal of Environmental Engineering*, (1999) P36-46.

- [38]: K. A. T. Berry et D. L. Burton, Natural attenuation of diesel fuel in heavy clay soil, *Canadian Journal of Soil Science*, Vol.77 (1997) P469-477.
- [39]: J. Sabate, M. Vinas et A. M. Solanas, Laboratory-scale bioremediation experiments on hydrocarbon-contaminated soils, *International Biodeterioration & Biodegradation*, 54 (2004) P19-25.
- [40]: M. A. Zahed, H. A. Aziz, M. H. Isa et L. Mohajeri, Effect of initial oil concentration and dispersant on crude oil biodegradation in contaminated seawater, *Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology*, 84 (2010) P438–442.
- [41]: I. Gandolfi, M. Siculo, A. Franzetti, E. Fontanarosa, A. Santagostino et G. Bestetti, Influence of compost amendment on microbial community and ecotoxicity of hydrocarbon-contaminated soils, *Bioresource Technology*, 101 (2010) P568–575.
- [42]: H. Saeki, M. Sasaki, K. Komatsu, A. Miura et H. Matsuda, Oil spill remediation by using the remediation agent JE1058BS that contains a biosurfactant produced by *Gordonia* sp. strain JE-1058, *Bioresource Technology*, 100 (2009) P572–577.
- [43]: A. I. Okoh, Biodegradation alternative in the cleanup of petroleum hydrocarbon pollutants, *Biotechnology and Molecular Biology Review*, Vol. 1 (2) (2006) P38-50.
- [44]: S. Gabet, Remobilisation d'hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) présents dans les sols contaminés à l'aide d'un tensioactif d'origine biologique, Thèse de doctorat, université de Limoges (2004).
- [45]: J. W. Davis et S. Madsen, Factors affecting the biodegradation of toluene in soil, *Chemosphere*, Vol.33 N°1 (1996) P170-130.
- [46]: X. Zhu, A. D. Venosa et M. T. Suidan, Literature review on the use of commercial bioremediation agents for cleanup of oil-contaminated estuarine environments, EPA/600/R-04/075 (2004).
- [47]: A. Gibb, A. Chu, R. Chik Kwong Wong et R. H. Goodman, Bioremediation kinetics of crude oil at 5°C, *Journal of Environmental Engineering*, ASCE 127, (2001) P818-823.
- [48]: R. Scriban et coordonnateurs, *Biotechnologie*, 5ème édition, Paris, Eds Technique et documentation, (1999).

- [49]: F. Coulon et D. Delille, Effects of biostimulation on growth of indigenous bacteria in sub-antarctic soil contaminated with oil hydrocarbons, *Oil & Gas Science and Technology*, Vol.58 N°4 (2003) P469-479.
- [50]: M. R. Gray, D. K. Banerjee, M. J. Dudas et M. A. Pickard, Protocols to enhance biodegradation of hydrocarbon contaminants in soil, *Bioremediation Journal*, Vol.4 N°4 (2000) P249-257.
- [51]: S. C. Choi, K. K. Kwon, J. H. Sohn et S. J. Kim, Evaluation of fertilizer additions to stimulate oil biodegradation in sand seashore mesocosms, *Journal of Microbiology and Biotechnology*, 12 (2002) P431-436.
- [52]: S. Kim, D. H. Choi, D. S. Sim et Y. Oh, Evaluation of bioremediation effectiveness on crude oil-contaminated sand, *Chemosphere*, 59 (2005) P845- 852.
- [53]: I. Van Kemenade, W. A. Anderson, J. M. Scharer et M. Moo-yong, Chemical pre-oxidation for enhancing bioremediation of contaminated soils, *Institution of chemical engineers*, Vol 74 Part B (1996) P125-131.
- [54]: J. Møller, H. Gaarn, T. Steckel, E. B. Wedebye et P. Westermann, Inhibitory effects on degradation of diesel oil in soil-microcosms by a commercial bioaugmentation product, *Bulletin Environmental Contaminant Toxicology*, 54 (1995) P913-918.
- [55]: B. L. Hoyle, K. M. Scow, G. E. Fogg et J. L. Darby, Effect of carbon: nitrogen ratio on kinetics of phenol biodegradation by *Acinetobacter johnsonii* in saturated sand, *Biodegradation*, Vol.6 N°4 (1995) P283-293.
- [56]: C. W. Greer, N. Fortin, R. Roy, L. G. Whyte et K. Lee, Indigenous sediment microbial activity in response to nutrient enrichment and plant growth following a controlled oil on a freshwater wetland, *Bioremediation Journal*, Vol.7 N°1 (2003) P69-80.
- [57]: S. Ledakowicz et M. Solecka, Impact of advanced oxidation processes on the biodegradation kinetics of industrial wastewater, *Water science and technology*, Vol.41 N°12 (2000) P157-164.
- [58]: M. Vogel Timothy, *Bioremédiation des sols*, Techniques de l'ingénieur, G3 (2001).
- [59]: P. Delage, B. Schrefler, *Géomécanique environnementale sols pollués et déchets*, Paris, Eds Lavoisier, (2005) P137-141.

- [60]: C. D. Shackelford, C. H. Benson, T. Katsumi, T. B. Edil et L. Lin, Evaluating the hydraulic conductivity of GCLs permeated with non-standard liquids, *Geotextiles and Geomembranes*, Vol.18 N°.2-4 (2000) P133-161.
- [61]: M. Vidali, *Bioremediation, Pure and Applied Chemistry*, Vol.73 N°.7 (2001) P1163–1172.
- [62]: J. Costes et V. Druelle, Les hydrocarbures aromatiques polycycliques dans l'environnement : La réhabilitation des anciens sites industriels, *Revue de l'Institut Français du Pétrole*, Vol.52 N°.4 (1997) P425-440.
- [63]: M. Barooah et H. P. Borthakur, Biodegradation of hydrocarbon in soil of upper Assam, *Journal of the Indian Society of Soil Science*, Vol.47 N°.1 (1999) P62-67.
- [64]: R. Samson, Les technologie es situ : biorestauration des sols contaminés, Centre quebecois de valorisation de la biomasse (CQVB), (1997).
- [65]: G. Nano, A. Borroni et R. Rota, Combined slurry and solid-phase bioremediation of diesel contaminated soils, *Journal of Hazardous Materials*, Vol.B 100 (2003) P79-94.
- [66]: Battelle et NFESC, *Biopile operations and maintenance manual*, Technical Memorandum TM-2190-ENV, (1996) P 65.
- [67]: Centre d'expertise en analyse environnementale du Québec, Détermination de la demande chimique en oxygène dans les effluents : méthode de reflux en système fermé suivi d'un dosage par colorimétrie avec le bichromate de potassium, MA. 315 – DCO 1.0, Rév. 4, Ministère du Développement durable, de l'Environnement et des Parcs du Québec, (2006) P12.
- [68]: D. Sarkar, M. Ferguson, R. Data et S. Birnbaum, Bioremediation of petroleum hydrocarbons in contaminated soils: Comparison of biosolids addition, carbon supplementation, and monitored natural attenuation, *Environmental Pollution*, Vol.136 (2005) P187-195.
- [69]: S. Mukherji, S. Jagadevan, G. Mohapatra et A. Vijay, Biodegradation of diesel oil by an Arabian sea sediment culture isolated from the vicinity of an oil field, *Bioresource Technology*, 95 (2004) P281-286.
- [70]: N. Chekir, *Bioremédiation d'un sol pollue par les hydrocarbures (gasoil) dans un bioréacteur fluidise a jet*, Thèse de magister, Ecole nationale polytechnique, Alger, (2005).

