

# Infiltration de l'eau pluviale

## Influence des alternances de dessiccation/réhumectation sur le transfert du zinc en colonnes de sol

Jérôme CROSNIER  
CETE de Lyon

Cécile DELOLME  
École nationale des travaux publics de l'Etat

### RÉSUMÉ

Le développement des ouvrages d'infiltration d'eaux pluviales conduit à s'interroger plus particulièrement sur l'évolution dans le temps des caractéristiques du sol des bassins d'infiltration sous l'action de propriétés intrinsèques ou de facteurs environnementaux ainsi que des conséquences sur le transfert de la pollution véhiculée par l'eau pluviale.

- Grâce à des expérimentations en colonnes, ce travail a pour objectif d'étudier l'effet des alternances de dessiccation/réhumectation sur la mobilité du zinc (20 mg Zn/l) dans la couche superficielle de sols provenant de trois sites présentant des caractéristiques physico-chimiques contrastées.
- L'exposition préalable des échantillons à des alternances de dessiccation/réhumectation n'influe pas significativement sur le transfert du zinc dans le sol alcalin à texture sableuse mais, par contre, joue pour les deux autres sols un rôle important, qui dépend avant tout de la nature et de la quantité tant de la fraction argileuse que de la matière organique.

DOMAINE : Environnement et génie urbain.

### ABSTRACT

**STORMWATER INFILTRATION :  
INFLUENCE OF DRYING-REWETTING CYCLES ON ZINC  
TRANSFER IN SOIL COLUMNS**

*The development of stormwater infiltration devices has led to investigate both the temporal evolution of infiltration basin soil characteristics-considering the soil intrinsic properties and the environmental factors- and the consequences on the transfer of the stormwater pollution.*

*The aim of this research work, based on column experiments, is to study the effect of drying-rewetting cycles on the mobility of zinc (20 mg Zn/l) in the surface layer of soils originating from three sites displaying contrasting physico-chemical characteristics.*

*For the samples which were previously submitted to a drying rewetting cycle, no significant influence on zinc mobility was detected in experiments carried out with the calcareous sandy soil. However, important differences were observed for the other two soils, depending on the quality and the quantity of both the clay fraction and the organic matter.*

*FIELD : Environment and urban engineering.*

## Introduction : l'infiltration des eaux pluviales urbaines

Il est apparu que l'introduction volontaire ou accidentelle de polluants dans l'environnement constitue un risque sanitaire et environnemental majeur d'une intensité difficilement mesurable, mais croissante avec le développement de l'urbanisation, de l'industrialisation, des pratiques agricoles et des moyens de transport. Ainsi, les rejets urbains par temps de pluie véhiculent une pollution accumulée d'abord dans l'atmosphère, puis sur les surfaces de ruissellement et, enfin, dans les réseaux d'assainissement (Valiron et Tabuchi, 1992). Les eaux pluviales urbaines présentent donc une composition chimique très variable qui dépend des caractéristiques du bassin versant et de l'événement pluvieux. Elles contiennent de nombreux polluants à des concentrations parfois élevées et les métaux lourds en représentent une partie non négligeable. Les métaux lourds ne sont pas biodégradables et sont, pour certains, hautement toxiques au-delà d'une certaine concentration. Ils possèdent la capacité de se concentrer le long de la chaîne alimentaire et de s'accumuler dans certains organes du corps humain (Förstner et Wittman, 1979 ; Bourrelier et Berthelin, 1998). Les métaux lourds les plus communément rencontrés sont donnés dans le tableau I (Makepeace et al., 1995).

Ces métaux sont véhiculés sous forme dissoute ou particulaire dans des proportions qui dépendent du pH et de la quantité de matières en suspension (Bachoc et al., 1992). Les données disponibles concernent les mesures de métaux totaux dissous et particulaires. Elles ne donnent néanmoins pas d'informations sur la « mobilité » de ces métaux lourds.

**TABLEAU I**  
**Concentration en métaux lourds (dissous) dans les eaux pluviales**

<b>Métal</b>	<b>Gamme de concentrations</b>
Plomb	0,57 à 26 000 µg/l
Zinc	0,7 à 22 000 µg/l
Cadmium	0,05 à 13 750 µg/l
Cuivre	0,06 à 1 410 µg/l

Jusqu’alors, le problème de l’évacuation de l’eau pluviale ne se posait que d’un point de vue quantitatif grâce à la mise en place de réseaux unitaires (eaux usées + eaux pluviales) ou séparatifs. Néanmoins, les limites de ces techniques classiques (en particulier, la concentration de la pollution) sont très vite apparues et des techniques alternatives d’évacuation de l’eau pluviale ont été proposées. Parmi celles-ci, on trouve notamment les puits et bassins d’infiltration. Leur capacité de rétention de la pollution et tous les phénomènes susceptibles d’intervenir au cours de l’infiltration ne sont pas identifiés.

La zone superficielle du sol constitue le réceptacle des eaux pluviales dans les bassins d’infiltration. Cette zone suscite un intérêt grandissant du fait de ses caractéristiques spécifiques dues, en particulier, aux fluctuations environnementales qu’elle subit : c’est une zone bien aérée qui connaît notamment de grandes variations de teneur en eau (en fonction des conditions climatiques).

## **Effets des alternances d’humectation-dessiccation sur les caractéristiques du sol : approche théorique**

Les variations climatiques annuelles soumettent souvent une région donnée à de fortes variations de température et de pluviométrie. Ce phénomène entraîne une exposition de la couche superficielle des sols à des alternances de dessiccation et de réhumidification. Ces variations de teneur en eau sont susceptibles de modifier les caractéristiques physico-chimiques des sols. Peu d’études s’attachent à évaluer les impacts des stress hydriques sur tous les compartiments du sol. Il en résulte que l’on sait peu de choses sur les implications éventuelles des alternances de périodes sèches et de périodes humides sur les transferts de polluants dans les sols. L’eau joue un rôle majeur sur les propriétés physiques des sols. Ainsi, quand ils sont soumis à de fortes alternances de dessiccation et d’humectation, ils sont le siège d’une forte activité biologique et apparaissent mieux structurés (Tessier, 1994).

### **Changements structuraux**

La stabilité structurale est une propriété importante car elle décrit la capacité d’un sol à conserver ses arrangements de solides et de vides quand il est exposé à différentes perturbations.

### **Changements dans l’organisation du système poreux**

Des variations de l’état hydrique (phases d’humectation et de dessiccation) sont susceptibles de provoquer des changements dans l’organisation du système poreux donc dans la structure. Pour caractériser de telles modifications, de nombreux travaux ont été initiés. Ceux-ci portent en particulier sur la mesure de la porosité, de la perméabilité et de la teneur en eau (Söltner, 1990) et, plus récemment, sur la surface spécifique (Bigorre et al., 2000) ou sur la localisation de l’eau notamment dans les argiles (Prost et al., 1998). De Crécy (1975), cité par Bonneau et al. (Bonneau et Souchier, 1979), présente deux phénomènes intervenant dans la phase de dessiccation : 1 – un processus irréversible de contraction du matériel plastique déformé par la contrainte, 2 – un processus réversible de compression. Les cycles de dessiccation-humectation contribuent aussi à l’évolution de l’organisation du sol. Si le niveau et la durée des dessiccations intervenant dans les cycles annuels ou pluriannuels sont maintenus, les conditions sont réunies pour que la géométrie du sol, à ses différents niveaux d’organisation, reste en équilibre avec le climat et la végétation (Tessier, 1994).

## **Phénomène de fissuration**

Le sol n'est pas un milieu rigide : la réduction de la teneur en eau entraîne en général la formation de fissures. Ce sont les sols les plus fins, c'est-à-dire les plus riches en argiles, qui se rétractent le plus. L'apparition de fissures est de la première importance vis-à-vis de l'écoulement d'eau en profondeur ; des chemins préférentiels peuvent en effet apparaître en fin de période sèche et l'eau peut atteindre rapidement la partie profonde du sol. Au cours de l'humectation, les fissures se referment progressivement, de sorte que les propriétés hydrauliques du milieu changent au cours du temps (Tessier, 1994).

## **Stabilité structurale des agrégats à l'eau**

Caron et *al.*, (1992 ; 1996) ont mis en évidence une augmentation de la stabilité structurale par le séchage qui rend les agrégats de surface du sol moins vulnérables à l'éclatement sous l'effet des gouttes de pluie et qui limite la dispersion des argiles. Bresson et Moran (1995, cités par Lanyon et Cass, 1998), ont décrit les mécanismes susceptibles de modifier la qualité structurale d'un sol soumis à un cycle simple d'humectation et de dessiccation comme relevant d'un processus de coalescence et d'agglomération d'agrégats initialement déliés en unités structurales plus grosses et plus stables. La coalescence correspond alors à la « soudure » d'agrégats en unités structurales plus fortes par déformation plastique tandis que l'agglomération implique une réorientation des particules argileuses lorsque le matériau sèche.

## **Impact sur les propriétés chimiques des sols : altération de la composition de la solution du sol**

La composition élémentaire de la solution des sols est susceptible d'être affectée par des cycles d'humectation et de dessiccation : ainsi, des changements dans les concentrations en nutriments solubles, dans la solubilité de la matière organique et dans le potentiel d'oxydoréduction peuvent être observés (Walworth, 1992).

