



ACTION N° 5.3 – EVALUATION DE LA RETENTION ET DU DEVENIR D'UN PANEL DIVERSIFIÉ DE MICROPOLLUANTS DANS UN OUVRAGE DE BIOFILTRATION DES EAUX DE RUISSELLEMENT DE VOIRIE

CONTEXTE ET OBJECTIVES

Les eaux de ruissellement urbaines sont un vecteur important de micropolluants en milieu urbain, dont certains identifiés comme polluants prioritaires par la Directive Cadre sur l'Eau de l'Union Européenne. Une meilleure contrôle de ce flux polluant apparaît comme nécessaire afin d'atteindre l'objectif du bon état des milieux imposé par ce directive, à l'échéance finale de 2027. Les infrastructures de gestion à la source des eaux pluviales, souvent appelés *techniques alternatives*, peuvent contribuer à la maîtrise de ce flux.

Des travaux précédents menés dans le cadre d'OPUR ont permis de mettre en avant ce potentiel des infrastructures de gestion à la source des eaux pluviales, souvent appelés *techniques alternatives*, à contribuer à la maîtrise de ce flux. Adèle Bressy (2010) a mis en avant une réduction du flux polluant dirigé vers les eaux superficielles sur un bassin versant aménagé de techniques alternatives essentiellement liée à une réduction du volume de ruissellement du fait de son infiltration. Par la suite, Jérémy Sage (2016) s'est intéressée à l'optimisation de la conception hydrologique des techniques alternatives afin de maîtriser au mieux la contamination des eaux pluviales et Damien Tedoldi (2017) a considéré la pollution du sol dans ces ouvrages. Dans la continuité de ces travaux, l'Action 5.3 de la Phase 4 d'OPUR s'intéresse à la capacité de la biofiltration *biofiltration*, une technique alternative conçu pour optimiser la rétention des polluants et donc pour favoriser une amélioration de la qualité de l'eau infiltrée, à réduire les flux d'eau et de polluants.

Les ouvrages de *biofiltration* gèrent les eaux pluviales à proximité de la source, au moyen de systèmes végétalisés conçu pour le stockage, la filtration et éventuellement l'infiltration de l'eau. Cette technique est d'un intérêt particulier lorsqu'un bassin versant produit une eau fortement polluée nécessitant un traitement avant son infiltration au sous-sol, comme est souvent le cas de voiries ayant un fort trafic. Ces types d'ouvrages sont largement répandus à l'international où de nombreuses études ont démontré leur capacité à réduire les flux de macropolluants, tels que les matières en suspension et les nutriments, via une amélioration de la qualité du ruissellement combinée à une réduction de son volume. Cependant, le comportement des micropolluants dans ces systèmes reste relativement peu documenté.

Dans ce contexte, les principaux de cette action de recherche, menée dans le cadre de la thèse de Kelsey Flanagan (2018), était :

- 1) d'évaluer l'efficacité épuratoire de deux ouvrages de biofiltration à l'échelle de l'événement pluvieux pour une sélection de micropolluants caractéristiques des eaux de ruissellement de voirie et présentant une diversité de propriétés physico-chimiques,
- 2) de développer la compréhension des processus de rétention et de transfert des contaminants dans l'ouvrage en lien avec les propriétés du substrat filtrant et des polluants,
- 3) d'établir un bilan de masse à l'échelle annuelle afin d'estimer la proportion du flux polluant retenue par l'ouvrage et caractériser le devenir des polluants après leur rétention.

METHODOLOGIE

Ce travail s'articule principalement autour d'un suivi *in situ* des systèmes de biofiltration mis en œuvre à Compans, suivi comportant des mesures hydrologiques et de qualité d'eau en continu, un travail d'échantillonnage de l'eau de ruissellement brute et de l'eau traitée, et un travail d'échantillonnage du sol. Ce travail a été couplé avec des travaux de caractérisation du substrat filtrant et des matériaux de construction en laboratoire et avec une approche de modélisation stochastique pour établir les différents termes du bilan de masse.

1. Suivi *in situ*

1.1 Description du site d'étude

Le site d'étude comprend deux ouvrages de biofiltration, un accotement filtrant (VFS, aménagé en Septembre 2012) et une noue filtrante (BFS, aménagée en Mars 2016), traitant les eaux de ruissellement issues de la Route Départementale 212 à Compans (77). Après percolation à travers un matériau filtrant (mélange de 40% volumique de terre végétale et 60% de sable calcaire), l'eau est collectée à l'aide d'un drain situé à une profondeur de 15 et 50 cm, respectivement (Figure 1). La qualité de cette eau est comparée à celle du ruissellement brut (RR) collecté au niveau d'un bassin versant de référence sur la même route. Le débit a été mesuré en continu à chaque point avec un auget basculant et la qualité des eaux brutes a été suivie en continu avec une sonde multi-paramètre (conductivité, turbidité).

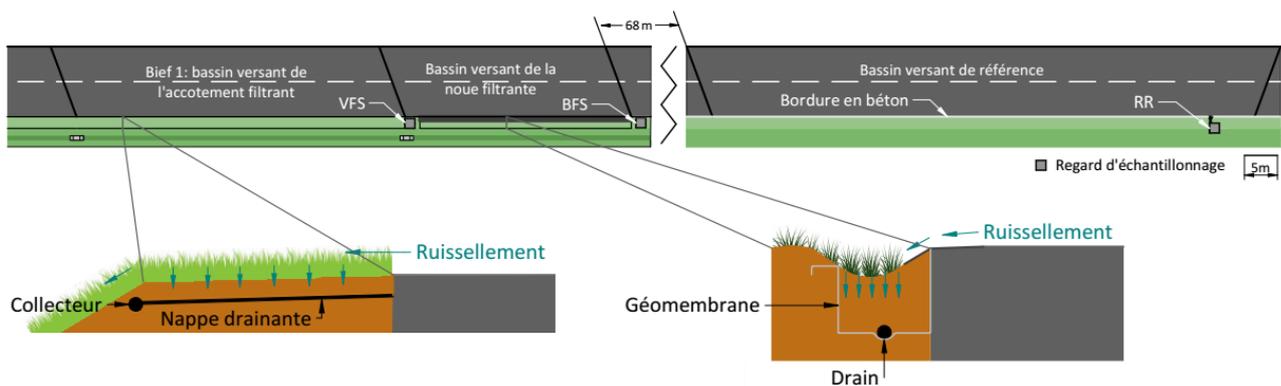


Figure 1 : Schéma du site expérimental à Compans

1.2 Méthodes d'échantillonnage et d'analyse de l'eau

Des échantillons moyens événementiels ont été collectés pour 19 événements pluvieux entre Février 2016 et Juillet 2017. Alors que l'objectif était d'échantillonner simultanément l'eau à tous les points, du fait de difficultés techniques et d'un démarrage plus tardif de l'échantillonnage de la noue filtrante (en Mai 2016) respectivement 14, 18 et 15 échantillons ont été collectés à RR, VFS, et BFS. Ces échantillons étaient collectés immédiatement après la fin du ruissellement, puis filtrés ou envoyés aux laboratoires partenaires pour filtration le jour même.

