



ETUDE N° 05-0133/1A

SYNTHESE / EXTENDED ABSTRACT
FRANÇAIS / ENGLISH

CARACTERISATION DES LAGUNES A HYDROCARBURES

**CARACTERISATION DES VOLUMES ET
DES MASSES HETEROGENES STOCKEES**

juillet 2007

R. AVOCAT - SAUNIER & ASSOCIES
C. BOULANGER - CGG VERITAS

Crée en 1989 à l'initiative du Ministère en charge de l'Environnement, l'association RECORD – REseau COopératif de Recherche sur les Déchets – est le fruit d'une triple coopération entre industriels, pouvoirs publics et chercheurs. L'objectif principal de RECORD est le financement et la réalisation d'études et de recherches dans le domaine des déchets et des pollutions industrielles. Les membres de ce réseau (groupes industriels et organismes publics) définissent collégalement des programmes d'études et de recherche adaptés à leurs besoins. Ces programmes sont ensuite confiés à des laboratoires publics ou privés.

En Bibliographie, le document dont est issue cette synthèse sera cité sous la référence :

RECORD, Caractérisation des lagunes à hydrocarbures - Caractérisation des volumes et des masses hétérogènes stockées, 2007, 110 p, n°05-0133/1A

SYNTHESE DE L'ETUDE

L'étude proposée par RE.CO.R.D. est composée de deux parties distinctes : la première, une typologie des lagunes à hydrocarbures (Partie 1) ; et la seconde, un inventaire des techniques géophysiques applicables en vue de la caractérisation des volumes et des masses hétérogènes déposées (Partie 2). Une troisième partie, conditionnelle à ce stade (partie 3), consiste en l'élaboration d'une proposition de méthodologie de caractérisation des volumes et des masses hétérogènes stockées adaptée pour chaque type de lagune identifié.

Les objectifs de l'étude sont : i) de réaliser un inventaire des principales lagunes connues en France et en Europe permettant la constitution d'une base de travail applicable à l'étude ; ii) de regrouper les connaissances d'expertises spécifiques sur le sujet ; iii) de préparer une méthodologie de caractérisation originale applicable par les industriels et les ingénieries / bureaux d'études ; iv) d'identifier et de proposer à RE.CO.R.D. des axes de développement de cette méthodologie.

1. Définition et périmètre de l'étude

Les lagunes à hydrocarbures sont définies, au sens de l'étude, comme étant des cavités naturelles ou artificielles creusées dans le sol, non équipées d'un fond étanche, d'une paroi latérale, d'une membrane ou de toute autre forme d'étanchéité. Leur terme source se distingue par la présence d'hydrocarbures en quantité significative, même si d'autres catégories de déchets peuvent y être associées. Le projet d'étude n'incorpore pas les décharges internes contenant en majorité d'autres produits que les hydrocarbures.

2. Origines des lagunes à hydrocarbures

Selon leurs origines, les lagunes ont été regroupées en cinq catégories distinctes : 1) l'exploration et la production pétrolière ; 2) le raffinage des produits pétroliers ; 3) la pyrolyse de la houille ; 4) les accidents impliquant des hydrocarbures ; et 5) les origines autres.

L'exploration et la production pétrolière ont pu être à l'origine de deux types de sites de lagunes chez les pays producteurs : les bourbiers (ou dépôts de boues de forage), et, les fosses de brûlage (« burn pits »). Ce dernier type est aussi susceptible d'être présent sur les anciens sites de raffinage. Aucun site de ces types n'est référencé par BASOL. Ils sont, par contre, largement représentés chez les grands pays producteurs de pétrole brut.

Le **raffinage des produits pétroliers** (raffinage sulfurique) a été, dans le passé, à l'origine de nombreux sites référencés par BASOL. Le raffinage sulfurique était destiné au traitement des coupes légères, des bases à essences, des huiles vierges lubrifiantes, des paraffines, ainsi qu'à la préparation des huiles blanches médicinales (produits de haute pureté, dépourvu de soufre et de composés aromatiques). Le procédé conventionnel de raffinage des huiles usées exploité aujourd'hui est aussi générateur de goudrons acides.

Les goudrons acides générés par ces procédés ont pu être stockés dans le passé au sein de lagunes. BASOL référence dix sites de lagunes liés au raffinage sulfurique intéressant quatre raffineries ayant cessé leur activité (Gerland à Corbehem, BP à Courchelettes, Société de Bourron à Bourron Marlotte, Okoil à Fourmies), quatre raffineries en exploitation (Total à

Gonfreville l'Orcher, Esso à Notre Dame de Gravenchon, Kalor de Geeraert & Matthys aujourd'hui BP à Dunkerque), ainsi que deux sites associés au raffinage des huiles usées (terrain CBL jouxtant Eco Huile à Lillebonne, décharge Lemahieu à Abscon).

La **pyrolyse de la houille** a pu générer des sites de lagunes à hydrocarbures (sont exclues du champ de cette étude, les anciennes usines à gaz car les goudrons y étaient stockés à l'intérieur de fosses bétonnées). BASOL référence six sites de lagunes issus de la pyrolyse de la houille, dont quatre sont liés à d'anciennes cokeries minières (Gosnay, Drocourt, Auby, Louches), l'un d'entre eux correspond à une cokerie sidérurgique aujourd'hui démantelée (SIM), et le dernier, à une ancienne usine de distillation de goudrons de houille (Société Chimique de Gerland à Port-Saint-Louis du Rhône).

Les **accidents impliquant des hydrocarbures** peuvent être à l'origine de lagunes à hydrocarbures. Concernant les accidents majeurs, ce sont les stockages intermédiaires effectués le long des côtes avant rapatriement des déchets (Amoco Cadiz, 1978 ; Tanio, 1980) qui auraient pu être à l'origine de lagunes au sens du sujet de l'étude. Aucun site de ce type n'est référencé par BASOL. Dans le cas des accidents mineurs intervenant sur les établissements en exploitation, deux sites appartenant à une raffinerie en exploitation (raffinerie de Berre de la Shell) sont référencés au sein de BASOL.

Les **origines autres** regroupent les sites de lagunes issus de fonctions diverses ne pouvant être rattachées aux quatre origines précédentes. Au moins deux sites référencés par BASOL peuvent être incorporés au sein de cette catégorie (ancienne station de déballastage de Brest, centrale thermique de Degrad des Cannes en Guyane).

3. Caractéristiques des produits stockés et des phases présentes

Les caractéristiques physico-chimiques des produits stockés au sein des lagunes dépendent des procédés sources, des paramètres d'exploitation et des évolutions subies par les produits postérieurement à la mise en dépôt. Parallèlement, une même lagune a pu réceptionner durant son exploitation, des goudrons issus de plusieurs fabrications, ainsi que leurs déchets associés (paraffine, filtres usés, terres usées, autres). D'autres déchets (déchets issus de déconstruction, sols pollués, fûts, etc.) ont pu venir de joindre aux goudrons conférant à l'ensemble du dépôt de fortes hétérogénéités.