- [71]: S. H. Ferguson, P. D. Franzmann, A. T. Revilld, I. Snape et J. L. Rayner, The effects of nitrogen and water on mineralisation of hydrocarbons in diesel-contaminated terrestrial Antarctic soils, *Cold Regions Science and Technology*, 37 (2003) P197-212.
- [72]: W. Namkoong, E.Y. Hwang, J. S. Park et J. Y. Choi, Bioremediation of diesel-contaminated soil with composting, *Environmental pollution*, N°.119, (2002) P23-31.
- [73]: R. Khalladia, O. Benhabilesa, F. Bentahara et N. M. Mostefab, Surfactant remediation of diesel fuel polluted soil, *Journal of Hazardous Materials*, 164 (2009) P1179–1184.
- [74]: J. Arrar, N. Chekira et F. Bentahar, Treatment of diesel fuel contaminated soil in jet–fluidized bed, *Biochemical Engineering Journal*, Vol. 37 N°.2 (2007) P131-138.
- [75]: M. A. Mills, J. S. Bonner, T. J. McDonald, A. C. Page et R. L. Autenrieth, Intrinsic bioremediation of a petroleum-impacted wetland, *Marine Pollution Bulletin*, Vol.46 (2003) P887-899.
- [76]: W. Cong-Ying, W. Fang, W. Tao, Y. Xing-Lun, B. Yong-Rong, F. O. Kengara, L. Zeng-Bo et J. Xin, Effects of autoclaving and mercuric chloride sterilization on pahs dissipation in a two-liquid-phase soil slurry, *Pedosphere*, Vol.21 N°.1 (2011) P56–64.
- [77]: R. L. Rhykerd, B. Crews, K. J. M. Innes et R. W. Weaver, Impact of bulking agents, forced aeration and tillage on remediation of oil-contaminated soil, *Bioresource Technology*, Vol.67 N°.3 (1999) P 279-285.

ANNEXE

ANNEXE 1

DISTRIBUTION GRANULOMETRIQUE DU SOLIDE

La répartition selon la taille est obtenue par l'analyse granulométrique par la méthode du tamisage, c'est la méthode la plus ancienne et encore très largement utilisée car la plus économique. L'utilité du tamisage est d'autant plus grande qu'il permet de séparer les particules en catégories d'après seulement leur grosseur, sans tenir compte de leurs autres propriétés à savoir densité, forme, propriétés de surface, etc.

L'opération du tamisage consiste à placer un échantillon représentatif de particules solides dans un appareil de tamisage comportant plusieurs tamis d'ouvertures déterminées. Les particules dont les dimensions sont inférieures à celles des ouvertures traversent le tamis lorsqu'il est mis en vibration, alors que les plus grosses particules sont retenues. A la fin de l'opération, la masse du solide recueillie sur chacun des tamis est pesée, l'annulation de l'essai est recommandée lorsque les pertes, en cours du tamisage dépassent 0,5% de la charge initiale.

1.1. Définition de quelques diamètres moyens

Le tamisage permet de caractériser l'échantillon par l'un des diamètres suivants :

➤ Diamètre arithmétique :
$$d_A = \frac{\sum_i m_i d_i}{\sum_i m_i} \quad (1.1)$$

➤ Diamètre harmonique :
$$d_H = \frac{\sum_i m_i}{m_i} \quad (1.2)$$

Avec :

m_i : la masse du solide recueilli dans le tamis i (g) ;

d_i : le diamètre moyen des deux tamis consécutifs de diamètre d_{T_i} et $d_{T_{(i-1)}}$ (μm).

Tel que :
$$d_i = \frac{d_{T(i-1)} + d_{T(i)}}{2} \quad (1.3)$$

1.2. Résultats expérimentaux

En rapport avec les dimensions des particules de solide probablement passées au tamis de diamètre 800 μm , les diamètres d'ouvertures des tamis d_{Ti} ont été choisis selon la norme DIN ISO 3310-1.

1.2.1. Le sol1

Tableau 1.1 : Résultats de la distribution granulométrique des particules du sol1.

N° du tamis	d_{Ti} (μm)	d_i (μm)	m_i (g)	% masse retenue	% massique cumulé en haut	% massique cumulé en bas
1	800	-	-	-	-	-
2	630	715	7,15	7,01	7,01	100
3	500	565	12,48	12,25	19,26	92,98
4	315	407,50	38,08	37,38	56,64	80,73
5	200	257,50	31,40	30,82	87,46	43,35
6	160	180	4,32	4,24	91,70	12,53
7	100	130	4,31	4,23	95,94	8,29
8	80	90	1,37	1,35	97,29	4,06
9	50	65	1,37	1,34	98,64	2,71
10	0	25	1,38	1,36	100	1,36

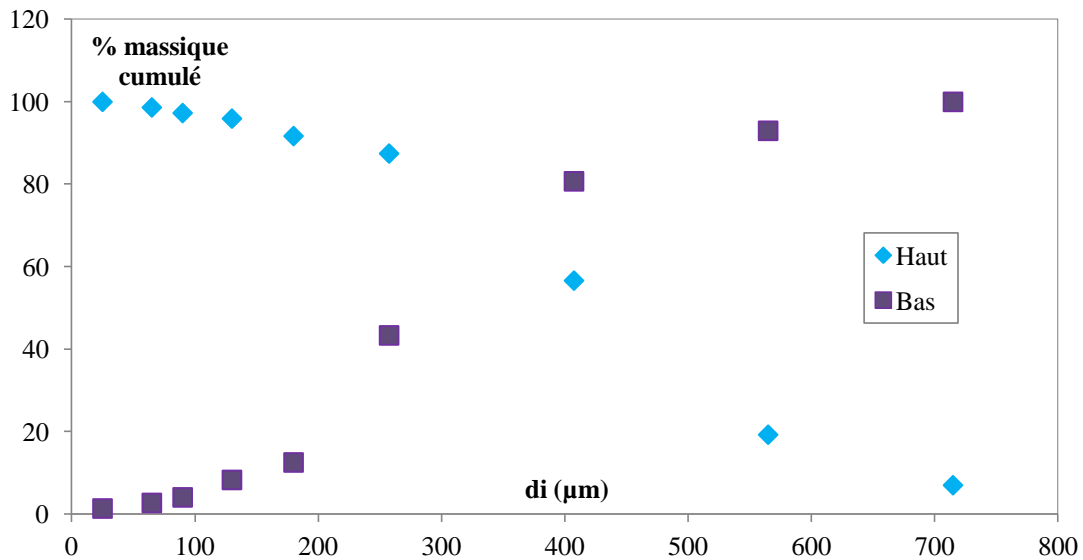


Figure 1.1 : La distribution granulométrique des particules du sol1.

A partir de la figure 1.1, le diamètre des particules du sol1 est : $d_p = 355\mu\text{m}$.

1.2.2. Le sol2

Tableau 1.2 : Résultats de la distribution granulométrique des particules du sol2.

N° du tamis	d_{Ti} (µm)	d_i (µm)	m_i (g)	% masse retenue	% massique cumulé en haut	% massique cumulé en bas
1	800	-	-	-	-	-
2	630	715	9,12	8,41	8,41	100
3	500	565	12,52	11,55	19,97	91,58
4	315	407,50	31,20	28,79	48,77	80,02
5	200	257,50	33,24	30,68	79,45	51,23
6	160	180	7,34	6,77	86,22	20,54
7	100	130	6,26	5,77	92,01	13,77
8	80	90	2,45	2,26	94,26	8,00
9	50	65	3,36	3,10	97,37	5,73
10	0	25	2,85	2,63	100	2,63

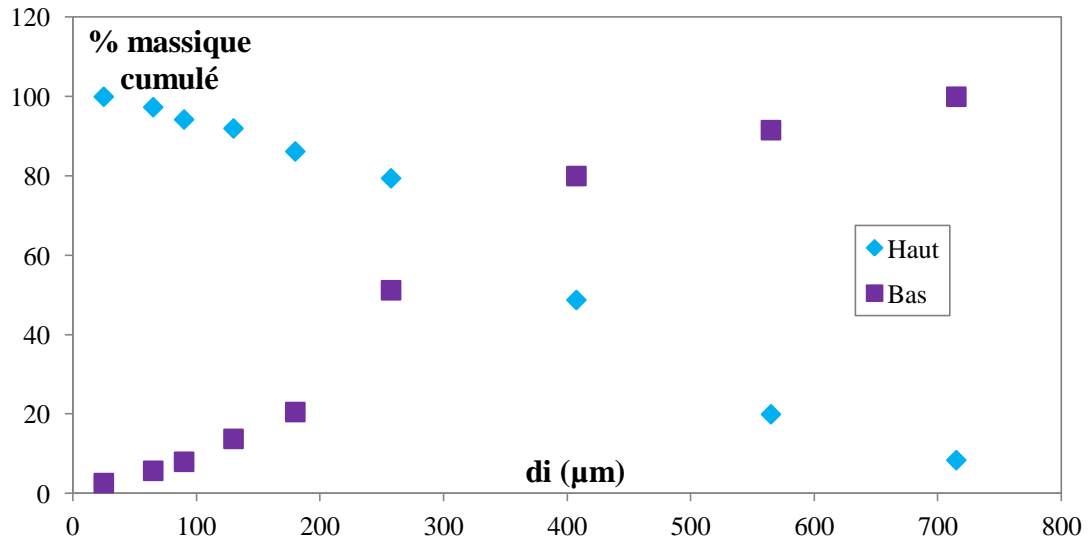


Figure 1.2 : La distribution granulométrique des particules du sol2.