Les paramètres suivants ont été analysés dans chacun des échantillons : pH, conductivité, turbidité, matières en suspension (MES), carbone organique (CO), nutriments, 8 éléments traces métalliques (ETM), 12 éléments majeurs, les hydrocarbures totaux (HT), 19 hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP), le bisphénol-A (BPA), 7 alkylphénols (AP), et 5 phtalates (PAE). Le CO, les ETM, les éléments majeurs, les HT, les HAP, le BPA, les AP et les PAE ont tous été analysés dans la phase dissoute et la phase particulaire. Les nutriments ont été analysés en concentrations totales et dissoutes. La granulométrie des MES a été évalué pour cinq événements dans les eaux brutes et trois événements en sortie des ouvrages.

1.3. Echantillonnage et analyse du substrat filtrant

Le sol de la noue filtrante a été échantillonné selon la méthode développée dans la thèse de Tedoldi (2017). Dans un premier temps, un grand nombre de points à la surface (premiers 1-2 cm) de la noue filtrante ont été échantillonnés (Figure 2a). Ces échantillons ont ensuite été analysés par spectrométrie de Fluorescence X, une méthode d'analyse élémentaire semi-quantitative et peu coûteuse. Après analyse, des cartographies de concentrations en Pb, en Zn et en Cu (éléments généralement associés au ruissellement urbain) ont été établis, afin de caractériser la variabilité spatiale de la contamination.

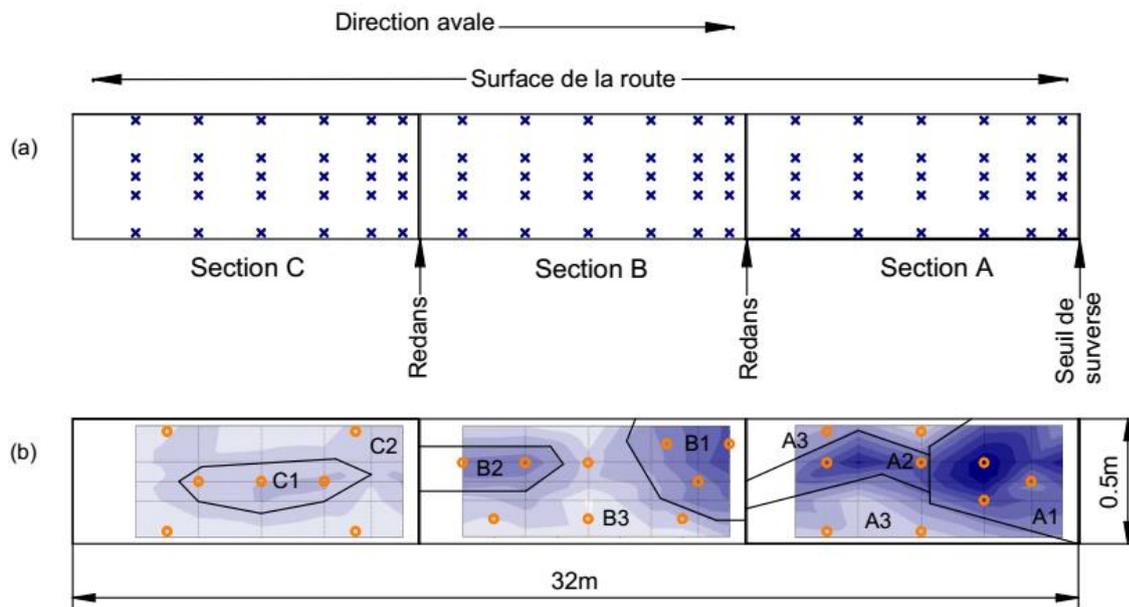


Figure 2 : Points d'échantillonnage du sol de la noue filtrante (a) à la surface et (b) en profondeur, avec en arrière-plan la cartographie de contamination à la surface de cuivre. Les points d'échantillonnage à la surface sont représentés par les x bleus ; les points de prélèvement de carottes sont représentés par les cercles orange.

A partir de cette cartographie, des zones de contamination similaire ont été identifiées. Plusieurs carottes ont été prélevées en Avril 2017 dans chaque zone ; chaque carotte a été découpée en 2-3 tranches pour caractériser la variabilité de la contamination avec la profondeur. On mélange chaque tranche des différentes carottes d'une zone afin d'obtenir un échantillon composite représentatif de la zone et de la profondeur échantillonnées. Sur chaque échantillon composite, le CO, 8 ETM, 12 éléments majeurs, les HT, 19 HAP, le BPA, 7 AP et 5 PAE ont été analysés.

2. Méthodes d'évaluation de performance

2.1. Indicateurs de performance à l'échelle de l'événement pluvial

L'efficacité de traitement a été évaluée en termes d'abattement de concentration ($E_c = \left(1 - \frac{C_{\text{drain}}}{C_{\text{RR}}}\right)$) et en termes de fréquence de non-dépassement d'une valeur de référence (issue des normes de qualité environnementale (NQE) européenne ou française). Le caractère significatif de la différence entre la distribution des concentrations des eaux traitées par rapport à celle du ruissellement brut est évalué par le test statistique apparié et non-paramétrique de Wilcoxon.

2.2. Approche stochastique pour évaluer le bilan de masse de la noue filtrante

Pour une sélection de polluants (Cu, Zn, Pyr, Phen, BPA, OP, NP, DEHP), un bilan de masse a été effectué pour la noue filtrante. Ce bilan prend en compte les flux d'entrée et de sortie et l'évolution de masse de polluants dans le substrat à l'échelle annuelle (Eq. 1).

$$M_{\text{entrée,RR}} + M_{\text{substrat,init}} = M_{\text{sortie,drain}} + M_{\text{sortie,surverse}} + M_{\text{substrat,fin}} + \Delta M \quad (\text{Eq. 1})$$

où $M_{\text{entrée,RR}}$ est le flux polluant associé au ruissellement voirie, $M_{\text{substrat,init}}$ est la masse initiale du polluant présent dans le sol au début de la période, $M_{\text{sortie,drain}}$ est le flux polluant sortie de l'ouvrage par le drain, $M_{\text{sortie,surverse}}$ est le flux polluant sortie de l'ouvrage par surverse, $M_{\text{substrat,final}}$ est la masse de polluant dans le substrat à la fin de la période de mesure et ΔM est la différence entre les masses évaluées – une ΔM positive indique qu'une dissipation du polluant a eu lieu et une ΔM négative indique qu'une source non-comptabilisée du polluant est présente.