Cas des goudrons acides issus du raffinage sulfurique

Les goudrons acides issus du raffinage sulfurique ont une viscosité élevée, une densité plus faible que celle des sols et une couleur noire à marron. Ils dégagent une odeur « huileuse », typique des produits pétroliers, associée à une odeur acre générée par les émissions de dioxyde de soufre. Des vapeurs d'acides les accompagnent. Le pH des goudrons est très acide (inférieur à 2, parfois même inférieur à 1).

On distingue plusieurs phases (organique, acide, eau, impuretés) dont l'importance varie de manière significative d'une lagune à une autre, ainsi que selon les lentilles ou couches à l'intérieur d'une même lagune.

Il a été identifié au niveau de la lagune de Lviv (Ukraine), une couche de base concentrant la fraction organique, une couche intermédiaire (aqueuse et acide) et une couche supérieure incorporant les hydrocarbures légers. Ce schéma semble être typique des lagunes incorporant

plusieurs phases, même si dans le détail, des lentilles aqueuses et acides peuvent être emprisonnées à l'intérieur de la couche organique à forte viscosité. Une caractérisation de la couche de base de la lagune de Lviv renseigne sur la répartition suivante (en poids) : fraction organique de 77,2 à 81,0%, fraction acide de 1,8 à 1,9%, fraction aqueuse de 7,0 à 7,2%, impuretés de 10,1 à 13,7%. Cette répartition est susceptible de varier fortement d'une lagune à une autre.

De manière complémentaire, les études de caractérisation des lagunes du Derbyshire au Royaume Uni mettent en évidence la présence de goudrons composés par des asphaltènes de poids moléculaires élevés mélangés à des hydrocarbures polaires et des coupes moyennes de distillation, des hydrocarbures saturés libres ainsi que la présence d'une phase aqueuse riche en sulfates et très acide.

Plus généralement, les principaux constituants à l'intérieur des dépôts sont les hydrocarbures aliphatiques, les hydrocarbures aromatiques, les phénols, les métaux, les acides, les hydrocarbures sulfonés et les gaz.

4. Typologie des lagunes à hydrocarbures inventoriées

La typologie des sites de lagunes inventoriées est basée sur cinq critères appliqués au terme source : l'origine, le tonnage, la répartition, la nature et l'accessibilité. En fonction des caractéristiques propres de chaque lagune inventoriée, il est appliqué une note à chacun des critères selon la grille de lecture précisée par le tableau ci-après.

Critères	Découpage	Note
Origine du terme source	Exploration et production pétrolière	1
	Raffinage des produits pétroliers	2
	Pyrolyse de la houille	3
	Accidents	4
	Origines autres	5
Estimation du terme source	150000 tonnes	1
	50000 à 150000 tonnes	2
	10000 à 50000 tonnes	3
	< 10000 tonnes	4
Répartition du terme source	1 seul dépôt ou lagune	1
	Plusieurs dépôt ou lagunes	2
Nature du terme source	Goudrons acides seuls (incluant phase aqueuse)	1
	Goudrons acides et autres déchets	2
	Goudrons autres seuls	3
	Goudrons autres et autres déchets	4
	Hydrocarbures autres que goudrons	5
	Hydrocarbures autres que goudrons avec autres déchets	6
Accessibilité du terme source	Directement accessible	1
	Partiellement ou totalement recouvert par des matériaux	2
	Partiellement ou totalement sous eau	3
	Partiellement recouvert par des matériaux et sous eau	4

Critères sélectionnés en vue de l'élaboration de la typologie

Chaque site de lagune est donc défini par un code à 5 chiffres. Les 5 critères correspondent à des informations communément disponibles au sein de la littérature et à des caractéristiques importantes des sites de lagunes. Ils ont aussi de fortes implications en matière de diagnostic, et / ou de réhabilitation. Enfin, les critères ont été choisis pour être suffisamment discriminants afin de pouvoir constituer la base de la typologie.

Certains sites comportent plusieurs lagunes mitoyennes les unes des autres. Dans ce cas, le site est appréhendé en totalité au sein de la typologie. Pour ce qui est des sites de lagunes ayant fait l'objet d'une réhabilitation récente, la situation antérieure à la réhabilitation est incorporée à la typologie. Pour ce qui est des réhabilitations anciennes, c'est la situation actuelle qui est prise pour référence au sein de la typologie.

Type	Origine	Caractéristiques	Site de lagune
2.1.2.2.1	Raffinage des produits pétroliers	Très grande taille, plusieurs sites de dépôt, goudrons acides et autres déchets, terme source directement accessible	Ex ₁ : Site A (Belgique)
2.1.2.?.?	Raffinage des produits pétroliers	Très grande taille, goudrons acides et autres déchets, répartition et accessibilité du terme non documentée	Ex ₂ : Lviv (Ukraine)
2.2.1.2.1	Raffinage des produits pétroliers (benzol)	Grande taille, site de dépôt unique, goudrons acides et autres déchets, remblaiement partiel du terme source (peut incorporer une lame d'eau acide)	Ex ₃ : Site B (RU)
	Raffinage des produits pétroliers (benzol)		Ex ₄ : Site C (RU)
2.2.2.2.1	Raffinage des produits pétroliers (huiles usées)	Grande taille, plusieurs sites, goudrons acides et autres déchets, terme source directement accessible (peut incorporer une lame d'eau)	Ex ₅ : Cinderhills (Derbyshire, RU)
2.3.1.2.2	Raffinage des produits pétroliers (solvants, huiles, paraffines)	Taille intermédiaire, site de dépôt unique, goudrons acides et autres déchets, remblaiement quasi total	Ex ₆ : Site D (France métropolitaine)
2.3.2.2.2	Raffinage des produits pétroliers	Taille intermédiaire, plusieurs sites de dépôt, goudrons acides et autres déchets, lagunes totalement remblayées	Ex ₇ : Site E (France métropolitaine)
	Raffinage des produits pétroliers		Ex ₈ : Site F (France métropolitaine)
2.4.2.2.2	Raffinage des produits pétroliers	Petite taille, plusieurs sites de dépôt, goudrons acides et autres déchets, lagunes totalement remblayées	Ex ₉ : Site G (France métropolitaine)
	Raffinage des produits pétroliers		Ex ₁₀ : Site H (France métropolitaine)
2.4.1.2.1	Raffinage des produits pétroliers (Re raffinage des huiles usées ?)	Petite taille, une seule lagune, goudrons acides et autres déchets, terme source directement accessible	Ex ₁₁ : Décharge Lemahieu (France métropolitaine)
2.4.1.2.?	Raffinage des produits pétroliers (solvants et huiles minérales)	Petite taille, site de dépôt unique, goudrons acides et autres déchets, accessibilité non documentée	Ex ₁₂ : Site I (France métropolitaine)
3.2.2.4.2	Pyrolyse de la houille (et métallurgie)	Grande taille, plusieurs sites de dépôt, goudrons et autres déchets, recouverts par des matériaux terrigènes	Ex ₁₃ : Frydek - Mistek (République Tchèque)
3.2.2.?.2	Pyrolyse de la houille (distillation de goudrons de houille)	Taille intermédiaire, plusieurs sites de dépôt, acidité des goudrons non précisée, partiellement recouverts par des matériaux	Ex ₁₄ : Site J (France métropolitaine)
3.3.2.1.2	Pyrolyse de la houille (cokerie sidérurgique)	Taille intermédiaire, plusieurs sites de dépôt, goudrons acides seuls, partiellement recouverts par des matériaux	Ex ₁₅ : Site K (France métropolitaine)
5.1.2.6.3	Origines autres (rejets non contrôlés issus d'un complexe sidérurgique)	Très grande taille, plusieurs lagunes, sédiments contaminés par des hydrocarbures et autres substances, terme sous eau	Ex ₁₆ : Sydney (Nouvelle Ecosse, Canada)
5.4.1.5.3	Origines autres (rejets non contrôlés)	Petite taille, une seule lagune, hydrocarbures autres que des goudrons accompagnés, terme source sous eau	Ex ₁₇ : L (France, outre-mer)
5.2.1.6.1	Origines autres (décharge externe)	Grande taille, une seule lagune, hydrocarbures autres que des goudrons accompagnés par d'autres déchets, directement accessible	Ex ₁₈ : Site M (Belgique)
5.3.1.6.2	Origines autres (station de déballastage)	Taille intermédiaire, une seule lagune, hydrocarbures autres que des goudrons accompagnés par d'autres déchets, accessible	Ex ₁₉ : Brest (France métropolitaine)