A partir de la figure 1.2, le diamètre des particules du sol2 est : $d_p = 330\mu\text{m}$.

1.2.3. Le sol mélange

Tableau 1.3 : Résultats de la distribution granulométrique des particules du sol mélange.

N° du tamis	d_{Ti} (μm)	d_i (μm)	m_i (g)	% masse retenue	% massique cumulé en haut	% massique cumulé en bas
1	800	-	-	-	-	-
2	630	715	23,80	7,96	7,96	99,99
3	500	565	37,93	12,68	20,64	92,03
4	315	407,50	99,61	33,31	53,96	79,35
5	200	257,50	91,55	30,62	84,58	46,03
6	160	180	14,48	4,84	89,42	15,41
7	100	130	14,20	4,75	94,17	10,47
8	80	90	5,42	1,81	95,98	5,82
9	50	65	6,49	2,17	98,15	4,01
10	0	25	5,49	1,83	99,99	1,83

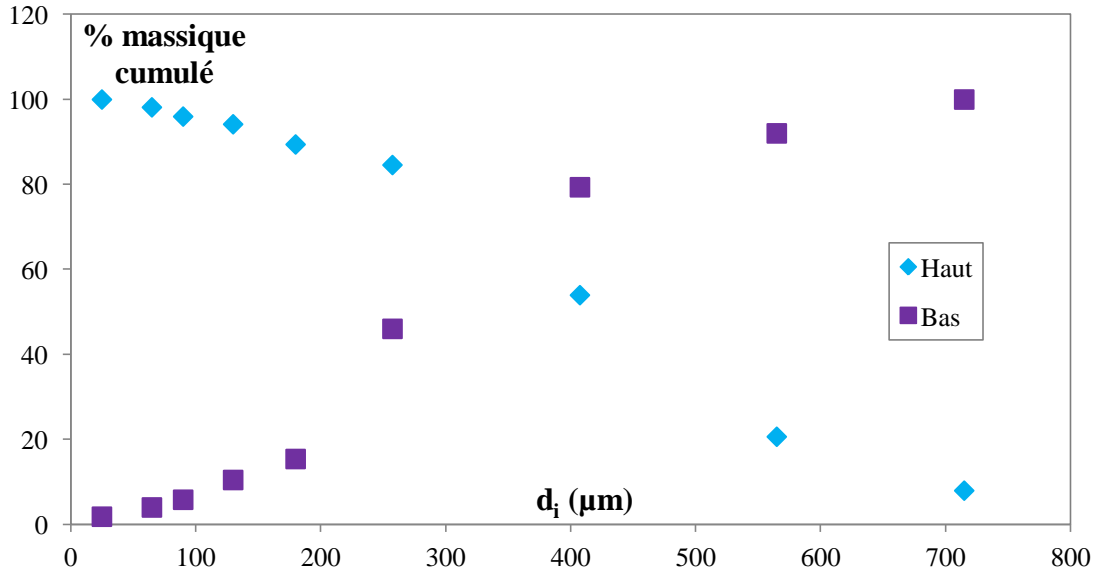


Figure 1.3 : La distribution granulométrique des particules du sol mélange.

A partir de la figure 1.3, le diamètre des particules du sol mélange est : $d_p = 345\mu\text{m}$.

Le tableau 1.4 représente les différents diamètres moyens calculés des différents sols :

Tableau 1.4 : Les différents diamètres moyens des différents sols.

Diamètre moyen	Sol1	Sol2	Sol mélange
d_A (µm)	366,70	346,25	361,61
d_H (µm)	257,13	207,38	235,45

➤ Calcul de coefficient d'uniformité

On peut caractériser la granulométrie du sol par un coefficient d'uniformité U qui caractérise l'étalement de la granulométrie (coefficient de Hazen) qui égale :

$$U = d_{60} / d_{10} \quad (1.4)$$

Avec :

d_{60} : Diamètre du tamis qui laisse passer 60% des particules ;

d_{10} : Diamètre du tamis qui laisse passer 10% des particules.

Remarque :

Si $U < 2$: la granulométrie est serrée ;

Si $U > 2$: la granulométrie est étalée.

Le tableau 1.5 regroupe les résultats obtenus pour le calcul de coefficient d'uniformité d'après les courbes de la distribution granulométrique des particules (figure 1.1, 1.2 et 1.3).

Tableau 1.5 : Résultats obtenus pour le calcul de coefficient d'uniformité.

	Sol1	Sol2	Sol mélange
d_{60} (μm)	305	310	325
d_{10} (μm)	160	110	130
U	1,90	2,81	2,50

Pour le sol1 $U = 1,90 < 2$, donc la granulométrie est serrée. Par contre, pour le sol2 et le sol mélange $U = 2,81$ et $2,50$ respectivement est > 2 , alors, la granulométrie est étalée.

ANNEXE 2

DETERMINATION DE LA MASSE VOLUMIQUE DU SOLIDE

La masse volumique du solide a été déterminée par la méthode de l'éprouvette graduée dont le principe consiste à introduire une masse m_s bien déterminée du solide dans une éprouvette graduée et à combler les interstices avec de l'eau jusqu'à un certain volume. La masse totale du système m_t ainsi obtenu est :

$$m_t = m_s + m_p + m_{ex}$$

Et le volume total du solide immergé est :

$$V_t = V_s + V_p$$

Avec :

m_t : masse totale (g) ;

m_s : masse du solide (g) ;

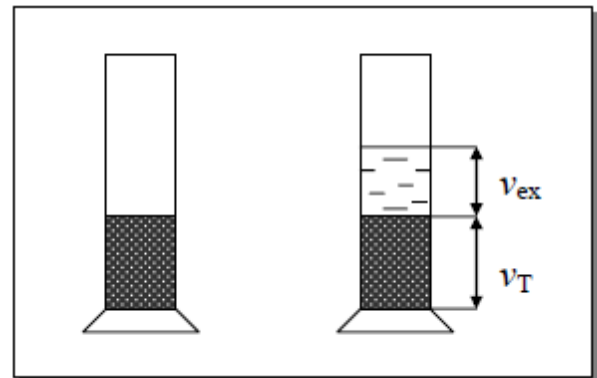
m_{ex} : masse d'eau en excès (g) ;

m_p : masse de l'eau dans les pores (g) ;

V_p : volume d'eau emprisonné dans les pores (cm³) ;

V_s : volume du solide (cm³) ;

V_t : volume apparent du solide (cm³) ;



La masse volumique du solide ρ_s s'écrit donc :

$$\rho_s = \frac{m_s}{V_s} = \frac{m_s}{V_t - V_p} \quad (2.1)$$

Avec

$$V_p = \frac{m_t - m_s - m_{ex}}{\rho_{eau}} \quad (2.2)$$

Et

$$m_{ex} = V_{ex} \cdot \rho_{eau} \quad (2.3)$$

La porosité ε est calculée à partir de l'expression suivante :

$$\varepsilon = \frac{V_P}{V_T} \quad (2.4)$$

Calcul d'erreurs

L'erreur relative commise sur la détermination de la masse volumique du solide est :

$$\Delta\rho_S = \frac{\Delta m_s}{m_s} + \frac{\Delta V_T}{V_T - V_P} + \frac{\Delta V_P}{V_T - V_P} \quad (2.5)$$

Et comme

$$\frac{\Delta V_P}{V_P} = \frac{\Delta m_T + \Delta m_s + \Delta m_{ex}}{m_T - \Delta m_s - m_{ex}} + \frac{\Delta \rho_{eau}}{\Delta \rho_{eau}} \quad (2.6)$$

Nous aurons alors l'expression de l'erreur relative au volume de pore :

$$\Delta V_p = V_p \left[\frac{\Delta m_T + \Delta m_s + \Delta m_{ex}}{m_T - m_s - m_{ex}} \right] \quad (2.7)$$

Puisque $\frac{\Delta \rho_{eau}}{\rho_{eau}} = 0$, alors ;

$$\frac{\Delta \rho_s}{\rho_s} = \frac{\Delta m_s}{m_s} + \frac{\Delta V_T}{V_T - V_p} + \frac{V_p}{V_T - V_p} \left[\frac{\Delta m_T + \Delta m_s + \Delta m_{ex}}{m_T - m_s - m_{ex}} \right] \quad (2.8)$$

Et :

$$\frac{\Delta \varepsilon}{\varepsilon} = \frac{\Delta V_p}{V_p} + \frac{\Delta V_T}{V_T} \quad (2.9)$$

Le tableau 2 représente les résultats de mesure effectués pour chaque échantillon du sol.