Ce bilan permettait (i) d'évaluer la proportion du flux polluant interceptée par à l'échelle annuelle ($E_{\text{int}} = 1 - \frac{M_{\text{sortie,drain}} + M_{\text{sortie,over}}}{M_{\text{entrée,RR}}}$) et (ii) de confronter la masse interceptée par le biofiltre à la masse accumulé dans le sol. Il a été évalué selon une approche stochastique combinant les mesures expérimentales avec des reconstitutions de données manquantes, permettant aussi une comptabilisation des incertitudes associées à ces deux types de grandeurs.

Chaque flux annuel est la somme des flux associés à tous les événements pluvieux de la période, chaque un égale au produit de la concentration moyenne événementielle (C_{ev}) et le volume événementiel (V_{ev}). En générale, si une mesure expérimentale (de C_{ev} ou de V_{ev}) était disponible, on utilisait cette valeur avec une erreur stochastique, basée sur les incertitudes analytiques ou de mesure. Lorsqu'une mesure expérimentale n'était pas disponible pour un événement mais était caractérisé pour d'autres événements dans la période, on estime la valeur par un tirage aléatoire dans la distribution de mesures effectuées ou on le relie à une valeur mesurée par une relation, prenant en compte la variabilité de cette relation avec un composant stochastique.

La masse de polluant dans le sol à chaque période est égale au produit de la masse du sol et de sa teneur en polluant. Le calcul de masse cumulé dans le sol prend en compte l'incertitude liée à la variabilité de la composition initiale du substrat, à la variabilité de sa densité, à la variabilité de la proportion de particules > 2mm (non prise en compte dans les analyses chimique mais considéré dans les mesures de densité), à l'incertitude analytique associée à la mesure de teneurs et à l'incertitude de représentativité de chaque échantillon.

3. Caractérisation d'échanges de polluants entre les matériaux des biofiltres et la phase dissoute

Le potentiel d'échange entre des matériaux présents dans les biofiltres et la phase dissoute de polluants a été caractérisés par de tests en batch au laboratoire. Cette caractérisation n'était pas exhaustive (n'a pas été mené pour l'ensemble de polluants pour tous les matériaux) mais répondait à des questions spécifiques soulevées par les résultats de terrain. Les échanges considérés sont : la sorption de contaminants dissous au substrat filtrant, la lixiviation depuis le substrat filtrant pollué et le sédiment routier et la lixiviation depuis des matériaux de construction employés dans la noue filtrante. Tous les essais ont été mené dans de l'eau d'Evian diluée à 1 :4 avec de l'eau ultrapure afin d'obtenir un pH et une conductivité similaires à ceux observés *in situ* hors périodes de salage.

3.1. Sorption au substrat filtrant

Des tests de sorption en batch ont été effectués pour le Zn, le Cu, le BPA, l'OP et le NP. Pour chaque expérience, 5g de sol a été introduit à 1 L d'eau, puis agité constamment pendant 24h. Ensuite, le polluant considéré a été introduit à concentration connue et équilibré pendant 24h (l'hypothèse d'équilibration en 24h a été validée par de de tests cinétiques). Pour les polluants organiques, $NaNO_3$ était introduit au même moment que les polluants afin d'inhiber la biodégradation. Après équilibration, la solution a été filtrée, puis analysée pour la concentration dissoute. L'évolution de concentration était attribuée à la sorption. Pour chaque polluant, ces tests ont été effectués à plusieurs concentrations afin d'obtenir un isotherme de sorption ; seules les valeurs dans la gamme linéaire ont été retenus pour évaluer un coefficient de partage (K_D).

3.2. Lixiviation depuis le substrat filtrant pollué et le sédiment routier

Afin de considérer la remobilisation potentielle de Cu et de Zn retenus dans les biofiltres, des tests de lixiviation en batch ont été effectué avec du substrat filtrant pollué collecté à la surface de l'accotement filtrant à une distance de 30 cm de la route après 4 ans de fonctionnement et avec du sédiment collecté à la surface de la route. 5 g de substrat ou de sédiment de concentration connue ont été équilibré avec l'eau pendant 24 h, le mélange a été filtré puis la concentration dissoute analysée. La concentration dissoute a été attribuée à une lixiviation et utilisée pour évaluer un coefficient de partage (K_D).

3.3. Lixiviation depuis les matériaux de construction

Pour considérer le potentiel de matériaux de construction de la noue filtrante (géomembrane, drain, tissu du drain, bitume) à lixivier des micropolluants organiques, des tests en batch ont été effectués. Le ratio liquide/solide pour chaque matériel a été sélectionné afin d'imiter celui rencontré en cas de d'une petite pluie (~2mm). Chaque mélange a été agité pendant 24h, puis filtré et la concentration dissoute dans l'eau analysée. La lixiviation de BPA, des AP, de PAE a été considéré pour l'ensemble des matériaux ; la lixiviation des HAP a été considéré pour la géomembrane et la bitume.

RESULTATS EXPERIMENTAUX

1. Efficacité épuratoire du système de biofiltration

1.1 Efficacité à l'échelle de l'événement pluvieux

La comparaison des concentrations en polluants entre les eaux de voirie et les eaux traitées par la noue filtrante (BFS) et par l'accotement filtrant (VFS), démontre la capacité de ces ouvrages de biofiltration à retenir la pollution particulaire. Les réductions médianes des concentrations (E_{c50}) en MES sont de 92 et de 94% respectivement pour VFS et BFS (Tableau 1). Du fait de la bonne rétention des particules et de la nature majoritairement particulaire de la pollution à Compans, les concentrations totales sont généralement bien réduites à la sortie des ouvrages pour les ETM (E_{c50} : >66-93 et 47-89%, en excluant deux éléments apparemment lessivés du substrat filtrant, le Mo et le Sr), les hydrocarbures totaux (E_{c50} : 71 et 61%) et les HAP (molécules avec 2-3 cycles aromatiques : E_{c50} : 47-93 et 21-92% ; molécules avec plus de 3 cycles : 83-95 et >82-94%). Le BPA, les AP et les PAE sont mieux retenus (E_{c50} : respectivement 86, 32-93 et 23-83%) par l'accotement filtrant que par la noue filtrante (E_{c50} : 57, -49-76 et 8-74%). Pour les alkylphénols et les phtalates, on observe généralement l'efficacité de traitement la plus faible pour les composés les plus présents dans la phase dissoute (NP₁EC, DMP, DiBP, DBP).