## **Évolution du pH, des cations échangeables et de la capacité d'échange de cations (CEC)**

Le séchage entraîne généralement une acidification. Sous l'effet de la dessiccation, une relation positive et significative est mise en évidence entre les changements de pH, le carbone organique dissous et l'aluminium échangeable : la concentration en COD (carbone organique dissous) est plus importante pour les échantillons secs que pour les échantillons humides. Dans l'eau, la décroissance du pH du sol est essentiellement associée à l'effet d'acidification et d'une augmentation de la solubilité de la matière organique après séchage (Courchesne et *al.*, 1995).

Les cations échangeables et la CEC peuvent être affectés par une phase de séchage (Walworth, 1992 ; Meyer et Arp, 1994 ; Bigorre et *al.*, 2000) : les valeurs de CEC diminuent au cours du séchage, en particulier pour les sols riches en matière organique. En effet, les effets du séchage sur la CEC semblent s'expliquer par le lessivage par l'eau, les pertes associées de matière organique et la sensibilité des minéraux du sous-sol à l'exposition à l'air.

## **Influence des alternances d'humectation-dessiccation sur la dynamique de la matière organique**

Les alternances d'humectation-dessiccation n'exercent pas nécessairement une action stabilisatrice sur l'évolution des fractions organiques et peuvent, au contraire, accélérer la décomposition et la minéralisation des composés humiques les plus labiles (matière organique fraîche, biomasse microbienne et humine biodégradables) (Mitchell et Baldwin, 1998). C'est seulement sur certains composés humiques ayant subi un début de stabilisation par voie chimique que cette action stabilisatrice est maximale (Duchaufour, 1983).

## **Influence des alternances d'humectation-dessiccation sur les sols carbonatés**

Dans les sols carbonatés, le calcaire actif est soumis à des phases saisonnières de dissolution et de réciprocité ; l'équilibre final concernant la teneur en calcaire résulte de l'action réciproque de deux processus antagonistes : la carbonatation et la décarbonatation. En période humide, la dissolution l'emporte tandis que le processus de décarbonatation est plus lent en climat plus sec (Duchau-

four, 1995). Cette modification de l'équilibre est susceptible d'intervenir dans les études de transfert de métaux.

Il existe donc des effets sensibles de la dessiccation et des cycles de dessiccation/réhumectation sur les caractéristiques physiques et chimiques des sols. Néanmoins, il est difficile de prévoir avec certitude ces effets car ils interviennent à des échelles de temps et des échelles spatiales différentes. Très peu de données sont disponibles dans la littérature et elles présentent parfois des tendances contradictoires (Walworth, 1992).

## Cycles de séchage-humidification et transfert de polluants : approche expérimentale

L'objectif des travaux présentés ci-dessous est donc d'apporter des éléments de réponse à l'impact de l'exposition du sol à des variations hydriques sur le devenir des métaux. Pour cela, un dispositif expérimental de laboratoire, s'approchant d'une réalité objective de terrain, est mis en place pour rendre compte de la très grande complexité des interactions physico-chimiques entre les différents constituants du sol. Nous avons limité notre étude au zinc. C'est en effet un métal qui est à la fois un élément présent naturellement en quantité non négligeable dans les sols (10-125 mg/kg) (Kiekkens, 1990) et est susceptible d'être introduit dans ce dernier par infiltration des eaux pluviales urbaines après ruissellement (Makepeace et al., 1995).

### Caractérisation des sols étudiés

L'étude a porté sur trois sols différents présentant des caractéristiques physico-chimiques contrastées. Les échantillons de terres utilisés ont été prélevés sur trois sites distincts. Dans la suite du texte, nous utiliserons le terme sol pour décrire ces échantillons remaniés.

#### *Un sol sableux (IA)*

Il est prélevé sur le site d'un champ d'infiltration dans l'est lyonnais dans une zone de comblement miocène composé de sables consolidés peu perméables. Il présente un caractère basique, une forte teneur en carbonate et une très faible teneur en matière organique (tableau II).

#### *Un limon sablo-argileux (CSA)*

Il est prélevé sur un site qui fait partie de la plaine de la Bièvre (Isère), une terrasse glaciaire de 30 km × 5 km environ, orienté Est-Ouest : il est constitué de trois horizons mélangés d'un sol brunifié lessivé tempéré. Ce type de sols est, en outre, caractérisé par un fort lessivage de l'argile (Duchaufour, 1983).

#### *Un sol limoneux (OL)*

Il est prélevé à Thurins dans l'ouest de Lyon sur une roche mère granitique. C'est un sol sous prairie sur lequel du bois a été stocké pendant une longue période. Il est le plus riche en matière organique.

Les caractéristiques physico-chimiques des trois sols sont indiquées dans le tableau II.

Les échantillons ont été prélevés par échantillonnage aléatoire dans les vingt premiers centimètres de la surface de ces sites.

#### *Protocole expérimental*

La figure 1 présente la démarche expérimentale mise en œuvre.

## Impacts de l'exposition du sol à des cycles de séchage/réhumectation sur les caractéristiques des sols étudiés

### *Mise en place de cycles de séchage et de réhumectation*

Une alternance de périodes de séchage et d'humidification de quatre jours chacune à 30 °C a été mise en place (fig. 2). Le séchage consiste à étaler le sol en fines couches sur des plaques et à placer celles-ci dans une étuve aérée, réglée à 30 °C. Au bout de quatre jours, le sol est réhumecté de façon

**TABLEAU II**  
**Caractéristiques physico-chimiques des trois sols étudiés**

	<b>Sol sableux (IA)</b>	<b>Limon sablo-argileux (CSA)</b>	<b>Sol limoneux (OL)</b>
Sables grossiers (g/kg)	683	524	281
Sables fins (g/kg)	133	146	155
Limons grossiers (g/kg)	48	77	150
Limons fins (g/kg)	67	105	190
Argiles (g/kg)	69	148	224
pH eau	8,74	6,85	7,29
pH KCl	8,19	5,97	6,81
MO (g/kg)	4	21	28
C <sub>org</sub> (%)	0,47	1,05	3,12
Calcaire total (g/kg)	248	0	1
Calcaire actif (g/kg)	20	0	0
CEC (meq/kg)	16	69	80
Calcium échangeable (g/kg)	8,6	2,08	2,66
Potassium échangeable (g/kg)	0,03	0,184	0,67
Magnésium échangeable (g/kg)	0,048	0,13	0,252
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> (g/kg)	0,034	0,361	0,346
Porosité (%)	34	45	53
Humidité résiduelle à pF 3 (%)	6,46	18,15	22,21
Humidité résiduelle à pF 4,2 (%)	2,95	8,77	13,13
[Zn] (mg/kg sol sec)	51,5	41	136
[Cd] (mg/kg sol sec)	0,4	0,2	0,21
[Cr] (mg/kg sol sec)	13,9	23	45,67
[Cu] (mg/kg sol sec)	5,8	13	21,3
[Fe] (mg/kg sol sec)	14 540	1 740	1 540
[Ni] (mg/kg sol sec)	17,7	29,33	27,33
[Pb] (mg/kg sol sec)	1,5	14	39

à avoir 75 % de l'humidité équivalente à la capacité au champ (WHC). Il est ensuite conservé dans un sac plastique (limitant l'évaporation, mais permettant la circulation d'air) maintenu à 30 °C pendant quatre jours. L'opération est renouvelée trois fois de suite. Un témoin toujours « sec » et un témoin toujours « humide » sont mis en place parallèlement. Dans un cas, le sol est maintenu sec sur une plaque, étalé en fines couches pendant toute la durée du conditionnement ; dans l'autre, le sol est maintenu humide (75 % WHC) dans un sac plastique fermé, mais permettant là encore une circulation de l'air. Le taux d'humidité est contrôlé tout au long de l'expérience (par pesée) et de l'eau est ajoutée si nécessaire.

L'humidité résiduelle est également suivie. La stabilité des agrégats est observée un jour après le passage à la phase sèche. L'humidité résiduelle du sol est régulée avec de l'eau de nappe de l'est lyonnais ajustée à un pH de 6 (pH représentatif des eaux pluviales et caractéristique de la solution d'alimentation utilisée par la suite dans les expériences de transfert).

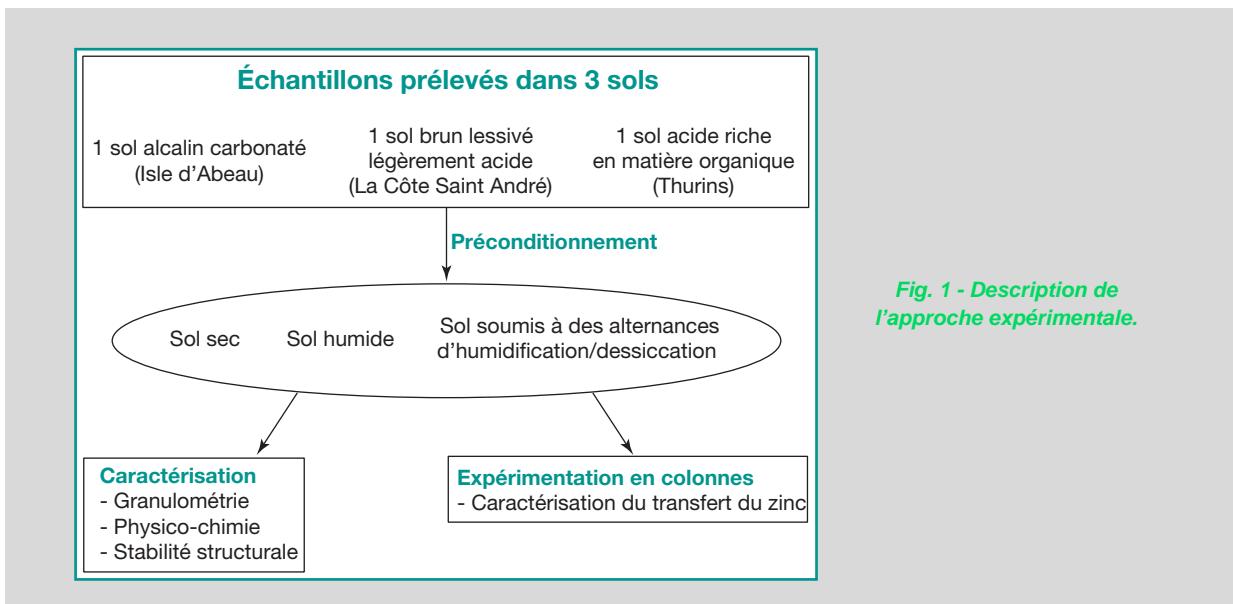


Fig. 1 - Description de l'approche expérimentale.