Tableau 2 : Résultats de mesure de la masse volumique pour les trois sols.

	Sol1	Sol2	Sol mélange
m_s (g)	9.195	6.339	3,022
m_{ex} (g)	10.5	12	3,900
m_t (g)	25.034	20.901	8,583
V_t (cm ³)	9	5.5	3,000
V_p (cm ³)	5.339	2.562	1,592
ρ_s (g.cm ⁻³)	2.511	2.157	2.132
ε	0.593	0.465	0.527
$\Delta\rho_s/\rho_s$	0.009	0.011	0,022
$\Delta\rho_s$ (g.cm ⁻³)	0.022	0.023	0,047
$\Delta\varepsilon/\varepsilon$	0.008	0.017	0,028
$\Delta\varepsilon$	0.005	0.008	0,015

Avec :

$$\Delta m = 10^{-3} \text{ g ;}$$

$$\Delta V = 3.10^{-2} \text{ cm}^3 ;$$

Sol1 : $\rho_s = (2.511 \pm 0.022) \text{ (g.cm}^{-3}\text{)}$ $\varepsilon = 0.593 \pm 0.005$

Sol2 : $\rho_s = (2.157 \pm 0.023) \text{ (g.cm}^{-3}\text{)}$ $\varepsilon = 0.465 \pm 0.008$

Sol mélange : $\rho_s = (2.132 \pm 0,047) \text{ (g.cm}^{-3}\text{)}$ $\varepsilon = 0.527 \pm 0,015$

ANNEXE 3

3.1. DOSAGE DES NUTRIMENTS

3.1.1. Dosage des nitrites

➤ Réactif utilisés

- Acide orthophosphorique concentré H_3PO_4 ;
- Sulfanilamide $C_6H_8O_2N_2S$;
- Dichlorure de N-(1-naphtyl) éthylène diamine $C_{10}H_7NHCH_2CH_2NH_2, 2HCl$;
- Nitrite de sodium $NaNO_2$.

➤ Préparation du réactif de diazotation

- Introduire dans une fiole de 250mL, contenant 150mL d'eau distillée, 25mL d'acide orthophosphorique concentré ;
- Ajouter 10g de sulfanilamide ;
- Ajouter après dissolution, 0,5g de dichlorure de N-(1-naphtyl) éthylène diamine ;
- Une fois le mélange totalement dissous, compléter à 250mL avec de l'eau distillée ;
- Mettre le réactif dans un flacon brun et le conserver à 4°C à l'abri de la lumière.

➤ Courbe d'étalonnage

- Préparer une solution de 100mg/L de NO_2^- et la diluer au 1/100 ;
- Réaliser des dilutions de manière à obtenir des solutions de concentrations 0, 10, 20, 30, 40, 50, 60, 70, 90, 100 μ g/L de NO_2^- ;
- Prélever à l'aide d'une pipette 20mL d'échantillon et l'introduire dans un tube à essai ;
- Ajouter 0,4mL du réactif de diazotation dans chaque solution préparée et homogénéiser ;
- Attendre 10 minutes environ et effectuer les mesures à la longueur d'onde $\lambda=537$ nm ;
- Les résultats sont consignés dans le tableau 3.1.

Tableau 3.1 : Courbe d'étalonnage des nitrites.

C (μ g/L)	0	10	20	30	40	50	60	70	90	100
DO	0	0,009	0,013	0,018	0,025	0,031	0,038	0,045	0,055	0,065

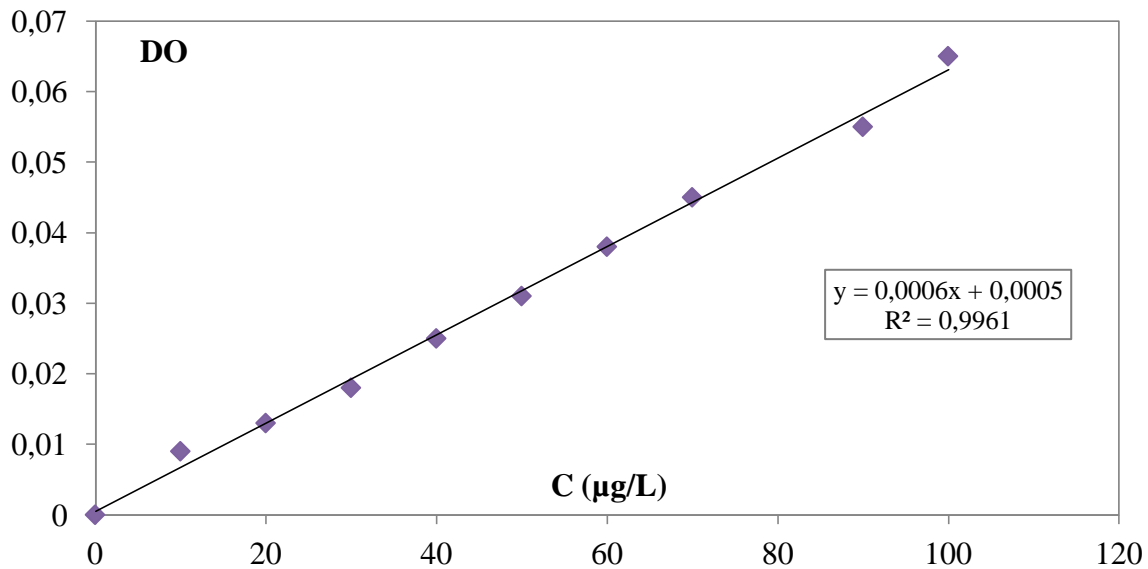


Figure 3.1 : Courbe d'étalonnage des nitrites, $DO = f(C)$.

3.1.2. Dosage des nitrates

➤ Réactif utilisés

- Acide sulfurique concentré H_2SO_4 ($d=1,84$) ;
- Phénol C_6H_6O ;
- Ammoniaque NH_3 ;
- Nitrate de potassium KNO_3 .

➤ Préparation du réactif sulfophénique

- Dissoudre 12 g de phénol dans 144 mL d'acide sulfurique H_2SO_4 ;
- Mettre le mélange au bain marie pendant 2 heures pour que la réaction soit totale ;
- Conserver le réactif dans un flacon brun.

➤ Courbe d'étalonnage

- Préparer une solution étalon de 1g/L de NO_3^{2-} ;
- Réaliser des dilutions de manière à obtenir des solutions de concentrations 10, 20, 30, 40, 50, 60, 70, 80, 100mg/L ;
- Prélever à l'aide d'une pipette 5mL d'échantillon et l'introduire dans un bécher ;
- Evaporer à sec ;

- Laisser refroidir et ajouter 2mL de réactif sulfophénique ;
- Attendre 10minutes et ajouter ensuite 10mL d'eau distillée et un volume d'ammoniaque de 10 à 15mL qui dévoile une coloration jaune ;
- Compléter à 50mL avec de l'eau distillée ;
- Réaliser la lecture sur le spectrophotomètre à la longueur d'onde $\lambda = 440 \text{ nm}$;
- Les résultats sont consignés dans le tableau 3.2.

Tableau 3.2 : Courbe d'étalonnage des nitrates.