Paramètre	VFS			BFS		
	$f_{<ref}$ (%)	E_{CT} (%)	E_{CD} (%)	$f_{<ref}$ (%)	E_{CT} (%)	E_{CD} (%)
MES*	83	94 (82, 98)*	-	80	92 (11, 95)*	-
As ^{ΔΔ}	46	68 (53, 87)*	-47 (-239, 52)	0	20 (-29, 55)**	-169 (-392, 6)**
Cd ^{○○○○}	100	>70 (>10, >82)*	-	100	>47 (>10, 79)*	-
Cr ^{ΔΔ}	100	86 (75, 96)*	-26 (-160, 41)	100	80 (9, 89)*	-97 (-280, 2)
Cu ^{ΔΔ}	0	77 (64, 92)*	-8 (-206, 42)	0	76 (19, 93)*	21 (-7, 46)
Ni ^{○○}	93	82 (41, 93)*	-10 (-209, 45)	100	71 (17, 91)*	-20 (-104, 46)
Pb ^{○○}	87	93 (81, 97)*	-22 (-193, 61)	100	89 (12, 97)*	12 (-155, 63)
Zn ^{ΔΔ}	7	90 (82, 96)*	35 (-94, 51)	23	89 (25, 98)*	57 (-74, 76)
HT	-	71 (>15, 91)*	-	-	68 (>9, 81)*	-
Σ ₁₆ HAP	-	91 (81, 95)*	-	-	91 (81, 95)*	-
Naphtalène [°]	100	74 (>37, 91)*	19 (4, 33)	100	>77(-1912,87)	-20 (-4120, 33)
Anthracène [°]	100	88 (59, 92)*	-	92	86 (38, 91)*	-
Phenanthrène	-	93 (78, 96)*	>47 (>9,>90)*	-	92 (30, 96)*	>44 (-11, >90)*
Fluoranthène [°]	0	95 (86, 97)*	>33 (>23,48)*	0	94 (48, 97)*	>21 (-292,>47)
Pyrène	-	95 (91, 98)*	>47 (27, >57)*	-	94 (42, 95)*	25 (-126, 55)
Benzo[a]pyrène [°]	0	90 (82, 93)*	-	0	90 (46, 95)*	-
Bisphénol-A	-	86 (69, 98)*	57 (-57, 79)**	-	79 (49, 93)*	43 (-452, 75)
Octylphénol [°]	80	93 (51, 97)*	74 (23, 94)*	67	76 (-109, 94)	59 (-81, 83)**
Nonylphénol [°]	27	65 (14, 92)*	56 (-219, 72)	25	56 (-219, 72)	4 (-113, 40)
DEHP [°]	0	69 (-191, 79)	8 (-132, 36)	0	8 (-132, 36)	-202 (-754, 62)

Tableau 1 : Présentation partielle des indicateurs de la performance épuratoire de l'accotement filtrant (VFS) et de la noue filtrante (BFS). $f_{<ref}$ est la fréquence de non-dépassement de la valeur de référence en sortie de l'ouvrage, E_{CT} et E_{CD} sont l'abattement de concentration en termes, respectivement, de concentrations totales et de concentrations dissoutes. Les valeurs indiquées correspondent à : médiane (min, max). Les valeurs de référence correspondent * à une limite supérieure définissant le bon état d'une eau de surface en termes de concentration totale (Cr), ^{ΔΔ} à une norme de qualité environnementale en moyenne annuelle (NQE-MA) française, applicable à la Cd, ° à une NQE-MA applicable à la Cr, ^{○○} à une NQE-MA applicable à la Cd, ^{○○○○} pour de l'eau de dureté classe 4 (MEEM, 2016). Les abattements de concentration significatifs sont représentés par *(P<0.01) ou **(P<0.05). – Le contaminant n'a jamais été quantifié dans la phase dissoute.

En considérant la variabilité inter-événementielle, les concentrations totales de polluants sont réduites de façon significative (test de Wilcoxon apparié entre les distributions en entrée et en sortie) dans l'accotement filtrant pour la plupart des événements pluvieux, avec pour seules exceptions le Sr, le DiBP et le DEHP (phtalates). L'efficacité de traitement (E_c = réduction de la concentration moyenne événementielle) est plus variable pour la noue filtrante, avec des augmentations de concentrations observées pour certains polluants (HAP légers, phtalates, alkylphénols) immédiatement après sa mise en

œuvre. De ce fait, les concentrations totales d'un plus grand nombre de polluants (le Ba, le Sr, quatre HAP légers, tous les alkylphénols, trois phtalates) ne sont pas réduites de façon significative.

Dans les deux ouvrages, trois événements hivernaux sont associés à une rétention de particules dégradée. Cette période correspond ainsi aux pires E_c pour les polluants fortement particulaires (le Pb, le Zn, le Cu, les HAP lourds) bien retenus dans le reste du suivi.

La rétention est nettement moins efficace pour la phase dissoute des polluants étudiés que pour les concentrations totales. En fait, pour un grand nombre de polluants (des ETM, des phtalates, des HAP légers et des alkylphénols) les concentrations dissoutes en sortie de l'ouvrage sont fréquemment plus élevées que celles en entrée. Même parmi les polluants dont les concentrations dissoutes en sortie sont améliorées par rapport à celles dans les eaux de voirie, les E_c sont généralement plus faibles que celles observées pour les concentrations totales, avec des E_{c50} maximales de 35 et 57% pour les ETM respectivement dans le VFS et le BFS, de >47 et >44% pour les HAP, de 79 et 43% pour le BPA, de 74 et 59% pour les alkylphénols et de 8 et 21% pour les phtalates.

L'efficacité épuratoire pour la phase dissoute des polluants est également sujette à plus de variabilité inter-événementielle que celle associée aux concentrations totales. De ce fait, un nombre relativement faible de polluants sont retenus de façon significative dans la phase dissoute (Phen, Fluo, Pyr, BPA et OP dans le VFS et Phen, OP, NP₁EO et NP₂EO dans le BFS). Là encore, pour certains polluants, les pires performances observées dans la noue filtrante ont lieu dans la période suivant immédiatement sa mise en place.