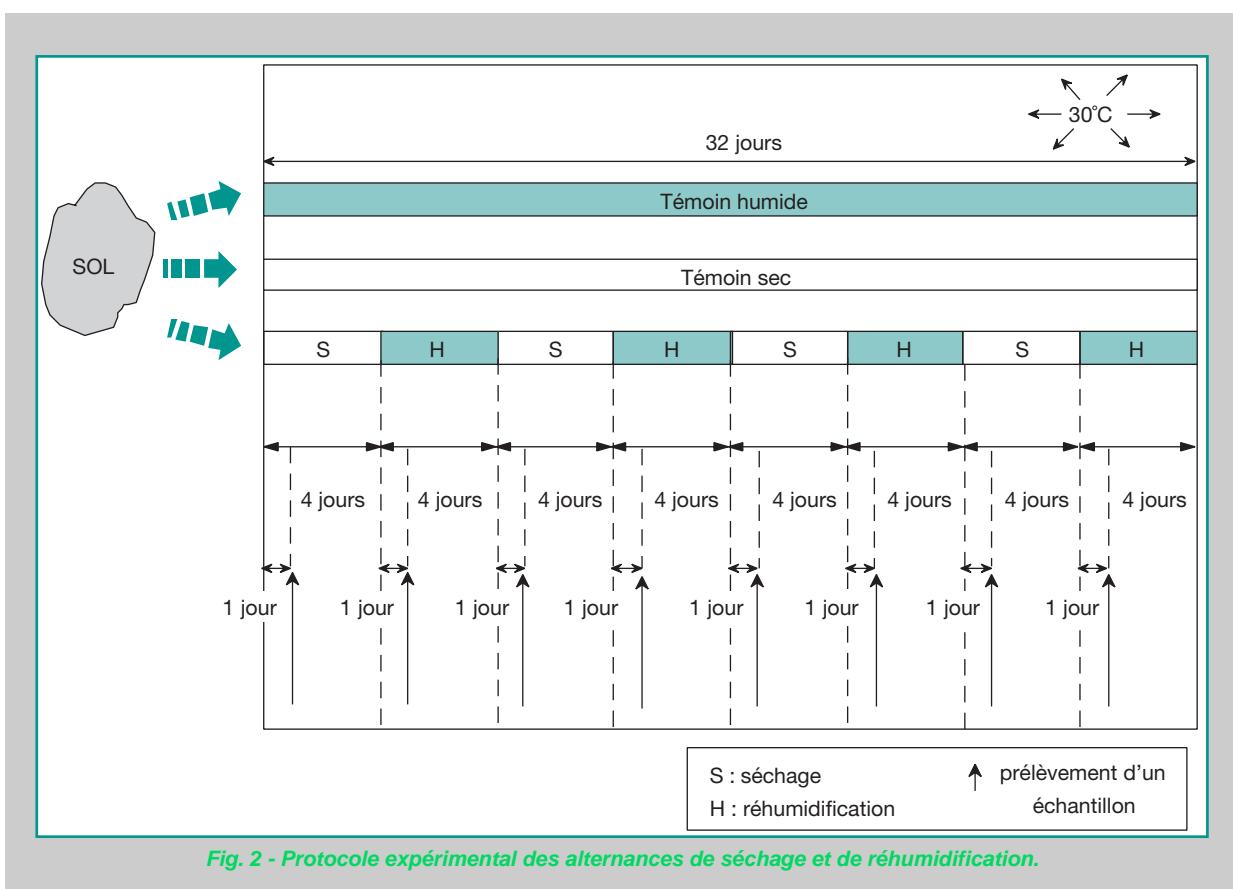


Fig. 2 - Protocole expérimental des alternances de séchage et de réhumidification.

Par la suite, nous adopterons les abréviations suivantes :

- S pour les échantillons de sol ayant subi une période de séchage de 32 jours,
- H pour les échantillons de sol maintenus humides pendant 32 jours,
- CDR pour les échantillons de sol soumis pendant 32 jours aux cycles de séchage-réhumidification décrits ci-dessus.

#### Instabilité des agrégats

Singer et al., 1992, ont établi que les cycles d'humectation-dessiccation pouvaient perturber la stabilité des agrégats du sol, en particulier en fonction de la nature de la fraction argileuse. Pour tenter de

caractériser ces éventuelles implications, nous avons mis en place un protocole expérimental permettant de définir un indice d'instabilité des agrégats  $I_s$  (Crosnier, 1999, d'après la méthode de Hénin, 1969). On soumet 10 g de sol, préalablement séchés à l'air, à l'action de la pénétration brutale de l'eau, modifiant ainsi le comportement du système échantillon-air-eau. Puis on quantifie le résultat des différents types de prétraitements à l'aide du taux maximal de particules fines mises en suspension et de la quantité d'agrégats, supérieurs à 0,2 mm, ayant résisté à l'éclatement. On sèche ensuite les agrégats à poids constant, dans une étuve à 105 °C. On note alors les poids des agrégats ( $G_3$ ). On déduit le taux d'éléments fins ( $A + L$ )<sub>max</sub> (argiles + limons) par différence ; on connaît en effet la masse initiale de l'échantillon, son taux d'humidité résiduelle et la quantité d'éléments grossiers.

L'indice d'instabilité des agrégats peut être alors calculé ainsi :

$$I_s = \frac{F}{A} = \frac{(A + L)_{\text{max}}}{G_3 - 0,9 \text{ SG}} = \frac{\text{argile + limon dans la fraction fine en \%}}{\text{agrégats en \%} - 0,9 \text{ SG}} \quad (1)$$

- 0,9 SG signifie que l'on considère que 90 % des sables grossiers de la fraction A n'entrent pas dans la constitution d'agrégats stables ;
- l'indice d'instabilité varie de 0,1 pour les terres riches en matière organique, à plus de 100 pour les terres sodiques.

### *Composition de l'eau de nappe*

Cette eau présente les caractéristiques rassemblées dans le tableau III. Sa force ionique est suffisamment élevée pour ne pas déstructurer les sols.

**TABLEAU III**  
**Composition élémentaire moyenne de l'eau de nappe utilisée**

Élément	Valeur	Unité
pH	7,7	–
Conductivité	496,2	µS/cm
pE	314,4	mV
Carbone total	54,1	mg/l
Carbone dissous	8,34	mg/l
TAC	4,41	meq/l
Cl <sup>-</sup>	18	mg/l
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	17	mg/l
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	28	mg/l
Na <sup>+</sup>	11	mg/l
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	0,14	mg/l
K <sup>+</sup>	4,18	mg/l
Mg <sup>2+</sup>	7,01	mg/l
Ca <sup>2+</sup>	70	mg/l

Le TAC (titre alcalimétrique complet) de 4,41 meq/l correspond à une concentration d'environ 220,1 mg/l de CaCO<sub>3</sub>, ce qui est caractéristique d'une eau calcaire au pouvoir tampon important. La forte concentration en ions calcium est aussi à considérer avec attention : ceux-ci sont en effet susceptibles d'entrer en compétition avec le zinc lors de réactions d'échange de cations.

### **Résultats**

Les échantillons de sol (témoin sec, témoin humide et sol soumis aux cycles de séchage/réhumidification) sont analysés en fin d'expérience et les résultats sont comparés aux résultats trouvés initialement.

### Suivi de l'humidité résiduelle du sol au cours de l'expérience

Le tableau IV présente les teneurs en eau résiduelle en fin de période sèche, pendant la période humide et pour les témoins secs et humides au bout de 32 jours. On note qu'en fin de période sèche, pour les sols soumis à des alternances d'humectation-dessiccation, et au bout de 32 jours pour le témoin sec, on se trouve en deçà de la teneur en eau correspondant au point de flétrissement permanent (pF 4,2, potentiel hydrique correspondant à une succion égale à 16 bars).