C (mg/L)	0	10	20	30	40	50	60	70	80	100
DO	0	0,048	0,096	0,142	0,187	0,231	0,269	0,326	0,358	0,427

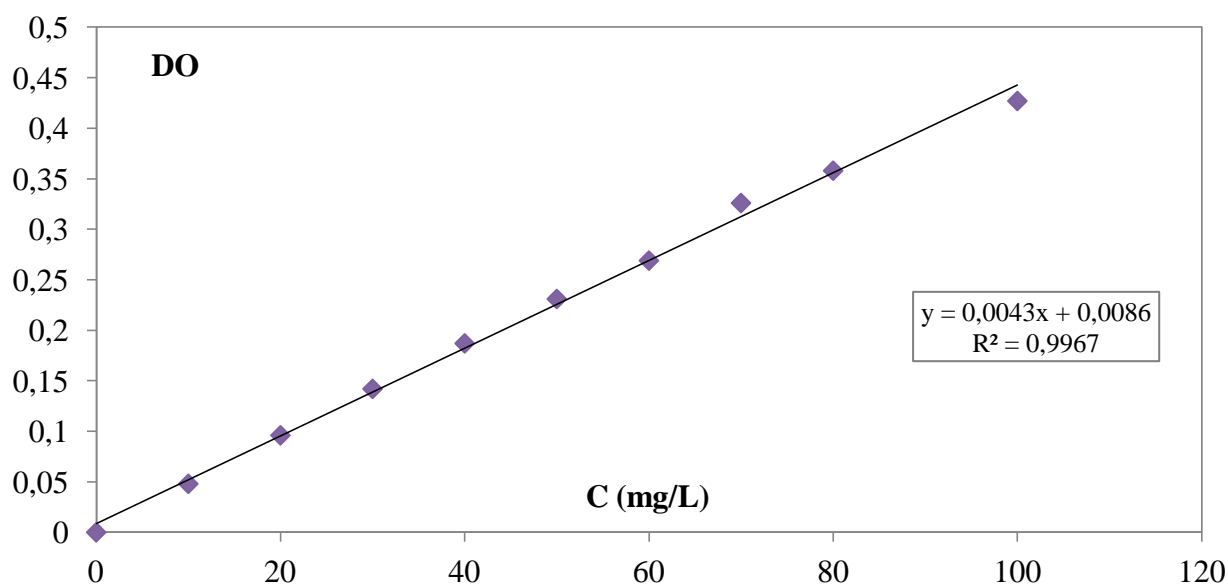


Figure 3.2 : Courbe d'étalonnage des nitrates, $DO = f(C)$.

3.1.3. Dosage de l'azote ammoniacal

➤ **Réactifs utilisés**

- Iodure de potassium KI ;
- Dichlorure de mercure $HgCl_2$;
- Hydroxyde de sodium NaOH ;
- Tartrate double de potassium et de sodium ($C_4H_4O_6KNa, 4H_2O$) ;
- Chlorure d'ammonium NH_4Cl .

➤ Préparation du réactif de Nessler

- Dissoudre 50g d'iodure de potassium dans 35mL d'eau distillée ;
- Ajouter une quantité suffisante de solution saturée de dichlorure de mercure jusqu'à ce qu'un léger précipité subsiste ;
- Introduire 400mL de solution d'hydroxyde de sodium 9N ;
- Ajuster le volume à 1L ;
- Laisser reposer, décanter.

➤ Préparation du tartrate double de potassium et de sodium

Préparer 250mL de solution comme suit :

- Dissoudre 125g de tartrate double de potassium et de sodium ($C_4H_4O_6KNa, 4H_2O$) dans 250mL d'eau chaude ;
- Après refroidissement, ajouter 12,5mL de réactif de Nessler ;
- Laisser reposer deux jours environ, puis filtrer ;
- A conserver ensuite au réfrigérateur.

➤ Préparation de la solution étalon d'azote ammoniacal (10mg de NH_4^+ par litre)

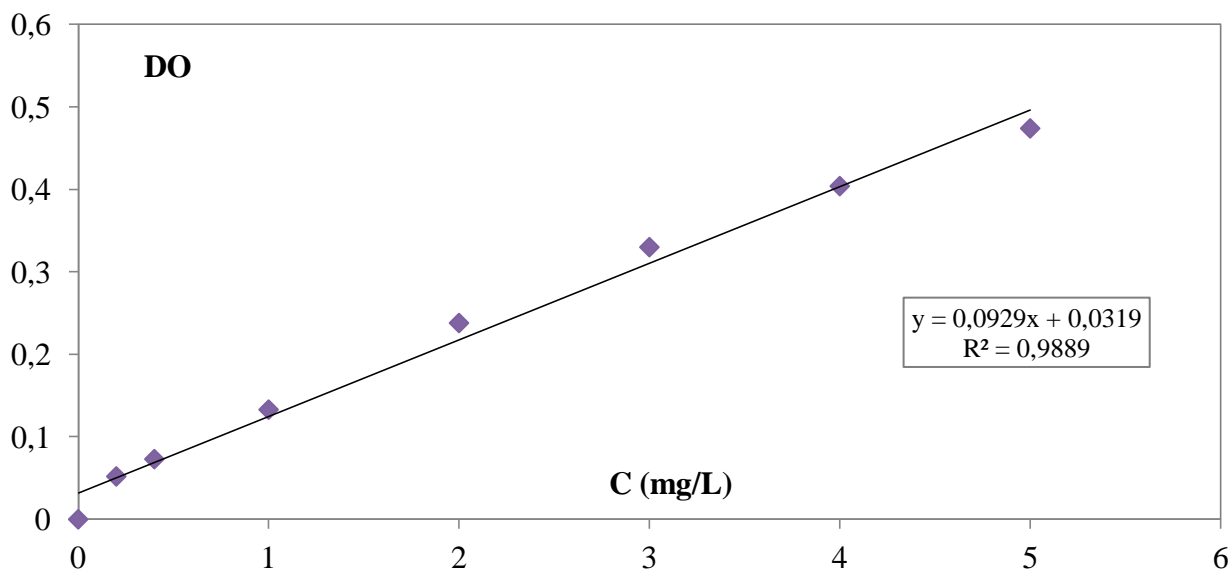
- Dissoudre 29,7mg de chlorure d'ammonium dans l'eau distillée ;
- Compléter à 100mL en fiole jaugée ;
- La solution obtenue est ensuite diluée au dixième. A conserver au réfrigérateur.

➤ Courbe d'étalonnage

- Dans une série de fioles jaugées de 50mL, introduire les quantités de solution étalon d'azote ammoniacal suivantes : 0, 1, 2, 5, 10, 15, 20, 25 mL ;
- Compléter à 50mL avec de l'eau distillée et ajouter 2mL de la solution de tartrate puis mélanger ;
- Ajouter 2mL de réactif de Nessler puis mélanger à nouveau ;
- Attendre 10min et effectuer les mesures au spectrophotomètre à la longueur d'onde de 420nm ;
- Les résultats sont consignés dans le tableau 3.3.

Tableau 3.3: Courbe d'étalonnage de l'azote ammoniacal.

C (mg/L)	0	0,2	0,4	1	2	3	4	5
DO	0	0,052	0,073	0,133	0,238	0,330	0,404	0,474

**Figure 3.3 :** Courbe d'étalonnage de l'azote ammoniacal, $DO = f(C)$.

3.1.4. Dosage du phosphore

➤ Réactifs utilisés

- Acide ascorbique $C_6H_8O_6$;
- Acide sulfurique H_2SO_4 (9M) ;
- Tartrate d'antimoine et de potassium ;
- Paramolybdate d'ammonium ;
- Dihydrogèno phosphate de potassium KH_2PO_4 .

➤ Préparation de la solution molybdate acide

- Dissoudre 13g de tartrate d'antimoine et de potassium dans 100mL d'eau distillée ;
- Diluer 230mL de H_2SO_4 (9M) dans 70mL d'eau distillée, puis l'ajouter à la solution précédente ;
- Ajouter au mélange la solution suivante : dissoudre 0,35g de paramolybdate d'ammonium dans 100mL d'eau distillée.

➤ **Préparation de la solution acide ascorbique**

Dissoudre 10g d'acide ascorbique dans 100mL d'eau distillée.