Parmi les sept ETM suivis ayant une norme de qualité environnementale (NQE) européenne ou française, le Cd, le Cr, le Ni et le Pb sont généralement présentes à des niveaux inférieures à la norme en sortie d'ouvrage ; cependant, on note que ceci n'est pas une grande victoire puisque ces contaminants ne dépassent pas la NQE à RR non plus. Les concentrations en As, en Cu et en Zn dépassent généralement la NQE en sortie d'ouvrage ; le dépassement de la NQE pour As est même plus fréquent en sortie d'ouvrage qu'en entrée. On note ainsi que les ouvrages de biofiltration étudiés, dont la performance vis-à-vis de la fraction dissoute des ETM est faible, apportent peu de bénéfices en termes de la conformité réglementaire de la qualité de l'eau traitée par rapport à celle des eaux brutes pour ces éléments.

Les NQE des micropolluants organiques considérés dans la Directive Cadre sur l'Eau de l'Union Européenne portent sur les concentrations totales. Les HAP légers (naphtalène et anthracène) sont généralement inférieurs à la NQE en sortie d'ouvrage ; alors que les HAP lourds (fluoranthène et benzo(a)pyrène) la dépassent systématiquement malgré une réduction importante de concentrations de ces composées. Alors que l'OP et le NP excèdent systématiquement la NQE en RR, ils sont plus souvent inférieurs en sortie. Le DEHP dépasse toujours la NQE en entrée et en sortie d'ouvrage.

1.2. Abatement du flux polluant à l'échelle annuelle

Le bilan de masse, calculé dans le cas de la noue filtrante pour une sélection de polluants, montrent que l'abattement du flux polluant calculées (de 30-60%, Tableau 2) sont généralement plus faibles que les E_{c50} observées (de 56-94% pour les mêmes polluants). Seul le DEHP avec une réduction de flux polluants de 21 % et une réduction médiane de concentration de 9% échappe à cette tendance. Cela s'explique essentiellement par une faible proportion d'eau abattue par évapotranspiration dans le système (20%) par rapport à une proportion surversée relativement élevée (38%), surverse pour laquelle la qualité de l'eau a été supposée similaire à celle à l'entrée. De ce fait, une proportion relativement importante de la masse de chaque polluant entrée dans l'ouvrage est surversée (27-35%, en fonction des polluants), ce qui indique que la performance de l'ouvrage pourrait être améliorée en augmentant l'espace de stockage à la surface ou le débit de traitement (en agrandissant la surface du filtre).

Dans la noue filtrante étudiée, qui est étanche, drainé et dont la surface est égale à 4.5% de la surface du bassin versant d'apport, l'amélioration de la qualité de l'eau drainée est responsable de la majorité de la réduction du flux polluant pour tous les contaminants étudiés, l'abattement volumique ayant un rôle limité, à l'exception du DEHP dont la réduction de concentration est très faible. L'abattement volumique devient un levier important pour réduire le flux polluant lorsque les concentrations à la sortie sont peu améliorées par rapport à celles des eaux non-traitées, soit parce que la concentration du polluant considéré est difficile à abattre (fractions dissoutes, polluants hydrophiles, polluants pouvant être émis par les matériaux de construction de l'ouvrage), soit parce qu'elle est déjà relativement faible en entrée (cas des surfaces urbaines générant des niveaux de contamination plus faibles).

Paramètre	E_{int} (%)	$M_{sortie,surverse}/M_{entree,RR}$ (%)	$M_{sortie,drain}/M_{entree,RR}$ (%)
Volume	21 (15, 24)	35 (31, 37)	45 (41, 52)
MES	67 (56, 74)	20 (13, 34)	13 (9, 16)
Cu	63 (54, 69)	23 (17, 33)	14 (10, 20)
Zn	65 (51, 73)	21 (15, 34)	13 (8, 24)
Pyrène	72 (60, 79)	21 (14, 34)	7 (4, 13)
Phénanthrène	70 (58, 77)	23 (16, 37)	7 (4, 11)
Bisphénol-A	45 (38, 51)	29 (23, 36)	26 (21, 33)
Octylphénol	53 (40, 62)	26 (20, 34)	20 (14, 33)
Nonylphénol	36 (15, 48)	28 (22, 36)	35 (24, 57)
DEHP	27 (3, 44)	21 (13, 38)	51 (33, 77)

Tableau 2 : L'abattement du volume d'eau et du flux polluant (E_{int}), proportion du volume et du flux polluant surversé ($M_{sortie,surverse}/M_{entree,RR}$), proportion du volume et du flux polluant sorti du drain ($M_{sortie,drain}/M_{entree,RR}$), médiane et intervalle de confiance à 95%.