**TABLEAU IV**  
**Humidité résiduelle des sols (en %) soumis à différents « stress » hydriques**  
**(CDR : cycle de dessiccation/réhumectation)**

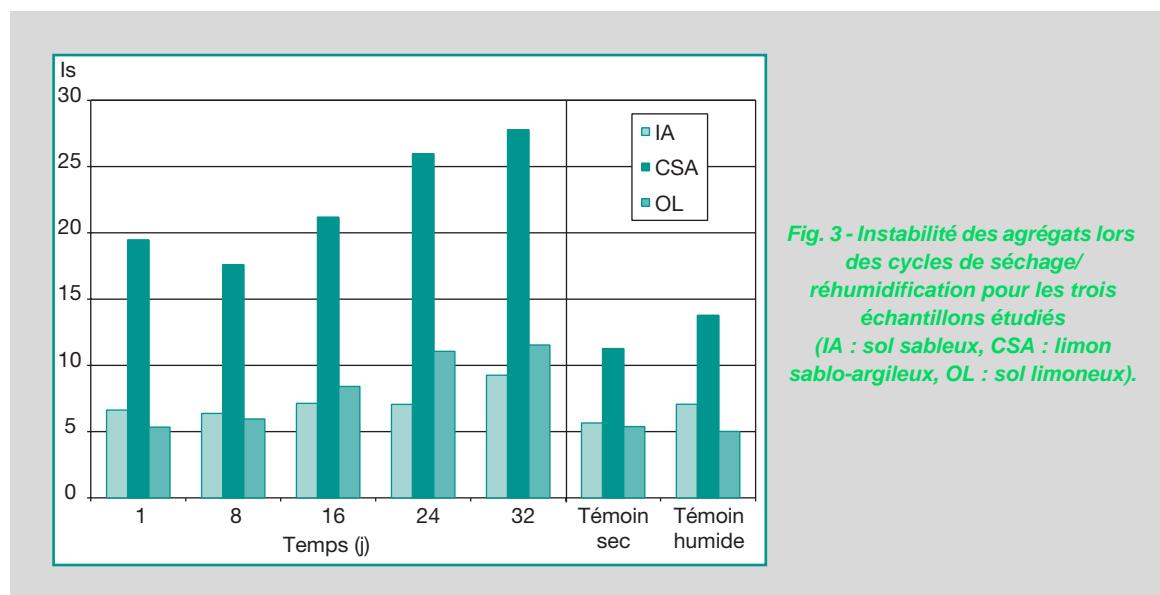
Traitement	IA	CSA	OL
CDR/phase sèche	0,50	1,82	1,80
CDR/phase humide	4,80	13,61	16,66
Témoin sec	0,20	0,91	1,60
Témoin humide	4,84	13,60	16,66
Humidité résiduelle à pF 4,2	2,95	8,77	13,13

### Instabilité des agrégats

La figure 3 présente les résultats obtenus pour le sol sableux (IA). Nous avons préalablement vérifié la faible variabilité des mesures entre réplicats (< 5 %). La texture sableuse de ce sol confère aux agrégats une bonne stabilité quel que soit le « préconditionnement » auquel ils sont soumis. On peut penser que cette caractéristique structurale n'entraînera pas de modifications importantes du fonctionnement hydraulique du sol dans les différentes configurations de « prétraitement ».

Les caractéristiques du limon sablo-argileux (CSA) induisent une faible stabilité structurale comparativement aux deux autres sols (fig. 3). L'alternance de périodes sèches et de périodes humides tend à accroître l'instabilité des agrégats de façon plus significative : leur indice obtenu à la fin des cycles est environ deux fois plus élevé que celui des témoins secs et humides.

Le sol limoneux (OL) présente également une bonne stabilité structurale du fait de sa teneur importante en éléments grossiers (cf. tableau II). Néanmoins, cette stabilité semble davantage affectée lorsque le sol est soumis à des alternances d'humectation/dessiccation. On note alors une certaine déstructuration du sol dont les agrégats deviennent moins stables en fin d'expérience. Le taux de



matière organique plus importante que dans le sol précédent peut être à l'origine de la moins grande stabilité structurale observée.

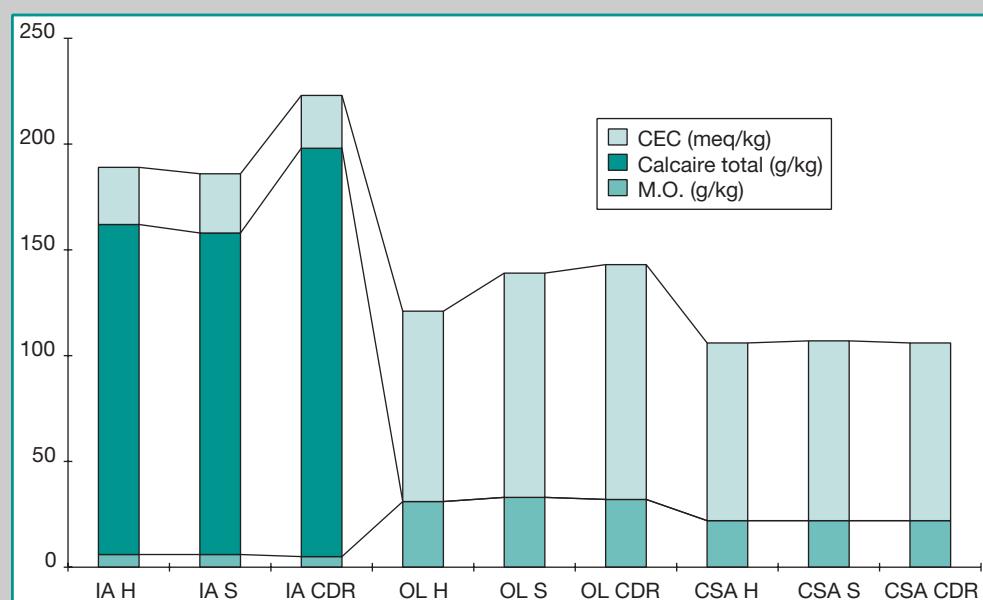
### Évolution des caractéristiques physico-chimiques des sols

L'eau de nappe utilisée au cours de ces travaux pour réhumidifier le sol lors du passage d'une période sèche à une période humide est riche en calcium et est susceptible de former des carbonates. Ce facteur peut expliquer l'augmentation de la teneur en calcaire, accompagnée de l'élévation du pH (tableau V), observée lorsque le sol sableux (IA) est exposé à une alternance de périodes sèches et humides. Par ailleurs, quand on réhumecte, on favorise l'introduction de  $\text{CO}_2$  très soluble qui est susceptible d'apporter des carbonates. Pour le limon sablo-argileux (CSA), le pH du témoin sec est légèrement plus élevé que celui des autres échantillons. Cette tendance est assez surprenante car le séchage aboutit souvent à une acidification du fait de la concentration en COD (carbone organique dissous) qui est plus importante que pour les échantillons humides. Les autres caractéristiques du sol ne semblent pas affectées par leur préconditionnement (fig. 4).

Pour le sol limoneux (OL), on observe la même tendance que pour le sol sableux en ce qui concerne le pH. Par ailleurs, la CEC du témoin humide semble inférieure à celle des échantillons soumis aux autres modes de préconditionnement. On a vu que les effets du séchage sur la CEC pouvaient s'expliquer par le lavage à l'eau et les pertes associées de matière organique ainsi que par la sensibilité des minéraux du sous-sol à l'exposition à l'air.

**TABLEAU V**  
Effets du préconditionnement sur le pH des sols

	IA			CSA			OL		
	H	S	CDR	H	S	CDR	H	S	CDR
pH eau	8,45	8,44	8,66	6,24	6,54	6,27	6,67	6,74	6,70
pH KCl	8,4	8,07	8,16	5,61	5,87	5,59	6,29	6,33	6,48



**Fig. 4 - Évolution de la CEC du calcaire total et de la teneur en MO suivant le préconditionnement**  
(S : sec, H : humide, CDR : cycle séchage/réhumidification).

## Dispositif expérimental

La mise en place de colonnes est donc envisagée pour étudier le rôle des différents constituants du sol sur le transfert des polluants métalliques à travers la zone non saturée : différentes fractions granulométriques, matière organique, etc. Les dimensions des colonnes sont retenues afin de concilier la commodité expérimentale et les besoins de la mise en oeuvre des processus étudiés (fig. 5). En partie haute, l'alimentation est assurée par une pompe péristaltique qui permet le contrôle du débit pendant l'expérience. Ces expériences sont effectuées dans une chambre noire maintenue à une température proche de 25 °C. On compare les résultats obtenus avec du sol maintenu sec ou humide à ceux du sol soumis à quatre cycles de dessiccation/réhumectation. Deux réplicats sont mis en place. Les colonnes sont alimentées avec une solution de zinc (nitrate de zinc à 20 mg/l Zn) à l'aide d'une pompe péristaltique. Le débit est de 0,12 ml/s pour maintenir le système en conditions non saturées. Cinq phases d'alimentation de quatre litres chacune sont effectuées, ce qui représente environ quarante fois le volume des pores pour le sol sableux (IA), soixante fois pour le limon sablo-argileux (CSA) et soixante-cinq fois pour celui de sol limoneux (OL). Deux phases consécutives sont espacées d'une nuit. Un échantillon de 15 ml est prélevé en sortie de colonne pour analyse toutes les demi-heures en début d'expérience, puis toutes les heures. Ces échantillons sont ensuite analysés pour connaître leur concentration en zinc et leur pH. Les résultats sont ensuite présentés sous forme de courbe d'élution avec les valeurs expérimentales des deux réplicats et la moyenne. En fin d'expérience, l'humidité et la concentration en zinc (après extraction à l'eau régale, puis dosage par spectrophotométrie d'absorption atomique selon la norme Afnor NF X 31-151) sont déterminées en sommet et en pied de colonne.