Synthèse de la typologie des sites inventoriés

La typologie incorpore dix neuf sites de lagunes inventoriés pour lesquels les informations rassemblées sont suffisantes pour positionner chacun des sites en fonction des cinq critères. Parmi ces dix neuf sites, on recense dix sites localisés en France métropolitaine, un site en

outremer, deux sites en Belgique, trois sites au Royaume Uni, un site en République Tchèque, un site en Ukraine, et un site au Canada.

Une majorité des dix neuf sites (douze) est associée au raffinage des produits pétroliers, trois à la pyrolyse de la houille, et quatre, aux origines autres. Certains des sites de la typologie ont fait l'objet d'une réhabilitation ancienne (exemple : stabilisation à la chaux) ou récente (selon des procédés impliquant une stabilisation par malaxage in-situ de la fraction non pompable). La configuration incorporée à la typologie est celle du site réhabilité lorsque celle-ci est ancienne, ou antérieure à la réhabilitation, lorsque cette dernière est récente.

5. Inventaire des techniques géophysiques applicables à la caractérisation des lagunes à hydrocarbures

La partie géophysique de cette étude consiste en un inventaire des techniques géophysiques applicables à la caractérisation des volumes et des masses hétérogènes déposées.

Ces techniques incluent les méthodes électriques (résistivité électrique, polarisation provoquée, polarisation spontanée, mise à la masse), les méthodes magnétiques (magnétisme, électromagnétisme), le radar, la microgravimétrie et les méthodes sismiques (réflexion, réfraction). Certaines de ces méthodes (sismique, radar, résistivité, magnétisme) peuvent être mises en œuvre en forage. Cette utilisation fait aussi l'objet d'une revue au sein de l'inventaire.

La **résistivité** consiste à calculer la résistivité électrique des terrains à partir de la mesure, en surface, du potentiel généré par la circulation au sein du sous sol d'un courant injecté depuis la surface. Les résultats se présentent sous la forme de sections de résistivité (panneau électrique) ou de coupe verticale de résistivité à l'aplomb du point mesuré dans le cas du sondage électrique. La profondeur d'investigation varie entre 0 et 50 m. Cette méthode est sensible aux objets métalliques pouvant être présents ainsi qu'aux courants électriques. Son application se situe au niveau des études structurales (géométrie des lagunes), des études de faciès, ainsi qu'au niveau de la cartographie des panaches de pollution induits. Les goudrons acides seront caractérisés par de faibles résistivités. Il en est de même pour les goudrons non acides altérés. A l'opposé, les goudrons non acides frais seront signés par des résistivités élevées.

La **polarisation spontanée** mesure les différences de potentiel liées aux courants existant naturellement dans le sous-sol. Les résultats obtenus sont des cartes représentant des courbes d'iso potentiel, déterminées par rapport à une électrode de référence. La profondeur d'investigation est comprise entre 0 et 50 m. Il s'agit d'une méthode très sensible aux perturbations électriques. Elle n'est pas adaptée aux études structurales. Elle est, par contre, utilisée pour les études de faciès, incluant la mise en évidence des circulations de fluides (sains ou pollués). Elle se prête bien à la mesure des panaches de pollution. Elle peut mettre en évidence le contact entre goudrons et sols encaissants, ou entre goudrons frais et goudrons altérés. Mais l'interprétation des mesures est délicate car il n'existe pas de relation simple entre la nature des goudrons et la polarisation spontanée.

La **polarisation provoquée** mesure l'effet capacitif des matériaux constitutifs du sous-sol grâce à l'injection d'un courant électrique puis à l'enregistrement des courants de dépolarisation après l'arrêt de l'injection. Il s'agit d'une méthode mise en œuvre en même temps que la résistivité. La profondeur d'investigation est comprise entre 0 et 30 m. Cette

méthode est très sensible aux perturbations électriques industrielles. La polarisation provoquée est peu adaptée aux études structurales. Elle est adaptée à l'étude du contenu des lagunes. Elle permet aussi la cartographie des panaches de pollution. Elle est adaptée à la détection directe des goudrons qui présentent une polarisation provoquée élevée. C'est le cas pour les goudrons acides. Dans le cas des goudrons non acides, la polarisation augmente avec leur degré d'altération.

La **mise à la masse** consiste à mesurer la différence de potentiel engendrée par l'injection de courant dans un corps conducteur. Les résultats obtenus se présentent sous la forme de cartes représentant des courbes d'iso-potential par rapport à une électrode de référence. La profondeur d'investigation est comprise entre 0 et 30 m. Ce type de mesure est très sensible aux perturbations électriques, qu'elles soient d'origine naturelle ou industrielle. La mise à la masse est adaptée aux études structurales ainsi qu'à la cartographie d'un panache de pollution conducteur. Les goudrons acides conducteurs se mettront sensiblement au même potentiel lors de l'injection d'un courant en leur sein. Cette méthode n'est pas applicable aux goudrons non acides frais résistants. Le comportement des goudrons non acides altérés se rapprochera de celui des goudrons acides.