1.3. Cumul de la masse polluante dans le sol

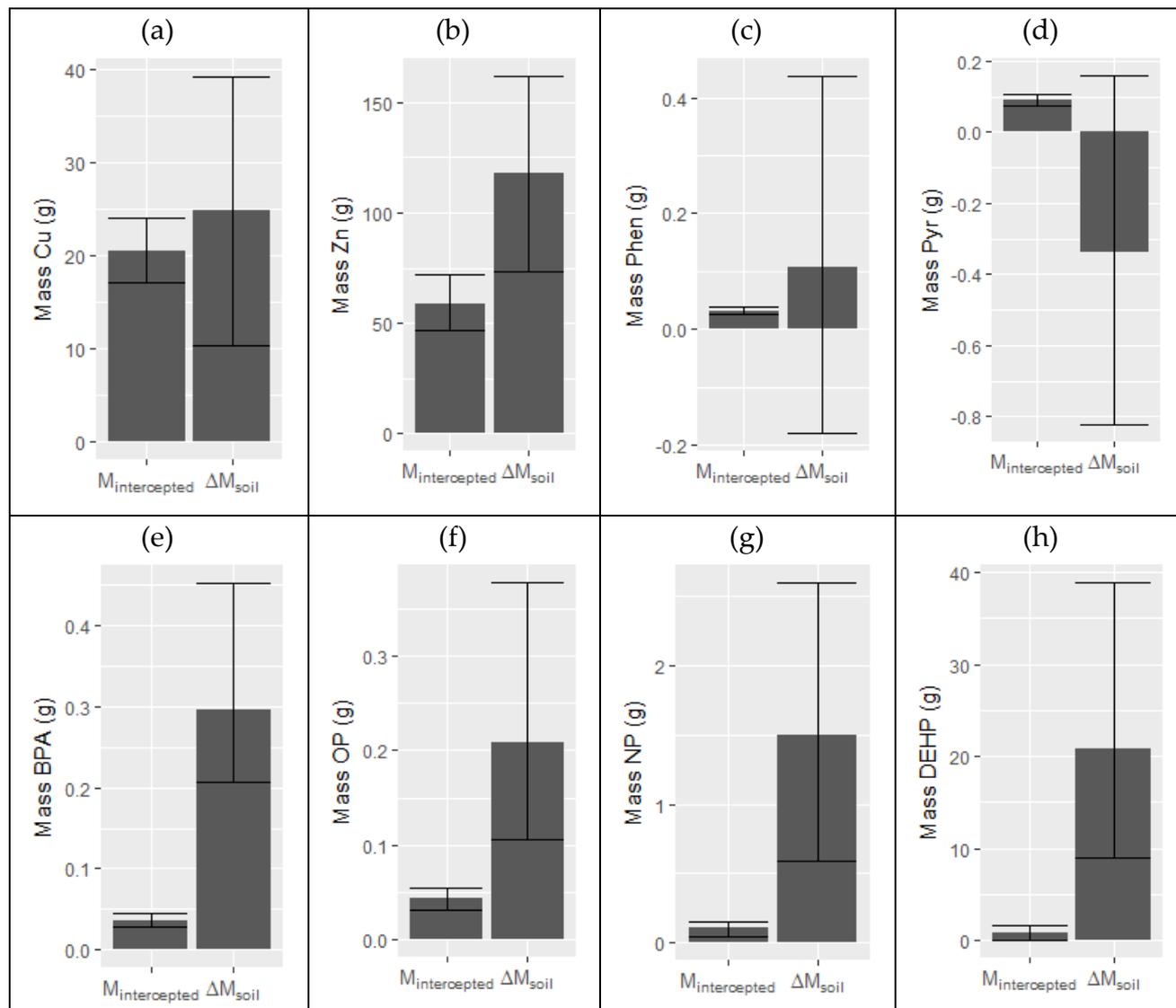


Figure 3 (a-h) : La masse interceptée et la masse cumulée dans le sol for (a) copper, (b) zinc, (c) phénanthrène, (d) pyrène, (e) bisphénol-A (BPA), (f) octylphénol (OP), (g) nonylphénol (NP) and (h) bis(2-ethylhexyl) phtalate (DEHP). Les barres représentent des médianes, alors que les barres d'erreur représentent l'intervalle de confiance à 95%.

On observe de grandes incertitudes relatives liées à l'estimation du cumul de masse de polluant dans le sol ($\Delta M_{sol} = M_{sol,fin} - M_{sol,init}$) pour tous les polluants étudiés (Figure 3). Ceci s'explique par les nombreuses sources d'incertitudes dans l'estimation de $M_{sol,fin}$ et de $M_{sol,init}$ et de la propagation d'incertitudes de ces termes à ΔM_{sol} . Puisque ΔM_{sol} est la différence entre $M_{sol,fin}$ et de $M_{sol,init}$, son incertitude absolue est liée aux incertitudes absolues de ces termes ; lorsque l'ampleur de ΔM_{sol} est petite par rapport à l'ampleur de $M_{sol,fin}$ et de $M_{sol,init}$, son incertitude relative devient donc très grande. On observe, notamment, des incertitudes relatives supérieures à 100% pour phénanthrène et pyrène. Une durée de suivi plus long permettrait à diminuer l'incertitude associée à ΔM_{sol} .

La masse cumulée dans le sol excède de façon significative la masse interceptée ($M_{interceptée} = M_{entrée,RR} - M_{sortie,surverse} - M_{sortie,over}$) pour le Zn, le bisphénol-A, l'octylphénol, le nonylphénol et le DEHP. Cela indique la présence de sources non-comptabilisés. Pour le zinc, il est probable que cette source soit la glissière en acier galvanisé séparant l'accotement filtrant et la noue filtrante de la route. Les matériaux synthétiques employés pour la construction de la noue filtrant sont les sources les plus probables du bisphénol-A, de l'octylphénol, du nonylphénol et du DEHP.

2. Processus de transport et de rétention en jeu

A travers une caractérisation de la composition des MES dans les eaux de ruissellement non-traitées et dans les eaux drainées de l'accotement filtrant et de la noue filtrante en périodes de fonctionnement normal et dégradé, une meilleure compréhension des processus de filtration et d'érosion de particules ayant lieu dans les biofiltres a pu être développée.

En période de fonctionnement normal, les MES présentes en faible concentration dans les eaux de drainage de la noue filtrante correspondent à un mélange entre des MES issues de la route et des particules fines du substrat de la noue filtrante, indiquant une érosion de celles-ci. Cet effet est moins net au niveau de l'accotement filtrant, indiquant que ce lessivage de particules fines serait plus caractéristique d'un ouvrage jeune comme la noue filtrante (âgée de 2 mois à 16 mois au cours de l'étude), qu'un ouvrage plus mature comme l'accotement (âgé de 3.5 ans à 5 ans au cours de l'étude) où le réseau racinaire est beaucoup plus dense.

Pendant la période de fonctionnement dégradé (période hivernale lorsque du sel de déglacage a été appliqué à la surface de la route), la nature des MES des eaux de drainage de l'accotement filtrant et de la noue filtrante se rapproche de celles des eaux brutes de voirie, ce qui indique que le fonctionnement dégradé est dû à une filtration moins efficace des particules issues de la route plutôt qu'à la déstabilisation des particules du substrat. Des écoulements préférentiels sont probables dans la noue filtrante pendant cette période, ce qui explique en partie cette efficacité diminuée. De plus, on observe que la granulométrie des particules issues de la route est plus fine pendant cette période hivernale. La composition chimique des MES des eaux de ruissellement est en revanche stable entre les deux périodes, ce qui indique que les sources de particules sont les mêmes. La plus faible granulométrie observée (mais non expliquée) durant la période hivernale (Figure 4) peut également contribuer à la dégradation des performances de l'ouvrage, la filtration des particules très fines ($<10\mu\text{m}$) étant moins efficace que celle des particules de diamètre supérieur. Ces particules étant plus petites que la taille des pores du substrat dans lesquels circule l'eau gravitaire, leur filtration repose sur l'attachement au substrat et non pas sur le criblage.