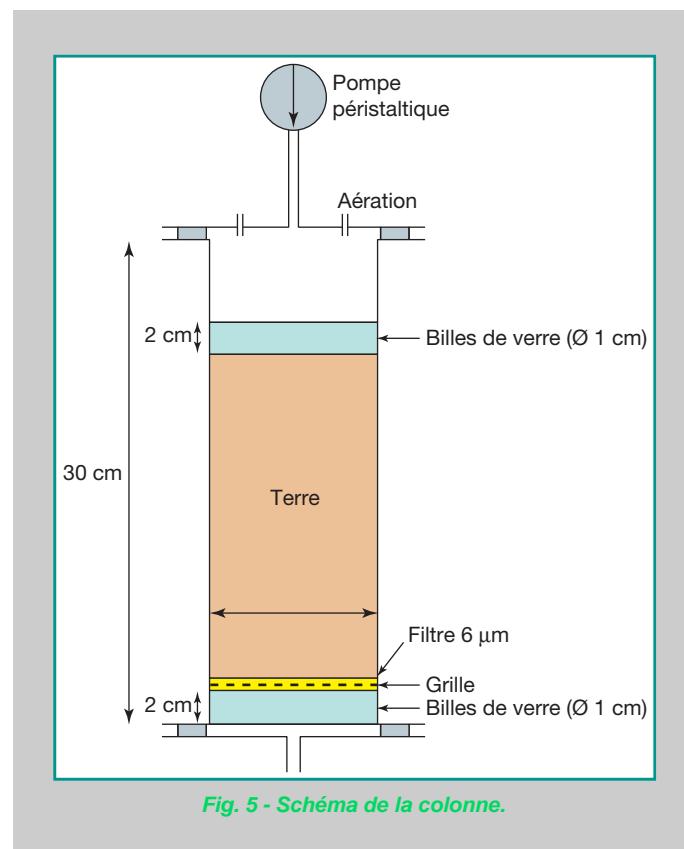


Fig. 5 - Schéma de la colonne.

## Résultats

### Sol sableux

- *Fonctionnement hydraulique des colonnes* : sa texture sableuse rend l'écoulement aisé et on demeure en régime permanent tout au long des cinq phases successives d'alimentation avec un débit de sortie, égal au débit d'entrée, de 0,12 ml/s.
- *Suivi du pH en sortie de colonne* : la figure 6 illustre l'évolution du pH au cours des cinq phases de percolation de la solution de zinc. Une différence notable de 0,5 unité de pH est observée en début d'expérience en sortie des colonnes de sol soumis aux cycles.
- *Suivi de la concentration en zinc en sortie de colonne* : sur la figure 6 est représentée l'évolution de la concentration en zinc en sortie des colonnes.

On remarque qu'on ne retrouve quasiment aucune trace de zinc en sortie des colonnes des témoins secs et humides. Cela confirme ce que l'on pouvait attendre étant données les caractéristiques du sol (en particulier son pH alcalin).

Lorsque le sol est soumis à des cycles de dessiccation/réhumectation, la presque totalité du métal introduit est retenue dans le sol.

- *Quantité de zinc retenue dans le sol* : le tableau VI rassemble les informations concernant les quantités de zinc retenues par le sol. Ces quantités sont déduites des courbes précédentes par intégration de la courbe moyenne.

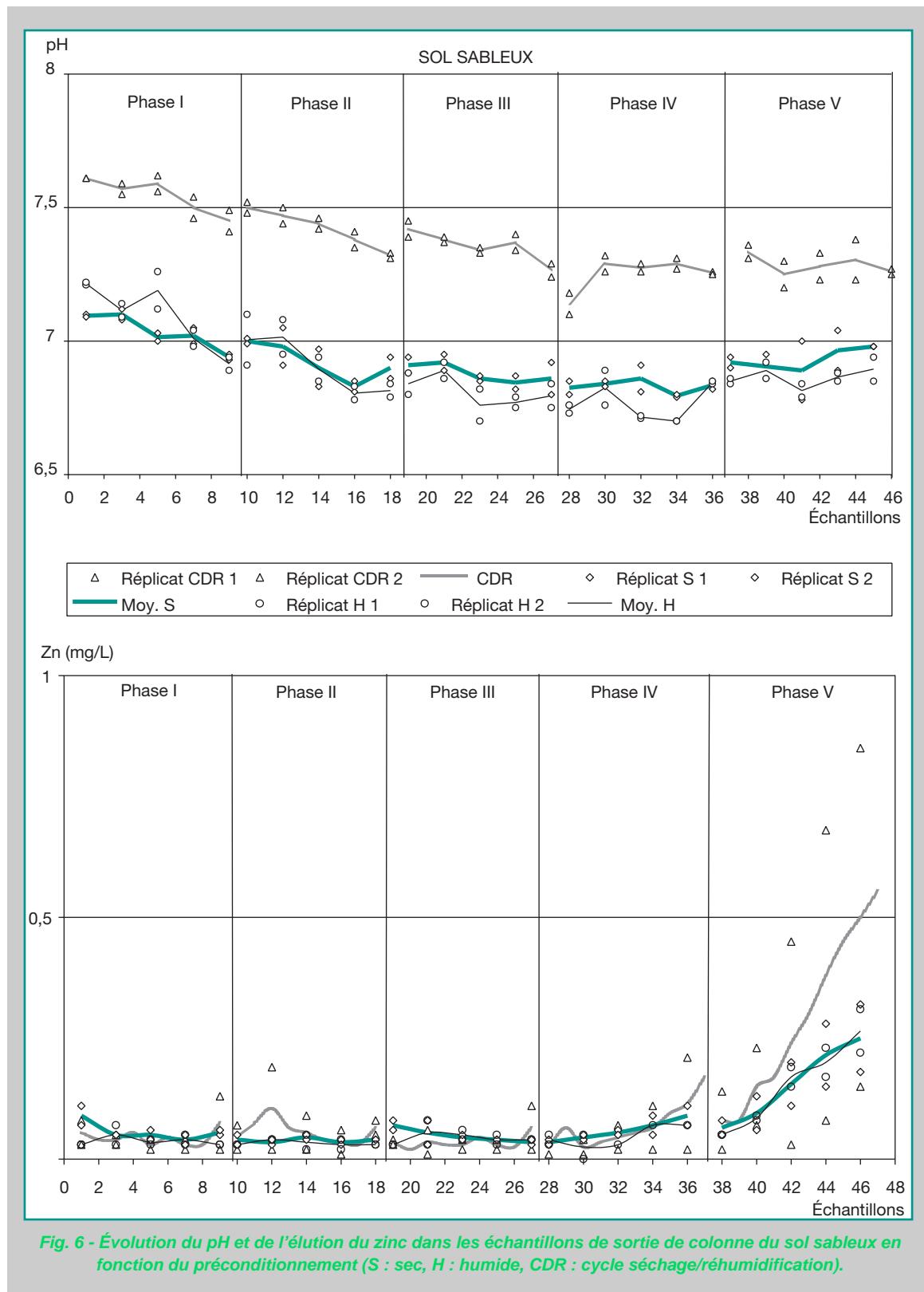


TABLEAU VI

Quantité de zinc (en mg) retenue dans les colonnes du sol sableux (IA) en fin d'expérience suivant le préconditionnement qu'elles ont subi

	Témoin sec	Témoin humide	Sol soumis aux alternances de dessiccation/réhumectation
Pourcentage retenu de la quantité de zinc introduite	99,84	99,85	99,5

Ces résultats confirment la rétention presque totale du zinc par le sol.

La figure 7 montre que le métal est essentiellement retenu en sommet de colonne. Laureline Février, 2001 montre, pour le même type de dépôt, que les cations sont essentiellement retenus dans la colonne par précipitation sous forme de carbonates, mais également par des mécanismes d'échanges de cations. Lorsque le sol est soumis à des cycles de dessiccation/réhumectation, on retrouve alors en pied de colonne une quantité de métal supérieure à celle obtenue pour les autres scénarios, ce qui atteste de la progression plus importante du métal dans le sol.

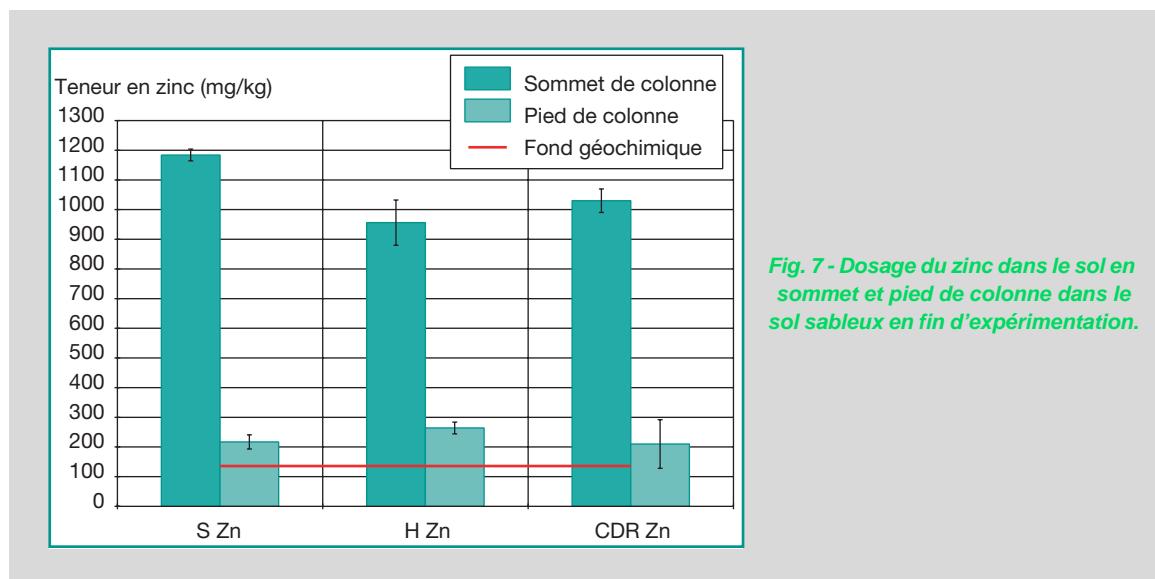


Fig. 7 - Dosage du zinc dans le sol en sommet et pied de colonne dans le sol sableux en fin d'expérimentation.