Le **magnétisme** consiste à étudier le champ magnétique terrestre et ses variations. Les résultats se présentent sous la forme de cartes ou de profils mettant en évidence des anomalies du champ magnétique. La profondeur d'investigation est comprise entre 0 et 20 m. Le magnétisme n'est pas adapté aux études structurales ainsi qu'à la détection des panaches de pollution. Il donne, par contre, de bons résultats pour les études de faciès. Cette méthode est utile pour déterminer la présence de masses magnétique ou métallique (fûts, canalisations). Les goudrons (quelque soit leur degré d'acidité) n'ont pas d'incidence sur la mesure du champ magnétique.

L'**électromagnétisme** consiste à calculer la conductivité électrique du sous-sol par l'étude du champ électromagnétique secondaire émis par le sous sol en réaction à l'application d'un champ primaire. Les résultats obtenus se présentent sous la forme de cartes avec des courbes d'iso-conductivité ou de coupes verticales de conductivité (cas du sondage électromagnétique). La profondeur d'investigation est comprise entre 0 et 50 m. Cette méthode est adaptée aux études structurales, aux études de faciès et à la cartographie d'un panache de pollution dans la mesure où celui-ci serait caractérisé par une anomalie conductrice. Les goudrons acides seront caractérisés par des mesures de conductivité élevées. Les goudrons non acides se caractériseront par des mesures faibles à élevées suivant le degré d'altération (goudrons frais résistants ; goudrons altérés : conducteurs).

Le **radar** est basé sur la propagation dans le sol d'ondes émises depuis la surface. Elle étudie les réflexions de ces ondes sur les hétérogénéités du sous-sol. Le paramètre étudié est la vitesse de propagation des ondes radar, ainsi que l'amplitude de leur réflexion sur les interfaces séparant des milieux de propriétés électromagnétiques différentes. La profondeur d'investigation varie entre 0 et 5 m. Les résultats se présentent sous la forme de sections radar où apparaissent des réflecteurs interprétables en terme géologique. Cette méthode est sensible aux ferraillements éventuellement présents. Le radar est adapté aux études structurales, aux études de faciès (contenu des lagunes), ainsi qu'aux études de pollution (mise en évidence de panaches de pollution grâce aux variations de la pénétration des ondes radar). Les goudrons acides seront faiblement pénétrés par les ondes radar. Leur conductivité élevée induira une forte réflexion au niveau de l'interface terrains encaissant / goudrons ainsi qu'une atténuation de l'amplitude des ondes en leur sein. Le comportement des goudrons non acides

altérés sera semblable à celui des goudrons acides. Les goudrons non acides frais se caractériseront par une meilleure pénétration des ondes radar.

La **microgravimétrie** consiste à étudier les variations de l'attraction terrestre en relation avec les variations de densité affectant les terrains superficiels. Les résultats obtenus sont représentés sous la forme de cartes traduisant les variations de densité affectant les terrains superficiels. La profondeur d'investigation varie entre 0 et 20 mètres. Elle est très sensible aux vibrations, notamment issue de la proximité d'environnement industriel. La microgravimétrie est adaptée aux études structurales et aux études de faciès (détection de vides, cavités, etc.). Les goudrons acides se traduisent par une plus faible densité que les terrains encaissants et donc une anomalie négative de gravité. De même que pour les goudrons acides, les goudrons non acides se traduisent par une anomalie négative de gravimétrie.

La **sismique réfraction** étudie la propagation des ondes sismiques émises par le sous sol et réfractées aux toits des couches plus dures. Les résultats sont représentés sous la forme de coupes sismiques ou les terrains sont caractérisés par leur épaisseur et la vitesse des ondes en leur sein. La profondeur d'investigation varie entre 0 et 15 m. Cette méthode est très sensible aux vibrations anthropiques (industrielle, circulation automobile, autres). L'état pâteux des goudrons acides pourra diminuer la vitesse de propagation des ondes et absorber l'énergie des ondes en leur sein. Il en est de même pour les goudrons non acides.

La **sismique réflexion** consiste à étudier la propagation d'ondes sismiques émises dans le sous sol et réfléchies aux interfaces entre les couches. Les résultats se présentent sous la forme de sections sismiques, ou les interfaces et hétérogénéités du sous sol apparaissent sous la forme de réflecteurs, interprétables en terme géologique. La profondeur d'investigation varie entre 5 et 50 m maximum. La sismique réflexion est très sensible aux vibrations d'origine anthropique (industrielle, routière, autres). Cette méthode est adaptée aux études structurales pour les lagunes profondes (au delà de 10-15 m), aux études de faciès (détection d'hétérogénéités des grandes dimensions se traduisant par des phénomènes de diffraction) ainsi qu'à la cartographie de lentilles d hydrocarbures. L'état pâteux des goudrons acides peut diminuer la vitesse, modifier la fréquence et absorber l'énergie des ondes sismiques en leur sein. Il en est de même pour les goudrons non acides.

Certaines de ces méthodes (résistivité, magnétisme, polarisation provoquée, polarisation spontanée, radar, sismique entre forage, sismique réflexion), peuvent être mise en œuvre sur forage. Dans ce cas, on obtiendra une caractérisation précise des terrains vis-à-vis des paramètres étudiés grâce à la corrélation entre la coupe géologique et le profil physique obtenu. Par exemple, pour ce qui est de la sismique réflexion, il sera possible de déterminer précisément la nature des principaux réflecteurs mis en évidence sur les sections sismiques ainsi que les propriétés des terrains localisés entre chacun des principaux réflecteurs. Appliquées aux lagunes a hydrocarbures, ces méthodes peuvent se développer dans les secteurs accessibles aux forages, c'est-à-dire dans le cas des lagunes partiellement ou totalement recouvertes par des matériaux ainsi qu'en bordure des lagunes partiellement ou totalement sous eau.

6. Etude de cas (Site G, France métropolitaine)

Présentation générale

Le site G (France métropolitaine), a fait l'objet d'une campagne d'investigations géophysique. Il est composé de 3 lagunes de goudrons acides mitoyennes ayant fait l'objet en 1985 d'un traitement par stabilisation d'une partie des goudrons. Il s'agit du type 2.4.2.2 qui est issu du raffinage des produits pétroliers. Le terme source est de petite taille, réparti au niveau de plusieurs sites de dépôts. Il est composé par des goudrons acides et par d'autres déchets. Le terme source est totalement remblayé.