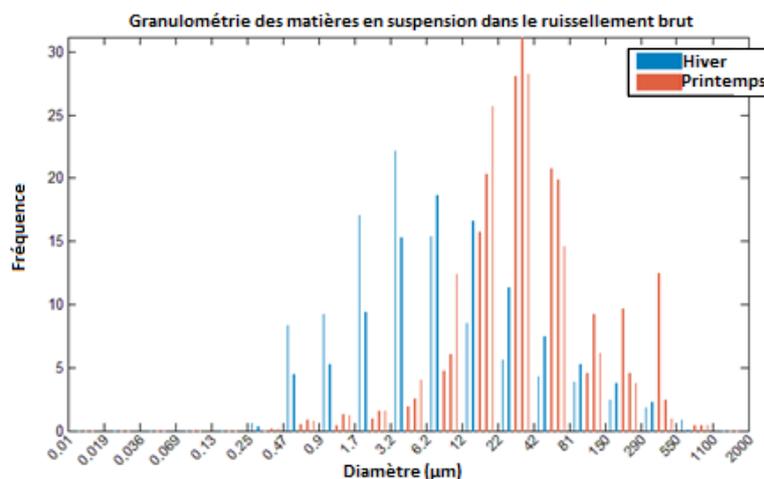


Figure 4 : Granulométrie des matières en suspension par volume dans le ruissellement brut pendant la période de fonctionnement dégradé en hiver et pendant une période de fonctionnement normal au printemps

Pour mieux comprendre le comportement des polluants dissous dans les biofiltres étudiés, les concentrations dissoutes qui seraient attendues du fait d'un équilibre avec la concentration du substrat sont comparées aux concentrations réellement observées pour une sélection de polluants (Figure 5). Pour le cuivre, les concentrations mesurées en phase dissoute sont nettement supérieures à celles prévues et l'efficacité de rétention de la fraction dissoute semble diminuer avec l'âge du système. Pour le zinc, les concentrations dissoutes mesurées et attendues sont du même ordre de grandeur mais sont plus variables

dans le cas du suivi. Les temps de séjour estimés dans l'ouvrage (12-72 h en fonctionnement normal) paraissant suffisants pour établir un équilibre entre le sol et l'eau, d'autres facteurs explicatifs sont à rechercher pour expliquer l'absence apparente d'équilibre avec le sol. Le cuivre semble interagir fortement avec le COD qui facilite son transport. Le zinc semble également être influencé à un moindre niveau par le COD et aussi par le NaCl. Parmi les autres facteurs non caractérisés pouvant intervenir nous citerons le transport colloïdal ou l'établissement d'un nouvel équilibre entre les particules de MES et les polluants dissous dans les eaux de drainage après leur prélèvement.

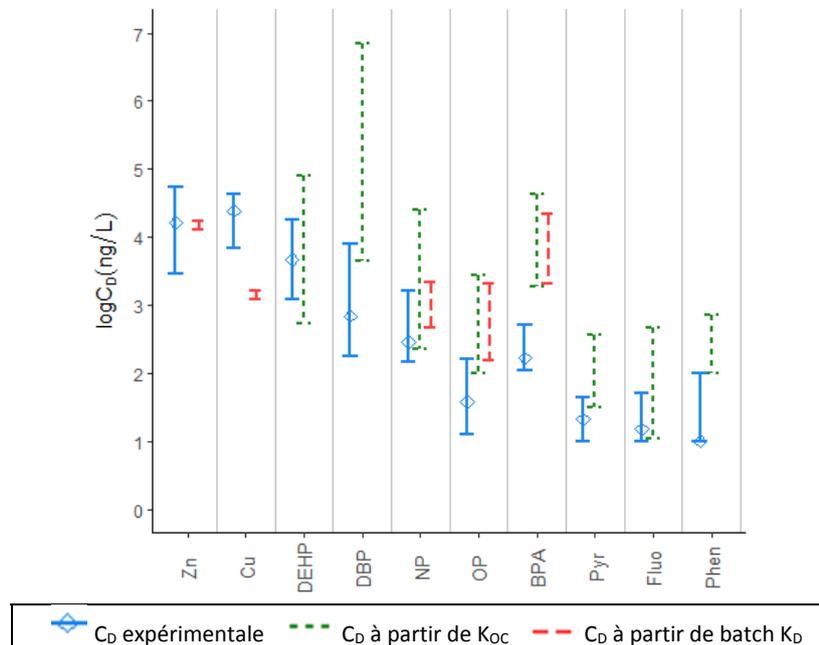


Figure 5 : Concentrations dissoutes estimées en sortie de la noue filtrante, prenant l'hypothèse d'un équilibre avec le sol selon les K_{OC} issues de la littérature scientifique et selon les K_D mesurés en batch par rapport aux valeurs expérimentaux.

Les concentrations dissoutes en micropolluants organiques sont dans l'ensemble cohérentes avec celles correspondant à l'équilibre avec le sol. Pour le DBP (phtalate), l'octylphénol, le bisphénol-A, le pyrène et le phénanthrène (HAP), les concentrations mesurées sont parfois plus faibles que celles prévues. Néanmoins, les réductions de concentration en micropolluants dissous sont généralement faibles dans la noue filtrante. Pour ces polluants, les teneurs dans le sol sont suffisamment élevées pour être proches de l'équilibre avec la concentration dissoute des eaux brutes sans sorption supplémentaire significative. D'après les bilans de masse cette contamination ne peut pas s'expliquer par l'apport via les eaux de ruissellements sur les 13 mois de fonctionnement. Dans le cas des HAP, elle serait due à une pollution du substrat à l'état initial. Pour les phtalates, les alkylphénols et le BPA, le sol semble avoir été fortement pollué durant les premiers mois de fonctionnement du fait d'émissions de ces polluants depuis les atériaux de construction, hypothèse confirmée par les tests de lixiviation en batch de ces matériaux (Tableau 3). L'adsorption de ces polluants sur le sol limite l'effet de ces émissions sur la qualité de l'eau à court terme mais conduit à une saturation de la capacité de sorption du substrat dès le début du fonctionnement de l'ouvrage, limitant sa capacité à traiter la pollution dissoute.

	Bêtime	Géomembrane	Drain	Tissu du drain
DEHP	12250 (3.6)	0 (0)	0 (0)	147 (0.043)
DBP	30080 (37)	0 (0)	0 (0)	2057 (2.5)
Nonylphénol	67 (0.17)	2228 (5.77)	151 (0.39)	3609 (9.35)
Octylphénol	<7 (<0.056)	15 (0.12)	<7 (<0.056)	41 (0.32)
Bisphénol-A	17 (0.061)	40 (0.14)	536 (1.9)	670 (2.4)
Pyrène	<5.3 (<0.24)	<4.9 (<0.24)	-	-
Fluoranthène	<5.3 (<0.36)	<4.9 (<0.33)	-	-
Phénanthrène	<5.3 (<0.23)	8 (0.36)	-	-

Tableau 3 : Emissions de micropolluants organiques à partir des matériaux de construction de la noue filtrante. Concentrations en ng/L, en parenthèses: ratio par rapport à la concentration dissoute médiane en RR.