### Limon sablo-argileux

- *Fonctionnement hydraulique des colonnes* : lors de ces expériences, seules les colonnes constituées avec le sol sec ont fonctionné en régime permanent au cours des cinq phases d'alimentation. Toutes les autres colonnes ont présenté un colmatage au cours d'une ou plusieurs des phases d'alimentation. Ces perturbations entraînent alors une saturation temporaire ou plus pérenne du sol en eau et un temps de contact plus important entre la solution d'entrée et le sol.
- *suivi du pH en sortie de colonne* : l'évolution du pH au cours de l'expérience est représentée sur la figure 8. On note une augmentation de 0,5 unité de pH entre la première et la deuxième phase. Cette tendance est cependant moins nette si on suit l'évolution du pH en sortie des colonnes préalablement soumises aux cycles de dessiccation/réhumectation.
- *suivi de l'élution du zinc* : l'évolution de la concentration en zinc en sortie de colonne est illustrée par la figure 8. L'élution du zinc est plus importante lorsque le sol est maintenu sec pendant 32 jours que dans les autres cas, bien que l'analyse des propriétés chimiques initiale n'ait pas permis de déceler de différences entre sols sec et humide. On peut toutefois s'interroger sur l'adéquation entre les protocoles de mesures de ces paramètres (qui exigent un séchage préalable du sol) et le contexte de notre étude. Néanmoins, on peut penser que le séchage « intensif » du sol a pu conduire à la formation de chemins préférentiels qui pourraient expliquer ces distorsions. On peut également supposer une plus faible réactivité du sol sec vis-à-vis du zinc. Bigorre et al. (2000), signalent une diminution de la CEC avec la diminution de la teneur en eau des sols, ainsi qu'une diminution de la surface spécifique surtout due à la perte en eau de la matière organique. Baldwin (1996), attribue la diminution des capacités d'adsorption du phosphate par des sédiments séchés à l'évolution des phases minérales pendant le séchage, qui ont tendance à cristalliser et à offrir une surface spécifique moins importante.

Lorsque le sol est soumis à des cycles de dessiccation et de réhumidification, la quantité de zinc relarguée dans l'effluent de sortie de colonne est moins forte que dans les autres cas. Le tableau VII permet de convertir les données de la figure 8 en quantités de zinc retenues par le sol.

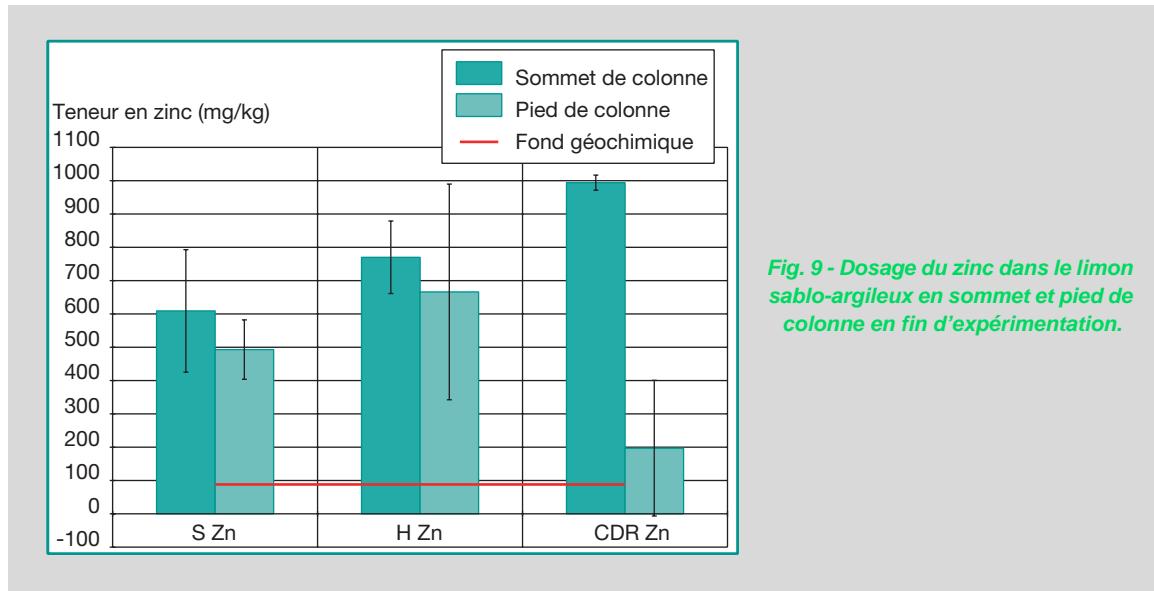
L'extraction du zinc en fin d'expérimentation (fig. 9) corrobore ces résultats avec une forte rétention du zinc par le sol soumis aux alternances de périodes sèches et de périodes humides. Le métal est alors retenu essentiellement en sommet de colonne ; en effet, les problèmes de col-

matage ont rallongé les temps de contact entre l'eau et le zinc en sommet de colonne, le sol étant alors saturé, entraînant ainsi une rétention très forte. Le fait de retrouver des concentrations faibles en pied de colonne du sol sec confirme l'hypothèse d'une faible réactivité du sol vis-à-vis du cation métallique qui permet alors son élution. Pour le sol humide, la répartition en zinc le long de la colonne est beaucoup plus homogène, ce qui explique l'apparition du zinc en sortie de ces colonnes lors des dernières phases d'alimentation et montre que la capacité maximale de rétention du zinc par le sol est atteinte dans ces conditions. Cette répartition homogène peut être due aussi au transport du zinc par les argiles qui circulent dans le sol et diminuent les interactions avec la phase fixe.



**TABLEAU VII**  
**Quantité de zinc (en mg) retenue dans les colonnes du limon sablo-argileux (CSA)**  
**en fin d'expérience suivant le préconditionnement qu'elles ont subi**

	Témoin sec	Témoin humide	Sol soumis aux alternances de dessiccation/réhumectation
Pourcentage retenu de la quantité de zinc introduite	81,3	99,2	99,9



### *Sol limoneux*

- *Fonctionnement hydraulique des colonnes* : aucune des colonnes constituées à l'aide de ce sol n'a pu fonctionner en régime permanent : l'entraînement de la fraction fine a conduit dans tous les cas à un colmatage progressif du sol.
- *Suivi du pH en sortie de colonne* : l'évolution du pH au cours de l'expérience est représentée sur la figure 10. Le pH reste relativement stable en sortie des colonnes et les différents types de préconditionnement n'induisent pas de différences significatives dans l'évolution du pH : les différences observées sont en effet inférieures à 0,5 unité de pH.
- *Suivi de l'élution du zinc* : le suivi de la concentration en zinc en sortie de colonnes traduit une rétention quasi totale (> 99 %) du métal par les témoins secs ou humides (fig. 10).

Pour les colonnes constituées avec le sol préalablement soumis à des fluctuations hydriques, l'écart important qui existe entre les deux réplicats ne permet pas de conclure avec certitude sur le comportement du sol dans ces conditions.

- *Quantité de zinc retenue dans le sol* : la figure 11 montre que la rétention du zinc est localisée en sommet de colonne. Les profils de rétention confirment que l'élution du zinc dans une des colonnes de sol soumis aux cycles de séchage/humidification doit être attribuée à un dysfonctionnement hydraulique de la colonne et un éventuel entraînement du métal avec les particules argileuses désstabilisées.

### **Conclusion**

Le préconditionnement du sol affecte selon ses caractéristiques intrinsèques de façons diverses le transfert du zinc.

- Le sol sableux (IA) est peu affecté par le préconditionnement et les tendances observées sont similaires pour les témoins sec et humide ou pour le sol soumis aux alternances de dessiccation/réhumectation.

réhumectation : plus de 99 % de la quantité de zinc introduite est immobilisée dès les premiers centimètres de la colonne ;

➤ Lorsque le limon sablo-argileux (CSA) est maintenu sec pendant 32 jours, 18,7 % de la quantité de zinc introduite se retrouve dans l'effluent. Dans les autres cas, le zinc est retenu à plus de 99 % ;

➤ Le sol limoneux (OL) présente un comportement similaire de ses deux témoins sec et humide : dans les deux cas, on observe un relargage du métal inférieur à 1 % de la quantité introduite. Le métal retenu est concentré au sommet de la colonne.