Les premières évaluations (études historiques, sondages) indiquent la présence de 3 lagunes stockant un total d'environ 8126 tonnes de goudrons dont 7373 tonnes de goudrons traités (densité : 1600 kg/m³) et 750 tonnes de goudrons non traités (densité : 1500 kg/m³). La consistance des goudrons non traités est solide et friable. Celle des goudrons traités est solide et plastique.

Investigations géophysiques

Plusieurs méthodes géophysiques ont été appliquées à l'investigation du site : l'électromagnétisme et la résistivité (panneaux électriques) en vue de déterminer la géométrie du site de lagunes, le radar appliqué à l'investigation du recouvrement. La polarisation spontanée et la mise à la masse ont été appliqués à l'étude du proche environnement du site de lagunes afin de préciser la présence d'éventuels panaches de pollution.

L'électromagnétisme, associé aux panneaux électriques, a mis en évidence la géométrie du site de lagunes et a permis la différenciation entre les goudrons acides traités et les goudrons acides non traités. La carte de conductivité et les coupes de résistivité confirment la présence de 3 lagunes mitoyennes. Les contours des 3 lagunes apparaissent nettement du fait du contraste de résistivité entre les goudrons et les terrains encaissants. Dans le cas de la lagune traitée (goudrons résistants), les terrains encaissants ont une conductivité inférieure à 26 à 40 mS/m alors que les goudrons sont entre 40 et 78 mS/m. Dans le cas des 2 lagunes non traitées (goudrons conducteurs), le cœur des dépôts peut atteindre 270 mS/m. Ces résultats confortent et précisent les informations historiques relatives à l'exploitation du site de lagunes.

Le radar appliqué a l'étude du recouvrement met en évidence l'interface entre le sommet des goudrons et la base du recouvrement terrigène. Cette interface est clairement marquée par un réflecteur des ondes radar.

La carte de polarisation spontanée met en évidence des zones polarisées (valeurs de potentiel de -10 à -28 mV) plus conductrices, montrant l'écoulement souterrain des polluants en aval du site de lagunes. L'épaisseur de terrain concerné par ces écoulements souterrains est au maximum d'environ 20 m comme cela est montré par la coupe de résistivité. Cette dernière indique aussi une résurgence probable des polluants en aval écoulement du site, à une distance d'environ 200 à 300 m de sa limite. La carte de mise à la masse vient confirmer les résultats la polarisation spontanée, et conforter l'hypothèse de l'existence d'écoulements souterrains.

7. Proposition de sujet de recherche à l'issue des parties 1 et 2

Le sujet proposé comprend l'élaboration d'un protocole de caractérisation détaillé (volumes ; compositions chimiques), l'application de ce protocole à un nombre limité de sites pilotes sélectionnés pour leur intérêt, puis la recherche des contraintes et opportunités de réhabilitation mises en évidence par les résultats de la caractérisation.

Il suppose la possibilité d'assurer des investigations grandeur nature sur les sites pilotes et / ou, en complément d'investigations en partie déjà réalisées (ex : site G). Sauf cas particulier, les sites pour lesquels les connaissances historiques (évolution des procédés et des produits, ancienneté des dépôts) sont détaillées seront privilégiés au dépend de ceux pour lesquels peu d'informations sont disponibles.

Le sujet comprend une étape de prélèvements d'échantillons en vue de l'application d'un programme d'analyses très complet au laboratoire. Le prélèvement des échantillons sera réalisé après la délimitation des grandes hétérogénéités affectant les volumes et les masses stockés. Au laboratoire, sera défini un programme d'analyses étendu et standardisé destiné à couvrir, entre autres, les hydrocarbures aromatiques polycycliques (16 EPA et autres HAP), les hydrocarbures extractibles aux solvants (cyclohexane/acétone ; dichlorométhane), ainsi que les hydrocarbures non extractibles avec ces mêmes solvants. Ce programme sera arrêté après un examen détaillé des difficultés pouvant être rencontrées lors du processus analytique appliqué aux échantillons de goudrons (lié par exemple à la viscosité élevée des produits).

Le passage des résultats de la caractérisation aux contraintes et opportunités de réhabilitation comme finalité du projet suppose d'établir préalablement une revue des procédés aujourd'hui appliqués. La revue des procédés se fera grâce à une analyse de la littérature disponible incluant les documents issus des sites récemment traités. Un lien sera recherché avec les entreprises opérant au niveau Européen, et notamment, en Allemagne.

EXTENDED ABSTRACT

The study proposed by RE.CO.R.D. is composed of two distinct parts: part 1 concerns the description of a typology for hydrocarbons lagoons; part 2 consists in a inventory of the geophysical techniques that can be applied to the characterization of the volumes and deposited heterogeneous masses. A third part, currently still conditional, consists in the elaboration of a methodology to characterize volumes and stored heterogeneous masses, that will be adapted to each type of identified lagoon.

The aims of the study are: i) to realize an inventory of the main known lagoons in France and Europe, in order to build a working base for the study; ii) to regroup the specific expertise knowledge on the subject; iii) to prepare an original characterization methodology suitable for industrials, engineers, and research consultancies; iv) to identify and propose to RE.CO.R.D. development axes for this methodology.

1. Definition and perimeter of the study

Hydrocarbons lagoons are defined, in the sense of the study, as superficial, natural or artificial cavities, deprived of watertight bottom, and of any lateral watertight wall or membrane. Their source term is characterized by the presence of hydrocarbons in significant amounts, though other types of wastes can also be associated. This study project does not take into account internal deposits that would contain a majority of wastes other than hydrocarbons.

2. Origins of hydrocarbons lagoons

The hydrocarbons lagoons have been regrouped in five groups according to their origins: 1) oil exploration and production; 2) oil refining; 3) coal pyrolysis; 4) accidents implying hydrocarbons; and 5) other origins.

Oil exploration and production could have been the origin of two types of lagoons sites in producing countries: bogs (or drilling mud deposits) and burn pits. The latter type could also be encountered on old refining sites. No site of these types are referenced by BASOL. They are, on the contrary, largely represented in the great crude oil producing countries.

Oil refining (sulfuric refining) has been the origin of many sites referenced by BASOL. Sulfuric refining was destined to the processing of light cuts, petrol bases, lubricating pure oils, of paraffins and for the preparation of white medicinal oils. It generated acid tars that were stocked inside lagoons. Acid tars can also be generated by the conventional re-refining process of used oils.

In the past, acid tars generated by these processes could have been stored inside lagoons. BASOL references 10 sites, which lagoons are tied to oil refining, concerning 4 closed refineries (Gerland in Corbehem, BP in Courchelettes, Société de Bourron in Bourron Marlotte, Okoil in Fourmies), 4 working refineries (Total à Gonfreville l'Orcher, Esso à Notre Dame de Gravenchon, Kalor dee Geeraert & Matthys today BP in Dunkerque), as well as 2 sites associated to used oils refining (CBL terrain, next to Eco Huile in Lillebonne, Lemahieu garbage dump in Abscon).