➤ **Préparation de la solution étalon**

- Dissoudre 0,2197g de KH_2PO_4 dans 800mL d'eau distillée, ajouter 10mL d'acide sulfurique (4,5M) puis compléter à 1000mL avec de l'eau distillée (solution mère 50 mg/L de P) ;
- Préparer une solution fille à 2mg/L.

➤ **Courbe d'étalonnage**

- Dans une série de fioles jaugées de 50mL, faites une dilution de la solution fille (2mg/L) correspondant aux concentrations suivantes : 0 ; 0,05 ; 0,1 ; 0,2 ; 0,3 ; 0,4 ; 0,5 mg/L.
- Ajuster à 50mL avec de l'eau distillée, puis prélever de chaque fiole un volume équivalent à 40mL.
- Ajouter 1mL de la solution acide ascorbique + 2mL de la solution molybdate acide.
- Une couleur bleue apparaitre, attendre 30 minutes, la lecture des densités optiques peut s'effectuer à l'aide d'un spectrophotomètre à une longueur d'onde égale à 880nm.
- Les résultats sont consignés dans le tableau 3.4.

Tableau 3.4: Courbe d'étalonnage du phosphore.

C (mg/L)	0	0,05	0,1	0,2	0,3	0,4	0,5
DO	0	0,033	0,068	0,128	0,188	0,249	0,302

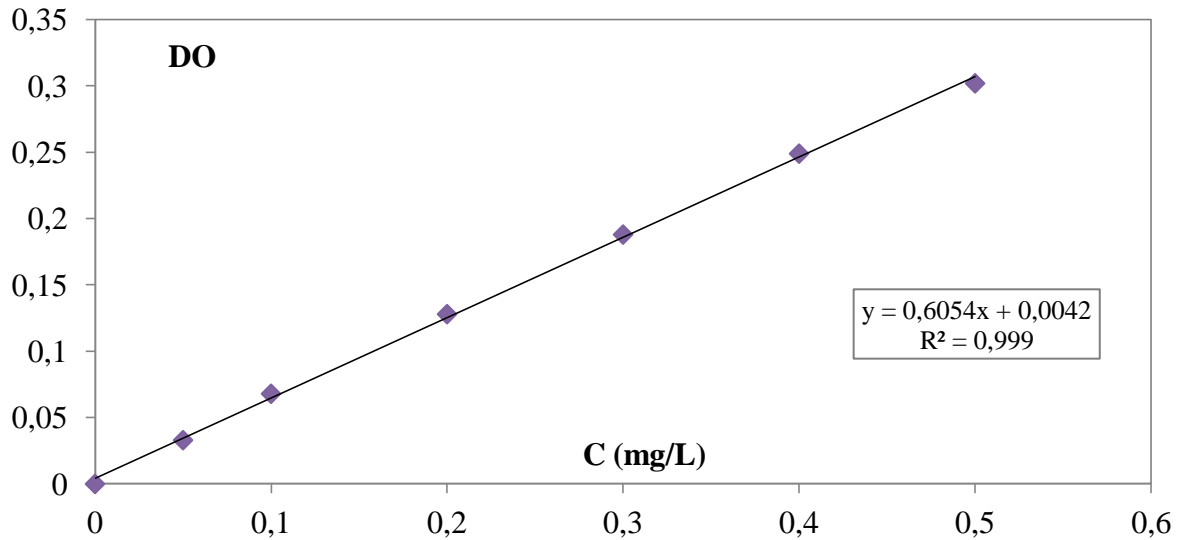


Figure 3.4 : Courbe d'étalonnage du phosphore, $DO = f(C)$.

3.2. Détermination de la demande chimique en oxygène (DCO)

➤ Réactifs utilisés

- Bichromate de potassium $K_2Cr_2O_7$;
- Sulfate de mercure $HgSO_4$;
- Acide sulfurique H_2SO_4 ;
- Sulfate d'argent Ag_2SO_4 .

➤ Préparation du réactif de digestion

Dans 500mL d'eau distillée ajouter dans l'ordre :

- 10,216 g de $K_2Cr_2O_7$ (préalablement séché à l'étuve pendant 2h à 105°C) ;
- 33,3g $HgSO_4$;
- 167mL H_2SO_4 .

➤ Préparation du réactif d'acide sulfurique

Ajouter du Ag_2SO_4 dans du H_2SO_4 concentré à raison de 5,5g de Ag_2SO_4 /kg de H_2SO_4 .

➤ Mode opératoire

- Introduire dans un tube à fond plat de DCO 2,5mL de l'échantillon à analyser ;
- Ajouter 1,5mL de dichromate de potassium $K_2Cr_2O_7$;

- Ajouter lentement et avec précaution 3,5mL d'acide sulfurique-sulfate d'argent en agitant le tube dans le vortex et en refroidissant sous un courant d'eau froide de façon à éviter toute perte de substances organiques volatils ;
- Porter à ébullition dans un bloc chauffant (148°C) pendant 2 h ;
- Effectuer la lecture sur le spectrophotomètre à $\lambda = 600 \text{ nm}$;
- La teneur en DCO est déduite du graphe d'étalonnage.

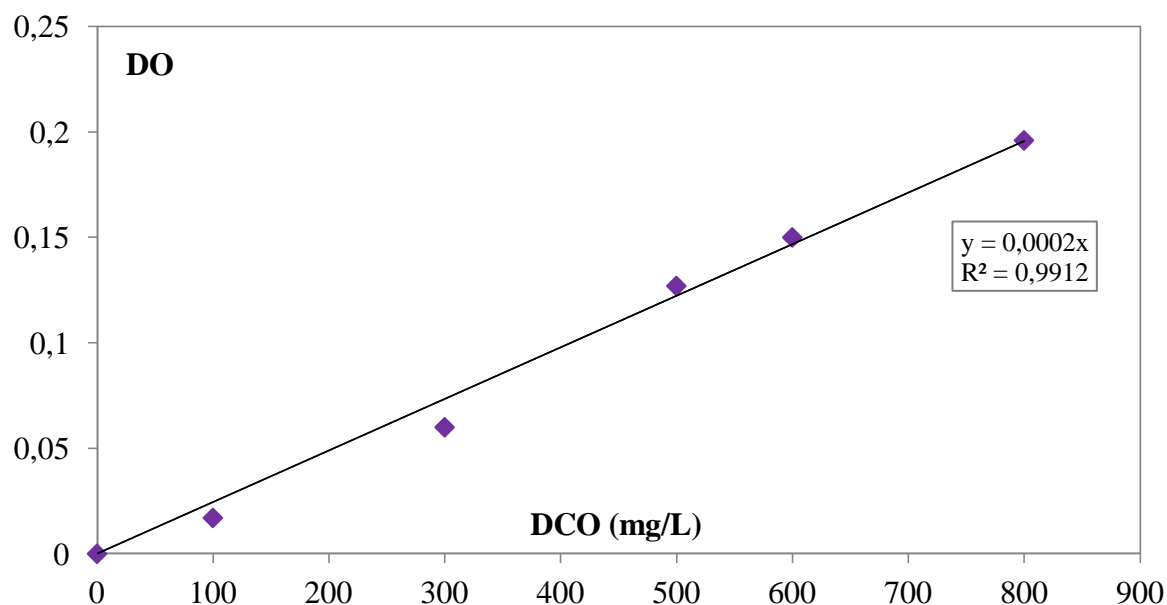


Figure 3.5 : Courbe d'étalonnage de la DCO, $DO = f(C)$.

3.3. Dosage du carbone organique

➤ Réactifs utilisés

- Acide sulfurique concentré H_2SO_4 ;
- Solution de bichromate de potassium $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$ à 8% (0,2N) ;
- Sel de Mohr (sulfate d'ammonium – fer II hexahydraté) ;
- Fluorure de sodium en poudre (NaF) ;
- Diphénylamine.

➤ Préparation de la solution de diphénylamine

Dissoudre 0,5g de diphénylamine dans 60mL de l'acide sulfurique concentré, le verser ensuite dans 40mL d'eau distillée.

➤ Préparation de la solution de sel de Mohr

- Dissoudre 78,5g de sel de Mohr dans 500mL d'eau distillée chaude, refroidir à l'abri de l'air ;
- Ajouter 20mL d'acide sulfurique concentré et compléter à 1000mL.