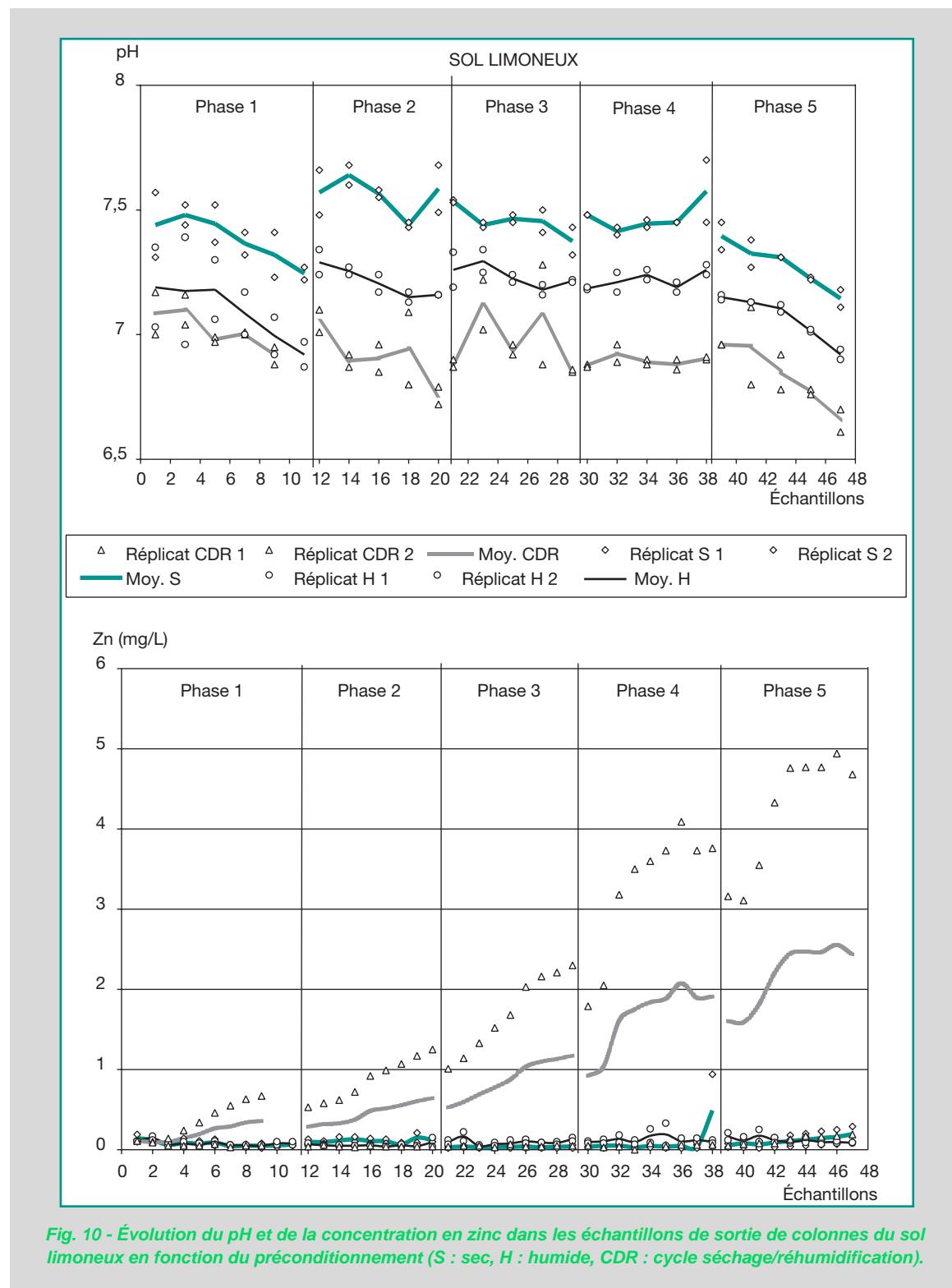


Fig. 10 - Évolution du pH et de la concentration en zinc dans les échantillons de sortie de colonnes du sol limoneux en fonction du préconditionnement (S : sec, H : humide, CDR : cycle séchage/réhumidification).

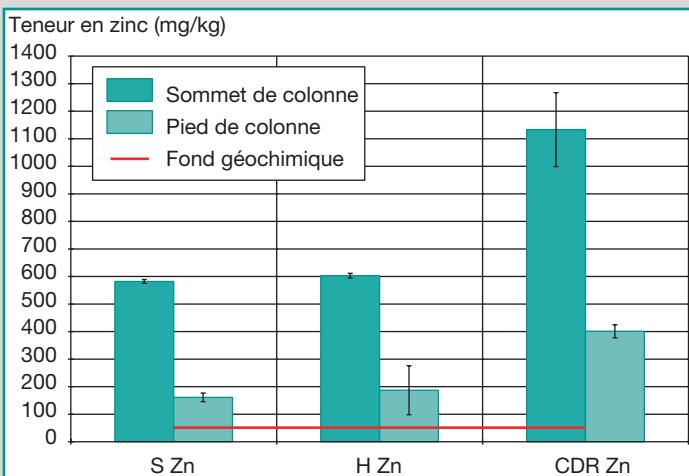


Fig. 11 - Dosage du zinc dans le sol en sommet et pied de colonne du sol limoneux en fin d'expérimentation.

## Discussion générale – Conclusion

### Discussion générale

Deux processus physico-chimiques principaux, responsables de l'immobilisation du zinc, et différents suivant les caractéristiques du sol, doivent être pris en compte :

- dans le sol sableux, le caractère carbonaté dominant semble favoriser la simple précipitation du métal sous forme de carbonate de zinc,
- dans les deux autres sols, l'immobilisation semble davantage imputable à la nature et à la quantité tant de la fraction argileuse que de celles de la matière organique (surtout pour le sol limoneux), responsable en particulier de leur capacité d'échange cationique. Ces interactions dépendent fortement de la surface du solide qui va être en contact avec le cation en solution.

La quantité et la qualité de la fraction argileuse (argile et matière organique) semble expliquer une grande partie des phénomènes observés après exposition du sol à des cycles de dessiccation/réhumectation (Singer *et al.*, 1992).

La très faible quantité d'argile et de matière organique dans le sol sableux explique l'absence de modifications de ses propriétés intrinsèques et le transfert du zinc dans le sol s'effectue de façon analogue, que le sol ait été préalablement séché, maintenu humide ou soumis à une alternance de périodes sèches et de périodes humides. Ce sol, qui retient peu l'eau, n'a pas tendance à former des agrégats pendant le séchage et n'est pas sensible aux modifications de teneur en eau.

De nature et d'abondance différentes dans le limon sablo-argileux et le sol limoneux, cette fraction granulométrique génère par contre des perturbations.

Le limon sablo-argileux, qui comporte 22 % d'argile, principalement du clinochlore, forme des agrégats stables après un mois de séchage. Son caractère sableux (52 %) et sa faible teneur en matière organique conduisent à une faible capacité de rétention en eau du sol après séchage à l'air. Les agrégats formés sont donc très hydrophobes et la rétention du zinc dans la colonne est alors moins élevée que pour le sol maintenu humide. Lorsque ce limon est soumis à des cycles de séchage/réhumidification, il présente une augmentation significative de l'instabilité de ses agrégats. Celle-ci entraîne un colmatage des colonnes par les particules argileuses libérées qui ne peuvent migrer dans la colonne ; la rétention est alors favorisée en sommet de colonne car les particules déstabilisées, donc plus fines et hydratées, permettent une meilleure rétention du métal.

Le sol limoneux choisi contient environ 14 % d'argile, principalement de l'illite et du clinochlore. Il adsorbe très efficacement le zinc et cela sur les couches supérieures de la colonne, ce qui conduit à penser que sa capacité maximale d'adsorption est loin d'être atteinte. Le sol limoneux présente une altération de la stabilité de ses agrégats qui semble cette fois entraîner une remobilisation beaucoup plus importante du zinc dans la phase aqueuse. On peut supposer aussi que les cycles de

séchage/réhumidification conduisent à chaque phase de réhumidification à une libération de carbone organique dissous (par lessivage du carbone organique des organismes morts pendant le séchage). Les capacités complexes de ces molécules peuvent aider au transfert du zinc dans la colonne.

Le transport des colloïdes joue un rôle particulièrement important. En effet, cela peut expliquer la migration du métal dans tout le profil de la colonne pour le sol sablo-argileux ou l'élution de ce dernier pour le sol limoneux après les cycles de séchage/réhumidification. Le terme de colloïdes se rapporte aux particules solides, de faible solubilité, de diamètre compris entre 0,01 et 10  $\mu\text{m}$ . Elles peuvent être constituées de matériaux inorganiques ou organiques. (Sposito, 1989 ; McCarthy et Zachara, 1989). En conditions non saturées, le sol peut alors être modélisé comme un milieu poreux comprenant quatre phases : solide, liquide, gazeuse et colloïdale.

L'affinité de ces colloïdes pour les éléments métalliques, imputable aux propriétés de leur surface (charge électrique, capacité d'échanges cationiques, etc.), va souvent entraîner la fixation de ces contaminants. Or, les matériaux colloïdaux du sol peuvent être entraînés suivant un flux préférentiel vers les eaux souterraines sous l'action de processus géochimiques et biologiques.

Pour le sol limoneux ou le sol sablo-argileux, le transfert du zinc est facilité par la plus grande instabilité des agrégats. Cette réponse aux prétraitements effectués peut être imputable à la libération par dissolution des « ciments » qui assurent l'adhésion des colloïdes sur des surfaces minérales de plus grande taille ou après défloculation d'agrégats stables (McCarthy et Zachara, 1989). Les contaminants tels que les métaux lourds dissous adhèrent aux surfaces colloïdales notamment par adsorption ou échanges ioniques. La non-prise en compte du rôle des colloïdes, comme facteur favorisant le transport des contaminants métalliques dans la matrice solide, peut conduire à une sérieuse sous-estimation des distances auxquelles les métaux peuvent migrer si on utilise les équations classiques de convection/dispersion avec des coefficients de retard normaux (Corapcioglu et Jiang, 1993 et 1996).