Coal pyrolysis might have generated hydrocarbons lagoons sites (old gas factories are excluded from this study, since tars were stocked inside cemented pits). BASOL references six lagoons sites deriving from coal pyrolysis; four being linked to old mining cokeworks (Gosnay, Drocourt, Auby, Lourches), one to a dismantled steel industry cokework (SIM), and the last to a former coal tars distillation factory (Société Chimique de Gerland in Port-Saint-Louis du Rhône).

Accidents implying hydrocarbons can be the origin of hydrocarbons lagoons. Concerning major accidents, it is the temporary stocks of waste deployed along the coast before their repatriation (Amoco Cadiz, 1978 and Tanio, 1980) that could have been the origin of lagoons in the sense of this study's subject. No site of this type is referenced by BASOL. In the case of minor accidents taking place on working exploitation structures, two sites related to a refinery (Berre refinery from Shell) are referenced inside BASOL.

Other origins regroup sites with various functions (ships' tank purges, hydrocarbons accumulations in the environment) that cannot be related to the four precedent categories. At least two sites among the BASOL reference are concerned by this 5th category (an ancient purging station in Brest, a thermal power plant in Degrad des Cannes in Guyana).

3. Characteristics of stored products and present phases

The physico-chemical characteristics of the products stored inside the lagoons are dependent on the source processes, exploitation parameters and on the evolutions of the products after their deposit. In parallel, a given lagoon, during its exploitation, could have taken delivery of tars from several origins, as well as their associated wastes (paraffin, used filters, used earths, and others...). Other wastes could have been joined to the tars (wastes coming from deconstruction, polluted grounds, barrels, ...) endowing a strong heterogeneity to the whole deposit.

The case of acid tars produced by sulfuric refining

Acid tars coming from sulfuric refining show a high viscosity, a lower density than soils, and a brown to black color. They emit an "oily" smell, typical of oil products, accompanied by an acrid smell linked to sulfur dioxide. They are also accompanied by acid vapors. The pH of these tars is very acid (inferior to 2, sometimes even below 1).

Several phase (organic, acid, water, impurities) can be distinguished, which preponderance varies significantly with the context, and with the organization of the lenses or layers inside a given lagoon.

The Lviv lagoon (Ukraine) shows a basal layer which concentrates the organic fraction, an intermediary layer (acid and aqueous), and an upper layer incorporating the lighter hydrocarbons. This description seems to be typical of lagoons with several phases, even if in details, aqueous and acid lenses can be contained inside the highly viscous organic layer. A characterization of the basal layer of the Lviv lagoon provides the following distribution (in weight): organic fraction from 77.2 to 81 %, acid fraction from 1.8 to 1.9 %, aqueous fraction from 7 to 7.2 %, impurities from 10.1 to 13.7 %. This distribution is susceptible to vary strongly from one lagoon to another.

In complement, characterization studies of the Derbyshire lagoons, in the UK, show the presence of tars composed by asphalt derivatives of high molecular weights, mixed with polar hydrocarbons and middle distillation cuts; free saturated hydrocarbons, as well as a very acid, sulfates-rich aqueous phase.

In a more general approach, the main represented families inside the deposits are aliphatic hydrocarbons, organic hydrocarbons, phenols, metals, acids, sulfonated hydrocarbons and gases.

4. Typology of inventoried hydrocarbons lagoons

The typology of inventoried lagoons sites is based on five criteria applied to the source term: the origin, tonnage, distribution, nature and accessibility. Depending on the characteristics specific to each inventoried lagoon, a mark is applied to each criterion according to the following lecture grid:

Criteria	Cutting	Mark
Origin of the source term	Oil exploration and production	1
	Oil refining	2
	Coal pyrolysis	3
	Accidents	4
	Other origins	5
Estimation of the source term	150000 tons	1
	50000 to 150000 tons	2
	10000 to 50000 tons	3
	< 10000 tons	4
Distribution of the source term	1 deposit or lagoon	1
	Several deposits or lagoons	2
Nature of the source term	Acid tars only (including aqueous phase)	1
	Acid tars and other wastes	2
	Other tars only	3
	Other tars and other wastes	4
	Hydrocarbons other than tars	5
	Hydrocarbon other than tars with other wastes	6
Accessibility of the source term	Directly accessed	1
	Partially or totally covered with materials	2
	Partially or totally underwater	3
	Partially covered with materials and underwater	4

Criteria selected for the elaboration of the typology

Each lagoon site is therefore defined by a 5 figures code. The 5 criteria correspond to information commonly available in the literature, and to important characteristics of the lagoons' sites. They have a strong implication in term of diagnosis and/or rehabilitation. Finally, the criteria have been chosen in order to be sufficiently discriminating for the constitution of the typology's base.

Some sites are composed of several adjoined lagoons. In that case, the site is considered in its totality inside the typology. For lagoons sites that have been recently rehabilitated, the situation anterior to the rehabilitation is included in the typology.

Concerning ancient rehabilitations, it is the current situation that is considered in the typology.

Type	Origin	Characteristics	Lagoons site
2.1.2.2.1	Oil refining	Very large size, several deposit sites, acid tars and other wastes, source term directly accessed	Ex ₁ : Site A (Belgium)
2.1.2.?.?	Oil refining	Very large size, acid tars and other wastes, distribution and accessibility is not documented	Ex ₂ : Lviv (Ukraine)
2.2.1.2.1	Oil refining (benzol)	Large size, unique deposit site, acid tars and other wastes, partial fill-up of the source term (may incorporate an acid water layer)	Ex ₃ : Site B (RU)
	Oil refining (benzol)		Ex ₄ : Site C (RU)
2.2.2.2.1	Oil refining (used oils)	Large size, several sites, acid tars and other wastes, direct access of the source term (may incorporate a water layer)	Ex ₅ : Cinderhills (Derbyshire, RU)
2.3.1.2.2	Oil refining (solvents, oils, paraffins)	Intermediate size, unique deposit site, acid tars and other wastes, quasi-total fill-up	Ex ₆ : Site D (Metropolitan France)
2.3.2.2.2	Oil refining	Intermediate size, several deposit sites, acid tars and other wastes, totally filled-up lagoons	Ex ₇ : Site E (Metropolitan France)
	Oil refining		Ex ₈ : Site F (Metropolitan France)
2.4.2.2.2	Oil refining	Small size, several deposit sites, acid tars and other wastes, totally filled-up lagoons	Ex ₉ : Site G (Metropolitan France)
	Oil refining		Ex ₁₀ : Site H (Metropolitan France)
2.4.1.2.1	Oil refining (Re-refining of used oils?)	Small size, one lagoon, acid tars and other wastes, direct access to the source term	Ex ₁₁ : Décharge Lemahieu (Metropolitan France)
2.4.1.2.?	Oil refining (solvents and mineral oils)	Small size, one deposit site, acid tars and other wastes, accessibility is not documented	Ex ₁₂ : Site I (Metropolitan France)
3.2.2.4.2	Coal pyrolysis (and metallurgy)	Large size, several deposit sites, tars and other wastes, covered with soil	Ex ₁₃ : Frydek - Mistek (Czech Republic)
3.2.2.?.2	Coal pyrolysis (distillation of coal tars)	Intermediate size, several deposit sites, tars acidity is not documented, partially covered with materials	Ex ₁₄ : Site J (Metropolitan France)
3.3.2.1.2	Coal pyrolysis (cokework)	Intermediate size, several deposit sites, acid tars only, partially covered with materials	Ex ₁₅ : Site K (Metropolitan France)
5.1.2.6.3	Other origins (uncontrolled rejections from an iron and steel industry)	Very large size, several lagoons, sediments contaminated by hydrocarbons and other substances, underwater source term	Ex ₁₆ : Sydney (New Scotland, Canada)
5.4.1.5.3	Other origins (uncontrolled rejections)	Small size, one lagoon, hydrocarbons other than tars with other substances, underwater source term	Ex ₁₇ : L (France, Overseas)
5.2.1.6.1	Other origins (external dump)	Large size, one lagoon, hydrocarbons other than tars with other wastes, source term is directly accessed	Ex ₁₈ : Site M (Belgium)
5.3.1.6.2	Other origins (purge station)	Intermediate size, one lagoon, hydrocarbons other than tars with other wastes, source term directly accessed	Ex ₁₉ : Brest (Metropolitan France)