CONCLUSIONS & PERSPECTIVES

Ce suivi démontre la capacité de ce type de système à réduire de façon significative les concentrations totales en micropolluants à l'échelle de l'événement pluvial. Le traitement est particulièrement efficace pour les contaminants associés majoritairement aux matières en suspension (MES), tels que le zinc, le plomb et HAP pour lesquels la réduction médiane des concentrations événementielles est supérieure à 90% dans les deux ouvrages. Pour le cuivre, le chrome, le nickel et l'octylphénol les des réductions médianes des concentrations sont bonnes, supérieures à 70%. L'efficacité est moindre et plus variable pour les autres micropolluants organiques.

Trois événements, caractérisés par une performance dégradée vis-à-vis des MES et des polluants particuliers, ont néanmoins été observés pendant la période hivernale lors de l'application du sel de déverglaçage. La comparaison de la nature des particules entre les eaux de voirie et les eaux traitées indique que ce comportement ne serait pas dû à une érosion des particules du sol mais à une mauvaise filtration de particules issues de la route. La mauvaise rétention des particules est probablement liée à l'abondance exceptionnelle de particules fines ($<10\ \mu\text{m}$) dans les eaux de voirie pendant cette période en combinaison avec la formation d'écoulements préférentiels à travers le substrat filtrant du fait de la fissuration de celui-ci.

La rétention de la phase dissoute des micropolluants est généralement moins efficace que celle de la phase particulaire ; des concentrations élevées ont notamment été observées pour certains micropolluants dissous (bisphenol-A, alkylphénols, phtalates) en sortie de la noue filtrante pendant les premiers mois de fonctionnement.

Le transport des éléments traces métalliques dissous semble être facilité par leur association avec le carbone organique dissous. Ces contaminants sont aussi susceptibles d'être lixivés à partir du sol contaminé ou des particules issues de la route. La rétention des micropolluants organiques dissous est limitée essentiellement par la contamination du substrat filtrant, dont l'origine est soit antérieure à son installation dans le biofiltre (cas des HAP), soit liée à des émissions de polluants depuis les matériaux de construction (cas probable pour BPA, OP, NP, DEHP).

Une estimation du bilan de masse annuel de certains polluants montre que l'abattement du flux polluant annuel est plus faible que la réduction médiane des concentrations observée à l'échelle événementielle, du fait d'une surverse fréquente de l'ouvrage. Il a également mis en évidence l'ampleur des émissions de certains micropolluants organiques depuis les matériaux de construction de l'ouvrage, qui dépassent largement le flux polluant intercepté au cours de la première année.

Ces travaux démontrent l'intérêt des systèmes de biofiltration pour la gestion du flux polluant associé aux eaux de voirie mais aussi la nécessité de produire et diffuser un guide pour encadrer la conception et la maintenance de ces ouvrages.

Il ouvre également des perspectives de recherche. Il serait notamment intéressant d'approfondir la caractérisation des particules dans les eaux brutes afin de mieux comprendre les effets saisonnières sur la granulométrie et donc l'efficacité de rétention de celles-ci. Une meilleure compréhension de la spéciation chimique des ETM dissous dans les eaux de ruissellement permettrait à mieux comprendre les raisons de la faible efficacité de rétention de celles-ci. De plus, il souligne l'importance d'une réflexion par rapport à une optimisation du fonctionnement hydrologique des ouvrages de biofiltration (sujet abordé dans la thèse de Tala Kanso, actuellement en cours). Enfin, il met en avant l'intérêt d'un observatoire pérenne d'un système de biofiltration, qui serait dédié au suivi sur le long terme, conçu à cet effet et comporterait une instrumentation lourde. Un observatoire de ce type permettrait à mieux caractériser les effets saisonniers et de vieillissement associés à la performance des ouvrages de biofiltration.

VALORISATION

Thèse

K. Flanagan. Evaluation de la rétention et du devenir d'un panel diversifié de micropolluants dans un ouvrage de biofiltration des eaux de ruissellement de voirie. Thèse de doctorat, Université Paris-Est, soutenu le 6 juillet 2018. 356 pages.

Publications dans des revues à comité de lecture

- K. Flanagan, P. Branchu, D. Ramier, M.-C. Gromaire, 2017. *Evaluation of the relative roles of a vegetative filter strip and a biofiltration swale in a treatment train for road runoff*. **Water Science and Technology** 75, 987-997.
- K. Flanagan, D. Tedoldi, P. Branchu, M.-C. Gromaire, 2017. *Caractérisation du fonctionnement d'un ouvrage de gestion à la source du ruissellement de voirie: approche par modélisation hydrologique et par cartographie de la contamination du sol*. **La Houille Blanche** 3, 5-13.
- K. Flanagan, P. Branchu, M.-C. Gromaire, 2017. *Les ouvrages de biorétention: synthèse des guides internationaux de conception et de maintenance des filtres plantés pour traitement à la source des eaux de ruissellement urbaines*, **Techniques Sciences et Méthodes** 12, 89-124.
- K. Flanagan, P. Branchu, L. Boudahmane, E. Caupos, D. Demare, S. Deshayes, P. Dubois, L. Meffray, C. Partibane, M. Saad, M.-C. Gromaire, 2018. *Field performance of two biofiltration systems treating micropollutants from road runoff*, **Water Research** 145, 562-578.
- K. Flanagan, P. Branchu, L. Boudahmane, E. Caupos, D. Demare, S. Deshayes, P. Dubois, L. Meffray, C. Partibane, M. Saad, M.-C. Gromaire, 2019. *Retention and transport processes of particulate and dissolved micropollutants in stormwater biofilters treating road runoff*, **Science of the Total Environment** 656, 1178-1190.
- K. Flanagan, P. Branchu, P. Branchu, L. Boudahmane, E. Caupos, D. Demare, S. Deshayes, P. Dubois, M. Kajeiou, L. Meffray, C. Partibane, M. Saad, M. Vitart de Abreu Lima, M.-C. Gromaire, 2019. *Stochastic method for evaluating the removal, fate and associated uncertainties of micropollutants in stormwater biofilters at an annual scale*, **Water** 11(3).

CONTACTS

Marie-Christine GROMAIRE, marie-christine.gromaire@enpc.fr

Philippe BRANCHU, philippe.branchu@cerema.fr

David RAMIER, david.ramier@cerema.fr

Kelsey FLANAGAN, kelsey.flanagan@enpc.fr