➤ Mode opératoire

- Peser 0.5g de terre séchée ;
- Mettre la prise d'essai dans un ballon de 250mL ;
- Ajouter :
 - 10mL de bichromate de potassium ;
 - 15mL de H₂SO₄ concentré ;
- Couvrir le ballon d'un verre de montre ;
- Porter le ballon sur un chauffe ballon ;
- Après la chute de la première goutte d'eau, compter 5min et retirer le ballon,
- Laisser refroidir ;
- Transvaser le contenu du ballon dans une fiole de 100mL et ajuster à 100 avec de l'eau distillée ;
- Pipeter 20mL de la solution et transvaser dans un erlen ;
- Ajouter :
 - 150mL d'eau distillée ;
 - Une pince de NaF ;
 - Ajouter 3 à 4 gouttes de solution de diphénylamine ;
- En agitant, titrer avec la solution de sel de Mohr jusqu'à obtention d'une couleur bleu verte ;
- Refaire la même opération avec un témoin (sans terre fine).

ANNEXE 4

HYDROCARBURES DU SOL

4.1. Extraction des hydrocarbures totaux du sol (TPH) : méthode gravimétrique

L'extraction des hydrocarbures du sol a été réalisée dans un extracteur ultrason en se basant sur la méthode de bi-lavage ; on prend 5g du sol contaminé dans un erlen de 50mL :

- On ajoute 30mL de solvant dichlorométhane CH_2Cl_2 pendant 10min dans un premier lavage ;
- On rajoute 15mL de solvant dichlorométhane CH_2Cl_2 pendant 10min dans un second lavage ;
- Le mélange (extrait - solvant) est filtré puis distillé dans un rotavapor à 40°C ;
- Après distillation, l'extrait est laissé à sécher pour être ensuite pesé. La quantité des hydrocarbures totaux extraite est déterminée.

4.2. Mesure de la densité du gasoil

La mesure de la densité du gasoil est effectuée à l'aide d'un densimètre à une température de 20°C .

La densité du gasoil à 20°C est $d_g = 0,822$.

Nous avons aussi mesuré la masse volumique du gasoil en utilisant un pycnomètre d'une capacité de 10mL, nous avons obtenu les résultats suivants :

m_p : la masse de pycnomètre vide = 17,743g ;

m_e : la masse de pycnomètre rempli d'eau = 26,008g ;

m_g : la masse de pycnomètre rempli du gasoil = 27,842g ;

Alors ; la masse volumique du gasoil $\rho_g = 0,818 \text{ g/cm}^3$.

ANNEXE 5

5.1. Résultats expérimentaux de mesure du débit d'air

La pompe d'aquarium à deux sorties peut délivrer trois débits d'air différents « L, M et H ». Nous avons mesuré le débit d'air pour un et deux diffuseur(s).

5.1.1. Mesure du débit d'air L

Les résultats sont regroupés dans le tableau suivant (tableau 5.1):

Tableau 5.1 : Les résultats obtenus pour le débit d'air L.

	Un diffuseur		Deux diffuseurs	
V (cm ³)	273	248	650	440
t (s)	18,20	13,33	20,18	12,44
Q (cm ³ /s)	15	18,60	32,21	35,36
Q _{moyen} (cm ³ /s)	16,80		33,78	

5.1.2. Mesure du débit d'air M

Les résultats sont regroupés dans le tableau suivant (tableau 5.2):

Tableau 5.2 : Les résultats obtenus pour le débit d'air M.

	Un diffuseur		Deux diffuseurs	
V (cm ³)	385	476	517	576
t (s)	12,49	18,42	9,21	10,56
Q (cm ³ /s)	30,82	25,84	56,13	54,54
Q _{moyen} (cm ³ /s)	28,33		55,33	

5.1.3. Mesure du débit d'air H

Les résultats sont regroupés dans le tableau suivant (tableau 5.3):

Tableau 5.3 : Les résultats obtenus pour le débit d'air H .

	Un diffuseur		Deux diffuseurs	
V (cm ³)	470	430	590	610
t (s)	14,30	11,7	9,31	8,68
Q (cm ³ /s)	32,86	36,75	63,37	70,27
Q _{moyen} (cm ³ /s)	34,80		66,82	

5.2. Calcul des vitesses minimales de fluidisation du solide

Au minimum de fluidisation, l'équation établie par Ergun donnant la vitesse minimale de fluidisation en fonction des caractéristiques du solide et du gaz ainsi que l'accélération de la pesanteur est la suivante :

$$(1 - \varepsilon_{mf})(\rho_p - \rho_g)g = \frac{150(1 - \varepsilon_{mf})^2 \cdot \mu_g}{\varepsilon_{mf}^3 \cdot (\phi_p \cdot d_p)^2} U_{mf} + 1,75 \cdot \frac{1 - \varepsilon_{mf}}{\varepsilon_{mf}^3} \cdot \frac{\rho_g}{\phi_p \cdot d_p} U_{mf}^2 \quad (5.1)$$

En tenant compte des simplifications faites sur les petites particules dont $Re_p < 20$, la relation devient :

$$U_{mf} = \frac{(\phi_p \cdot d_p)^2}{150} \cdot \left(\frac{\rho_p - \rho_g}{\mu_g} \right) \cdot g \cdot \frac{\varepsilon_{mf}^3}{(1 - \varepsilon_{mf})} \quad (5.2)$$

Tel que :

U_{mf} : vitesse minimale de fluidisation (cm/s) ;

d_p : diamètre des particules (cm) ;

μ_g : viscosité du gazoil (kg/m.s) ;

ρ_p : masse volumique des particules (g/cm³) ;

ρ_g : masse volumique du gazoil (g/cm³) ;

ε_{mf} : porosité du solide ;

g : force gravitationnelle (N/kg) ;

ϕ_p : sphéricité des particules.

Application numérique

U_{mf} : 81 (cm/s) ;

d_p : 345 (μm) ;

μ_g : $1,8 \times 10^5$ (kg/m.s) ;

ρ_p : 2,13 (g/cm³) ;

ρ_g : 1,2 (g/cm³) ;

ε_{mf} : 0,52;

g : 9,8(N/kg) ;

\varnothing_p : 0,52.

ANNEXE 6

Taux de croissance maximal

Le taux de croissance maximal est déterminé à partir des pentes des droites moyennes représentées par $\ln (X/X_0) = f (t)$ de la phase exponentielle de la croissance bactérienne.

Les figures 6.1, 6.2 et 6.3 représentent la courbe de $\ln (X/X_0) = f (t)$ pour les systèmes H1D1NS, H2D1NS et H2D2NS respectivement.

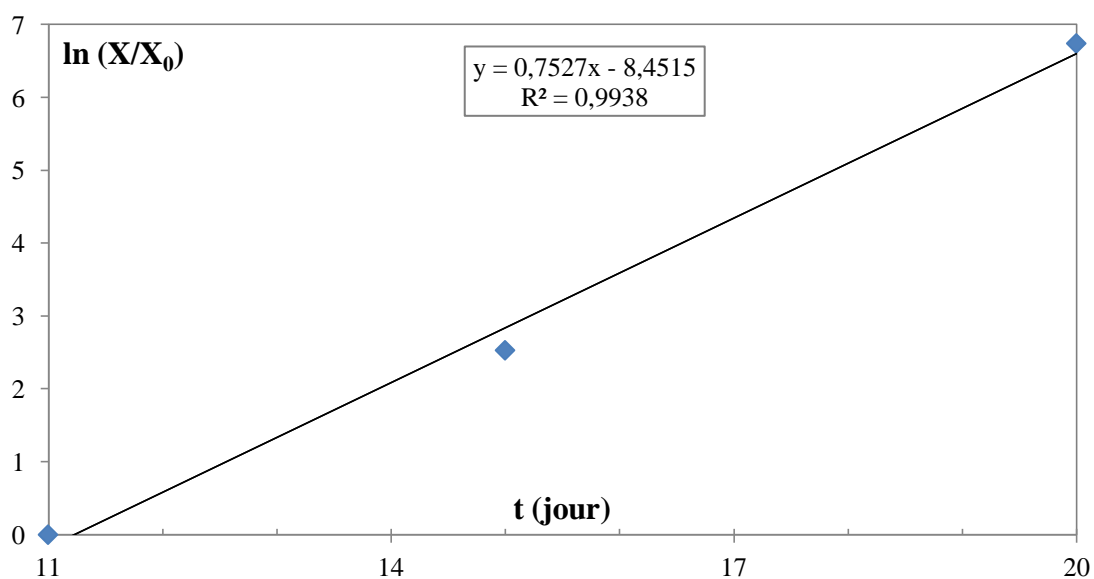


Figure 6.1 : Evolution temporelle de taux de croissance bactérien pour le système H1D1NS.