Inventoried sites' typology synthesis

The typology incorporates nineteen inventoried lagoons sites, for which the gathered information is generally sufficient to position them according to the five criteria of the lecture grid. Among these nineteen sites, ten are localized in metropolitan France, one in overseas France, two sites in Belgium, three in the United Kingdom, one in the Czech Republic, one in Ukraine, and one in Canada.

A majority of these nineteen sites (twelve) are associated with oil refining, three with coal pyrolysis, and four to other origins. Some of the typology's sites have been rehabilitated anciently (by lime stabilization) or recently (stabilization by in-situ working up of the fraction than cannot be pumped).

5. Inventory of the geophysical techniques applicable to the characterization of hydrocarbons lagoons.

The geophysical section of this study consists in an evaluation of the geophysical techniques applicable to the characterization of the volumes and deposited heterogeneous masses.

These techniques include electrical techniques (resistivity, induced polarization, spontaneous polarization, “mise à la masse” or “grounding”), magnetic, electromagnetic techniques (including radar), microgravimetry, and seismic techniques (reflection, refraction). Some of these methods can be performed inside boreholes.

Resistivity consists in calculating the electrical resistivity of the ground from measurements, on the surface, of the potential generated by the circulation, in the underground, of a current injected from the surface. Results are presented as resistivity sections (electrical panel), or resistivity soundings providing only vertical information (can be compared to a virtual or nondestructive borehole). The investigation depth varies from 0 to 50 m. This technique is sensitive to buried metallic objects as well as perturbations from electric currents (mainly of anthropic origin). It is mainly used for structural studies (lagoon’s geometry), facies studies, and for the cartography of induced pollution plumes. Acid tars will be characterized by weaker resistivities, as well as degraded regular tars. On the contrary, fresh or recent regular tars will distinguish themselves by higher resistivities.

Spontaneous polarization (PS) is based on measurements of surface variations of potential linked to currents naturally existing in the ground. Results are presented as maps of isopotential curves, determined regarding a reference electrode. The investigation depth ranges between 0 and 50 m. This technique is very sensitive to electrical perturbations. It is not suitable for structural investigations. It is, on the contrary, used for facies studies, including the highlighting of fluid circulations (polluted or not). PS is well suited to the characterization of pollution plumes. Also, it is capable to show contacts between tars and the surrounding natural ground, or between fresh, recent tars and altered ones. Nevertheless, the measurements are delicate to interpret, since there exists no straightforward relation between the tar’s nature and the PS response.

Induced polarization (IP) is based on the study of the capacitive capability of the underground materials, when submitted to a current injected from the surface. It is the depolarization currents, appearing right after the interruption of the injection current, that are effectively measured, as a potential difference evolving (decreasing) with time. Nowadays, IP acquisition is usually performed simultaneously with the resistivity technique with the same equipment. The investigation depth is comprised between 0 and 50 m. IP, as all electrical techniques, is very sensitive to natural and industrial electrical perturbations. It is well suited to direct detection of acid and altered tars, which provide a stronger IP response (chargeability). The chargeability response increases with the tar’s alteration degree.

“Mise à la masse” (Grounding) consists in measuring, on the ground’s surface, the difference of potential created by the injection of a current inside an underground conductive body. Results are presented as maps of isopotential curves determined regarding a reference electrode. The investigation depth goes from 0 to 30 m. This technique is very sensitive to natural or industrial electrical perturbation. The “Mise à la masse” is well suited to structural studies, as well as to the cartography of underground pollution plumes (as long as they are

more conductive than the surrounding materials). Conductive altered or acid tars will sensibly reach a certain fixed potential when injected with a current. This technique is not suitable to characterize recent, fresh tars, which are more resistive.

Magnetism consists in studying the earth's magnetic field and its variations. Results are presented in the form of maps, or profiles highlighting anomalies of the earth's magnetic field. The investigation depth is comprised between 0 and 20 m. Magnetism is not adapted to structural studies, or to pollution plumes detection. It provides good results in facies studies. This technique is useful to determine the presence of magnetic or metallic masses (barrels, pipes...). Tars, regardless of their alteration or acidity degree, have no incidence on the measurement of the magnetic field.

Electromagnetism is based on the calculation of the underground conductivity through the study and measurement of the so-called secondary electromagnetic field, emitted by the underground materials in reaction to the application of a primary field.

Results are presented in the form of conductivity maps – showing isoconductivity curves, or vertical cuts of conductivity. The investigation depth ranges between 0 and 50 m. This method is well suited for structural and facies studies, and could also be used to map a pollution plume, provided that it could be regarded as a conductive anomaly. Acid and altered tars will distinguish themselves by showing higher conductivity values.