Corapcioglu et Choi, 1996) précisent que la composition des particules colloïdales mobilisées est en outre proche de celle de la fraction colloïdale de la matrice solide « immobile ». Tout comme ils peuvent retenir les métaux lourds sur la matrice solide stationnaire, ils peuvent donc maintenir ces éléments, selon les mêmes mécanismes, dans la phase aqueuse mobile.

## Conclusion

Il apparaît, d'après nos travaux sur des sols aux caractéristiques différentes, que le transfert du métal dépend de différents facteurs : la composition et la structure jouent un rôle important, en particulier la CEC et la présence en plus ou moins grande quantité de fines ( $< 10 \mu\text{m}$ ) de nature argileuse ou organique. Le régime hydrique plus ou moins contrasté auquel le sol est soumis a un effet sur les sols qui présentent une composante argileuse importante. Quoi qu'il en soit, il apparaît que si une fraction du métal contaminant est transportée sous forme ionique « libre » avec l'eau d'infiltration, une autre part importante sera adsorbée sur les colloïdes organiques ou minéraux, en grande partie apportés par le ruissellement de l'eau pluviale. Ces particules fines peuvent être accumulées à la surface de l'ouvrage d'infiltration ou bien participer au transfert particulaire de ces polluants.

Afin de comprendre plus finement les conséquences des ces fluctuations hydriques sur les capacités de rétention des sols dans les ouvrages d'infiltration, il est indispensable de préciser le type d'interaction entre les cations piégés et les constituants du sol d'une part, et la répartition des polluants dans les différentes classes de taille de particules du sol une fois qu'ils sont retenus, d'autre part.

Ces fluctuations hydriques ne sont pas sans conséquences sur la microflore présente dans ces horizons, et les micro-organismes doivent donc également être pris en compte dans les travaux futurs tant pour leur rôle dans la dégradation de la matière organique ou des polluants organiques que pour leur capacité à retenir ou entraîner les cations métalliques (Crosnier, 1999).

Ces résultats montrent que le choix d'implantation des bassins d'infiltrations ne peut pas uniquement être fondé sur des caractéristiques de perméabilité et indiquent que l'on doit également prendre en compte d'autres paramètres liés au statut hydrique, à la stabilité structurale, à la teneur en différents minéraux, qui entraînent la présence de certains cations (Ca, Na, etc.) ainsi qu'à la CEC, etc.

Par ailleurs, une meilleure connaissance des mécanismes qui gouvernent les transferts de l'eau pluviale et des polluants associés dans ces ouvrages doit permettre de définir des principes de gestion (fréquence et profondeur de curage de la zone de surface, maîtrise des débits d'alimentation des bassins, prise en compte des phénomènes saisonniers comme le salage hivernal, etc.).

---

## RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

---

- BACHOC A., CHEBBO G., MOUCHEL J.M., La pollution des rejets pluviaux urbains : son importance, ses caractéristiques, quelques éléments sur ses origines et son interception, *Rejets urbains par temps de pluie : pollution et nuisances*, Actes des 3<sup>e</sup> journées du DEA Sciences et Techniques de l'Environnement, organisées les 14 et 15 mai **1992** à Paris, pp. 9-21.
- BALDWIN D.S., Effects of exposure to air and subsequent drying on the phosphate sorption characteristics of sediments from a eutrophic reservoir, *Limnol. Oceanogr.*, **41**, **1996**, pp. 1725-1732.
- BIGORRE F., TESSIER D., PEDRO G., Contribution des argiles et des matières organiques à la rétention de l'eau dans les sols. Signification et rôle fondamental de la capacité d'échange en cations, *C. R. Acad. sci., Sér. II Sci. terre planet*, vol. 330 (4), **2000**, pp. 245-250.
- BONNEAU M., SOUCHIER B., *Pédologie – 2. Constituants et Propriétés du sol*, Masson, **1979**, 460 p.
- BOURRELIER P.H., BERTHELIN J., *Contamination des sols par les éléments en traces : les risques et leur gestion*, Rapport de l'Académie des Sciences **42**. Tec et Dec, Lavoisier, Paris, **1998**, 440 p.
- CARON J., ESPINDOLA C.R., ANGERS D.A., Soil structural stability during rapid wetting : influence of land use on some aggregate properties, *Soil Sci. Soc. Am. J.*, **60**, **1996**, pp. 901-908.
- CARON J., KAY B.D., STONE J.A., Improvement of structural stability of a clay loam with drying, *Soil Sci. Soc. Am. J.*, **56**, **1992**, pp. 1583-1590.
- CORAPCIOGLU M.Y., CHOI H., Modeling colloid transport in unsaturated porous media and validation with laboratory column data, *Water Resour. Res.*, 32(12), **1996**, pp. 3437-3449.
- CORAPCIOGLU M.Y., JIANG H., Colloid-facilitated groundwater contaminant transport, *Water Resour. Res.*, 29(7), **1993**, pp. 2215-2226. *J. Hydrol. Eng.*, 1(4), pp. 139-143.
- CORAPCIOGLU M.Y., JIANG H., Dimensional analysis of colloid-facilitated ground-water contaminant transport, *J. of Hydrologie Engineering*, Ed. ASCE, vol. 1, n° 4, oct. **1996**, pp. 139-143.
- COURCHESNE F., SAVOIE S., DUFRESNE A., Effects of air-drying on the measurement of soil pH in acidic forest soils of Quebec, Canada, *Soil Science*, 160(1), **1995**, pp. 56-68.
- CROSNIER J., Devenir de la pollution métallique drainée par les eaux pluviales. Influence du compartiment microbien et des alternances de dessication/réhumectation sur le transfert du zinc dans la zone non saturée du sol, *Thèse de Doctorat de l'Université Claude Bernard, Lyon 1*, **1999**, 256 p.
- DUCHAUFOUR Ph., *Pédologie – 1. Pédogenèse et classification*, 2<sup>e</sup> édition, Masson, **1983**, 491 p.
- DUCHAUFOUR Ph., *Pédologie – sol, végétation, environnement*, Abrégés, 4<sup>e</sup> édition, Masson, **1995**, 324 p.
- FÉVRIER L., *Transfert d'un mélange Zn-Cd-Pb dans un dépôt fluvio-glaciaire carbonaté. Approche en colonnes de laboratoire*, Thèse de Doctorat de l'INSA de Lyon, **2001**, 300 p.
- FÖRSTNER U., WITTMAN G.T.W., *Metal pollution in the aquatic environment*, Berlin, Springer-Verlag, **1979**, 486 p.
- HÉNIN S., GRAS R., MONNIER G., *Le profil cultural*, Masson, Paris, 2<sup>e</sup> éd., **1969**, 332 p.
- KIEKENS L., Zinc. In : Dr Alloway B.J. (Eds), *Heavy metals in soil*, A Wiley Interscience Publication, **1990**, pp. 261-279.
- LANYON D., CASS A., *The dynamic response of water stable aggregates to wetting rate and wetting and drying cycles*, 16<sup>e</sup> Congrès Mondial de Science du Sol, Montpellier 20-26 août **1998**, 7 p.
- MAKEPEACE D.K., SMITH D.W., STANLEY S.J., Urban Stormwater Quality : Summary of contaminant data. *Critical Reviews in Environ. Sc. Technol.*, 25(2), **1995**, pp. 93-139.
- MCCARTHY J.F., ZACHARA J.M., Subsurface transport of contaminants. *Environ. Sci. Technol.*, 23(5), **1989**, pp. 496-502.
- MEYER W.L., ARP P.A., Exchangeable cations and cations exchange capacity of forest soil samples : effects of drying, storage and horizon, *Can. J. Soil Sci.*, **74**, **1994**, pp. 421-429.
- MITCHELL A., BALDWIN D.S., Effects of desiccation/oxidation on the potential for bacterially mediated release from sediments, *Limnol. Oceanogr.*, 43(3), **1998**, pp. 481-487.
- PROST R., KOUTIT T., BENCHARA A., HUARD E., State and location of water adsorbed on clay minerals : Consequences of the hydration and swelling-shrinkage phenomena, *Clays clay miner.*, 46(2), **1998**, pp. 117 – 131.
- SINGER M.J., SOUTHARD R.J., WARRINGTON D.N., JANITZKY P., Stability of synthetic sand-clay aggregates after wetting and drying cycles, *Soil Sci. Soc. Am. J.*, **56**, **1992**, pp. 1843-1848.

- SPOSITO G., *The chemistry of soils*, Oxford University Press, **1989**, 277 p.
- TESSIER D., *Rôle de l'eau sur les propriétés physiques des sols*. Sécheresse 5(3), **1994**, pp. 143-150.
- VALIRON F., TABUCHI J.P., *Maîtrise de la pollution urbaine par temps de pluie. État de l'art*, Édition Tec&Doc Lavoissier, **1992**, 564 p.
- WALWORTH J.L., Soil drying and rewetting, or freezing and thawing, affects soil solution composition, *Soil Sci. Soc. Am. J.*, **56**, **1992**, pp. 433-437.
- WAN J., WILSON J.L., KIEFT T., Influence of the gas-water interface on transport of microorganisms through unsaturated porous media, *Appl. Environ. Microbiol.*, **60**(2), **1994**, pp. 509-516.