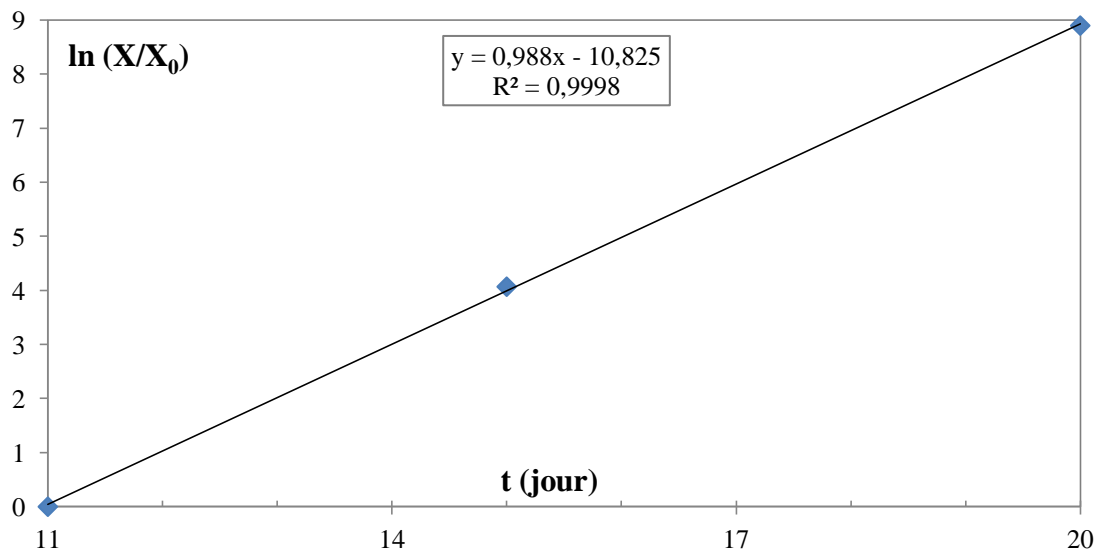


Figure 6.2 : Evolution temporelle de taux de croissance bactérien pour le système H2D1NS.

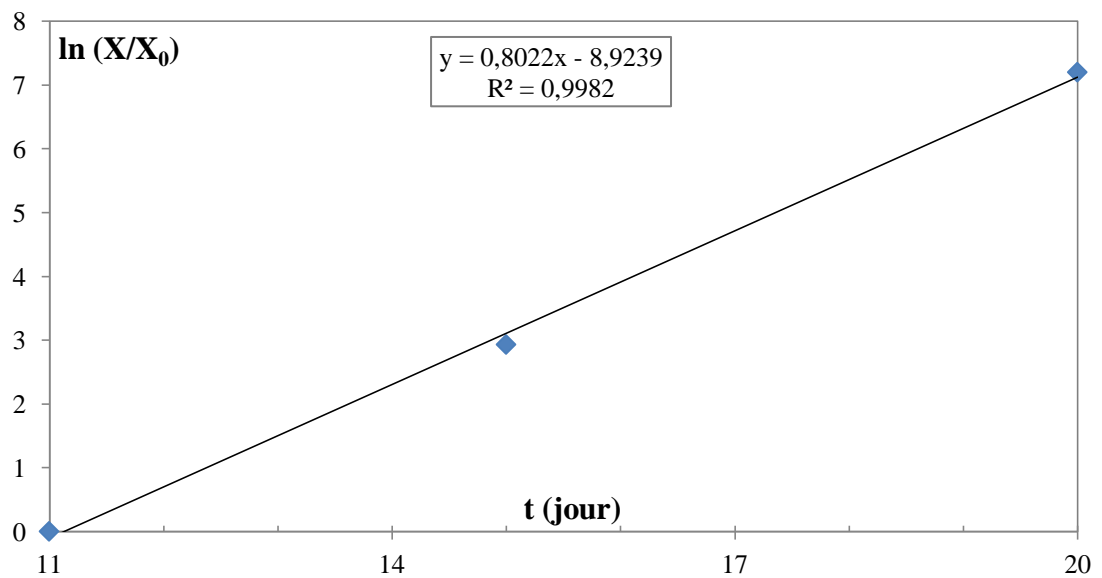


Figure 6.3 : Evolution temporelle de taux de croissance bactérien pour le système H2D2NS.

ANNEXE 7

Caractéristiques physico-chimiques du sol

Sol1

d_p (μm)	355	NO_2^- (g/g) $\times 10^6$	0,516
ρ (g/cm ³)	2.51	NO_3^{2-} (g/g) $\times 10^5$	7.21
ε	0.59	NH_4^+ (g/g) $\times 10^5$	2.34
Hu (%)	1.23	PO_4^{3-} (g/g) $\times 10^6$	5,34
pH	7.76	MO (%)	2,70

Sol2

d_p (μm)	330	NO_2^- (g/g) $\times 10^6$	1,049
ρ (g/cm ³)	2.15	NO_3^{2-} (g/g) $\times 10^5$	6.66
ε	0.46	NH_4^+ (g/g) $\times 10^5$	12.87
Hu (%)	2.24	PO_4^{3-} (g/g) $\times 10^6$	7,87
pH	8,2	MO (%)	4,75

الملخص

تلوث التربة بواسطة الهيدروكربونات النفطية هي مشكلة ذات نطاق واسع في البيئة ذلك لتأثيرها على المياه و المياه الجوفية.

كان الهدف من هذه الدراسة معالجة تربة ملوثة بالمازوت و ذلك في مفاعلات بيولوجية غاز-صلب، و في ظروف تهوية بمعدل تلوث يساوي 1 بالمئة. لدراسة تأثير التهوية، قمنا باستعمال أنظمة مختلفة و ذلك بتغيير ارتفاع التربة و كذا معدل التهوية.

لهذه الغاية، قمنا بمتابعة التطور الزمني للكتلة الحية و الهيدروكربونات الكلية (TPH). ولقد اثبتنا قدرة الكائنات الجزيئية المحلية لتدهور المازوت في التربة الطينية و التأثير ارتفاع التربة على النسبة التدهور البيولوجي.

الكلمة الرئيسية: التهوية، المازوت، المعالجة البيولوجية للتربة، مفاعل حيوي هوائي.

RESUME

La contamination des sols par les hydrocarbures pétroliers est un problème répandu dans l'environnement du fait de leurs impacts sur les aquifères, les nappes d'eaux souterraines et la ressource non renouvelable.

L'objectif de cette étude était de traiter un sol pollué par du gasoil dans des bioréacteurs gaz-solide sous des conditions aérobies avec un taux de contamination à 1%. Afin d'étudier l'influence de l'aération, nous avons utilisé différents systèmes en faisant varier la hauteur du sol et le débit d'aération.

A cet effet, nous avons suivi l'évolution temporelle de la biomasse et des hydrocarbures totaux (TPH) et avons mis en évidence la capacité des organismes autochtones à dégrader le gasoil dans le cas d'un sol limoneux et l'influence de la hauteur du sol sur le rendement de biodégradation.

Mot clé: Aération, gasoil, bioremédiation du sol, bioréacteur aéré.

ABSTRACT

Soil contamination by petroleum hydrocarbons is a widespread problem in the environment because of their impacts on aquifers, groundwater and non-renewable resource.

The aim of this work was to treat soil contaminated with diesel fuel in gas-solid bioreactors under aerobic conditions with an infection rate of 1%. To study the influence of ventilation, we used different systems by varying the height of the soil and aeration rate.

To this end, we followed the time evolution of biomass and total hydrocarbons (TPH) and have demonstrated the capacity of indigenous degraded diesel in the case of a loam soil and the influence of height soil on the performance of biodegradation.

Keywords: Ventilation, diesel fuel, bioremediation of soil, aerated bioreactors.