Radar is based on the propagation in the underground of waves emitted at radar frequencies from the surface. The technique studies the reflection of these waves on the underground interfaces and heterogeneities. The studied parameter is the radar waves' propagation velocity, as well as the amplitude of their reflections on the interfaces separating mediums with different electromagnetic properties. The depth of investigation goes from 0 to 5 m. Results are presented in the form of radar vertical sections, showing reflectors and/or heterogeneities, that can be interpreted in geological terms. This method is sensitive to superficial iron frameworks, and will more generally be impaired by the presence of any large metallic object near the surface (masking effect). The Radar, also called GPR for Ground Penetrating Radar, is well suited for structural studies, and facies studies (contents of the lagoon). It is also adapted for direct pollution studies, allowing for instance to detect pollution plumes by studying the variations of the radar waves' depth of penetration. Acid tars will be weakly penetrated by radar waves due to their higher conductivity. In more, their high conductivity will induce a strong reflection at the interface between them and the surrounding materials, whereas amplitudes will be attenuated inside them. Fresh, unaltered tars will be more resistive, and will therefore cause less attenuation on the radar waves' amplitudes.

Microgravimetry is based on the measurements of the earth's attraction, which local variations can be related with the variation of density of the superficial terrains. Results obtained are maps representing these variations, corrected from a certain number of natural and regional factors. The investigation depth varies between 0 and 20 m. It is very sensitive to vibrations, particularly when performed near industrial facilities or highways. Microgravimetry is adapted to structural and facies studies (detection of cavities, etc...). Acid tars show a lower density than other ground materials, and can therefore be detected and mapped by this method, since they will appear as negative gravimetric anomalies. There should not be any difference in term of gravimetric anomaly, between altered, acid tars and fresh, recent tars.

Refraction seismic studies the propagation of seismic waves emitted from the surface, and refracted on the top of harder layers. Results are presented in the form of seismic vertical cuts,

where the layers are characterized by their thickness and by the velocity of the waves inside them. The investigation depth ranges from 0 and 15 m. This technique is very sensitive to anthropic vibrations (industrial, or from nearby high road traffic). The viscous or pasty nature of tars (acid or not) could diminish the waves' velocity as well as absorb their energy when propagating inside them.

Reflection seismic consists in studying the propagation of seismic waves emitted in the ground and reflected at the interfaces between the different layers. The studied parameters are the amplitudes and frequencies variations of the waves over time. Results are presented in the form of seismic sections, where interfaces and heterogeneities appear as reflectors interpretable in geological terms. The investigation depth varies between 5 to 50 m. Reflection seismic is very sensitive to vibrations (anthropic, industrial, caused by heavy traffic or strong winds, etc...). This technique is adapted to structural studies for rather deep lagoons (over 10-15 m), to facies studies (detection of large heterogeneities causing diffraction phenomena), and to the cartography of hydrocarbons lenses. The viscous or pasty nature of tars (acid or not) could diminish the waves' velocity, alter their frequency, as well as absorb their energy when propagating inside them.

Some of these techniques (resistivity, magnetism, PP, PS, radar, reflection seismic) can be performed in (or between) boreholes. In that case, one will obtain a precise characterization of the underground materials regarding the studied parameters, by correlating the geological cut with the variations of measured data. For instance, in reflection seismic, it will be possible to precisely determine the nature of the main reflectors identified on the seismic sections, as well as the properties of the materials localized between each of these main reflectors. These techniques can be applied anywhere, provided that drilling machines can operate: lagoons partially or completely covered by materials, or the borders of partially or completely flooded lagoons.

6. Case study (Site G, Metropolitan France)

General presentation

Site G (Metropolitan France) has been the subject of a geophysical investigation campaign. The site is composed of 3 adjoined, acid tars lagoons, partially submitted to a stabilization process in 1985. The type of this lagoon is 2.4.2.2.2, which concerns lagoons resulting from oil refining. The source term is of little size, and distributed among several dumping locations. It is composed of aced tars and other wastes. The source term has been completely filled up.

The first evaluations (historic studies, soundings) indicate the presence of 3 lagoons storing a total amount of about 8126 tons, among which about 7373 tons of tar have been processed (density: 1600 kg/m³), and 750 tons of tar remain unprocessed (density: 1500 kg/m³). The consistency of the unprocessed tars is hard and friable, whereas the processed tars' consistency is hard and viscous.

Geophysical investigations

Several geophysical methods and techniques have been applied to the site's investigation: electromagnetism and resistivity (electrical panel) in order to determine the geometry of the lagoons site, Radar applied to the study of the superficial cover. SP and "Mise à la Masse" (or

grounding) where used to investigate the near environment of the lagoons site, in order to precise the presence of possible pollution plumes.

The conductivity map, associated with the electrical panels, has highlighted the geometry of the lagoons, and allowed to differentiate processed and unprocessed acid tars. They also confirmed the presence of 3 adjoined lagoons: their outlines appear clearly because of their large resistivity contrast with the surrounding terrains. In the case of the processed lagoon (resistive tars), the surrounding materials have a conductivity inferior to 26 to 40 mS/m, whereas tars have much higher values, between 40 and 78 mS/m. In the case of the 2 unprocessed lagoons (conductive tars), the deposits' core can reach up to 270 mS/m. These results reinforce and precise the historical information relative to the exploitation of the lagoons site.

Radar applied to study the superficial layers shows the interface between the top of the tars and the base of the soil cover. This interface is clearly outlined by a radar waves reflector.

The SP map highlights conductive areas, outlining the pollutants' flowing below the site. The thickness of the terrains concerned by this flowing reaches a maximum of 20 m, as showed by the resistivity section. The latter also indicates a probable resurgence of the pollutants below the site, at a distance of about 200 to 300 m from its border. The "Mise à la masse" map confirms the SP results, and reinforces the hypothesis of the existence of underground flows.

7. Proposition of a research subject following parts 1 and 2

The proposed subject includes the elaboration of a detailed characterization protocol (volumes, chemical structures), and the application of this protocol to a limited number of pilot sites, selected from their interest; and then, the research of the rehabilitation constraints and opportunities provided by the characterization's results.

It supposes the possibility to ensure real size investigations on the pilot sites, possibly in complement of investigations partly already performed (ex: site G). Apart particular cases, sites for which the historical knowledge (evolution of processes and products, age of the deposits) is quite detailed will be privileged.

The subject includes the taking of samples for a complete laboratory analysis program. taking of the samples will be performed after outlining the large heterogeneities affecting the stored masses and volumes. A standardized and extended analysis program will be defined in laboratory, in order to cover, among others, polycyclic aromatic hydrocarbons (16 EPA and others HAPs), hydrocarbons that can be extracted with solvents (cyclohexan/acetone ; dichloromethane) as well as hydrocarbons that cannot be extracted with these same solvents. This program will be stopped after a detailed examination of the difficulties that could be encountered during the analytic process applied to the tar samples (linked for instance to the high viscosity of the products).

The transition from the results of the characterization to the constraints and rehabilitation opportunities, as main goal of the project, implies the establishment of a review of the processes applied today. The processes' review will be achieved by an analysis of the available literature, including the documents coming from the different recently processed sites. A link will be sought with companies operating at European level, and in particular, in Germany.