

# UNIVERSITE DE LIMOGES

Ecole doctorale Science - Technique - Santé  
Faculté des Sciences et Techniques  
Groupement de Recherche Eau Sol Environnement

## THESE

Pour obtenir le grade de  
Docteur de l'Université de Limoges  
Discipline : Chimie et Microbiologie de l'eau

Présentée et soutenue publiquement par

**Aurély PARODI**

Le 10 décembre 2010

*Impact de nouveaux modes de gestion sur l'accélération de  
la dégradation de déchets ménagers :  
approche multiparamétrique et multi-échelle.*

Thèse dirigée par le Pr Geneviève FEUILLADE

## JURY

### Rapporteurs

Rémy GOURDON - Professeur - LGCIE - INSA de Lyon  
Philippe THONART - Professeur - CWBI - Université de Liège

### Examineurs

Michel BAUDU - Professeur - GRESE - Université de Limoges  
Théodore BOUCHEZ - Docteur - CEMAGREF, Antony  
Geneviève FEUILLADE - Professeure - GRESE - Université de Limoges  
Alicia MANSOUR - Ingénieur - Veolia Environnement Recherche et Innovation, Limay  
Catherine MASSIANI - Professeure Emérite - LCE - Université de Provence, Marseille



# Remerciements

---

Après trois années passées à travailler sur ce passionnant sujet, voilà venue une section très importante, celle des remerciements... peut-être la plus difficile dans une thèse car chaque personne qui y est citée mérite la plus belle des attentions....

La réalisation d'une thèse est l'occasion de rencontrer et d'échanger avec de nombreuses personnes. C'est donc avec un grand plaisir et beaucoup d'émotion que je consacre ces quelques lignes en signe de gratitude et de reconnaissance à tous ceux qui ont contribué de près ou de loin à l'élaboration de ce travail. Ainsi, comme tout un chacun, je vais essayer de faire au mieux pour que tous les gens qui liront ces quelques lignes sachent qu'elles ont été écrites avec tout mon cœur pour transcrire la patience, la disponibilité et les précieux conseils de ces personnes qui ont un jour croisées mon chemin...

Tout d'abord, je ne pourrais pas commencer ces remerciements sans évoquer la personne qui m'a proposé ce sujet de thèse et qui m'a encadré tout au long de ces 3 années : Geneviève Feuillade, Professeur au GRESE de l'Université de Limoges. Tu m'as fait découvrir et aimer cette thématique si passionnante qu'est la gestion des déchets et son impact sur l'environnement, je t'en suis infiniment gré. De toi, j'ai toujours reçu les encouragements et le soutien dont un doctorant a besoin, tu n'as cessé de me prodiguer tes conseils et tes suggestions pertinentes tout au long de ces 3 années mais également au cours de mon master recherche. Et je ne cite même pas le nombre d'heures incalculables que tu as passé à lire, corriger, relire, et recorriger ce travail. Pour tout cela qui a sans aucun doute contribué au bon déroulement de notre collaboration, je te remercie.

Mes remerciements s'adressent également à Rémy Gourdon, Professeur au LGCIE de l'INSA de Lyon et Philippe Thonart, Professeur au CWBI de Université de Liège pour l'attention qu'ils ont porté à mon travail en tant que rapporteurs. De même, je tiens à remercier Catherine Massiani, Professeur émérite au LCE de l'Université de Provence à Marseille, Alicia Mansour, Ingénieur au Centre de Recherche de Veolia Environnement, Théodore Bouchez, chargé de recherche au Cemagref d'Anthony et Michel Baudu, Professeur au GRESE de l'Université de Limoges pour l'intérêt qu'ils ont accordé à ce travail en acceptant de le juger.

Tout au long de ses 3 années de collaboration, j'ai pu apprécier la gentillesse et la bonne humeur d'Alicia Mansour et d'Estelle Redon, Ingénieurs au Centre de Recherche de Veolia Environnement, qui ont bien voulu répondre patiemment à mes nombreuses questions et requêtes, pour cela je les en remercie et leur exprime tout le plaisir que j'ai eu à travailler avec elles.

Je ne ferais pas le pari de les énumérer tous au risque d'en omettre certains mais je tiens à remercier l'ensemble des membres du GRESE et de l'ENSIL pour leur accueil chaleureux et leurs conseils avisés, sans vous, mes conditions de travail auraient sans doute été très différentes et beaucoup moins agréables.

J'adresse toutefois une attention particulière à Audrey, Ficus et Marie-Line, bien plus que des simples collègues de boulot, ils sont devenus au fil du temps de véritables amis et je me souviendrais longtemps de ces dernières années d'étude... merci à vous pour tous ces bons moments.

Je profite également de ces quelques lignes pour remercier mes collègues thésards et post-doc Brahim, Junfeng, Kaïs, Thibault et Thouraya pour tous les bons moments que nous avons passés au labo, dans le “bureau des thésards” et ailleurs... Je vous souhaite bonne chance pour la suite et j’espère que vous garderez autant de souvenirs que moi de ces quelques années passées à l’ENSIL. Une mention spécifique pour Teddy qui a toujours été présent sans avoir même besoin de le lui demander et qui je pense et je l’espère sera encore présent longtemps.

Je remercie également Maud mon ex-master recherche et nouvellement thésarde à son tour pour ses supers résultats et sa chasse sans merci aux fautes d’orthographe et diverses coquilles de ce manuscrit même s’il faut admettre que certaines demeurent encore récalcitrantes.

Ce travail a également induit quelques sacrifices, notamment dans les derniers mois. A ce titre, je tiens à remercier toutes les personnes (amis, famille...), que je ne citerais pas pour être sûre de n’oublier personne et qui, je l’espère, auront compris pourquoi j’ai donné si peu de nouvelles ces derniers temps...

A titre plus personnel, je remercie ma famille qui peut être découvre aujourd’hui ce que je faisais réellement depuis tant d’années d’étude et qui éprouve très certainement dans son cœur, avec retenue, une petite dose de fierté ; ils m’ont toujours donné l’espoir d’aller de l’avant. Je pense tout spécialement à ma sœur Pauline, qui même loin a toujours été là pour moi dans tous les moments de ma vie. J’adresse également une pensée particulière à toi, maman, qui je l’espère aurais été fière de ce que j’ai pu accomplir jusqu’à présent...

Je remercie également ceux que je considère comme ma seconde famille, Jojo, Colette, Pierre, Thomas, Dimitri, Pascale... pour leur soutien moral de tout instant. Mes remerciements vont également à l’ensemble de la famille Chemin pour l’accueil chaleureux qu’elle m’a réservé il y a maintenant plus de 3 ans et pour toutes les attentions qu’elle me porte dans les moments les plus difficiles comme les plus heureux.

Je terminerais ces remerciements par la personne la plus chère à mon cœur, Jibé, sans qui tout cela ne se serait si bien passé... Pour faire et écrire une thèse, il faut croire et avoir confiance en soi... et cette confiance, c’est à toi que je la dois, tu m’as toujours soutenu dans les meilleurs moments comme dans les plus difficiles... Je ne sais pas ce que je serais devenu ou si j’aurais eu le courage de poursuivre ce travail si je ne t’avais pas rencontré... merci pour tout mon amour...

*A toi,*  
*A Vous,*  
*A Nous...*



# TABLE DES MATIERES

---

<b>INTRODUCTION.....</b>	<b>1</b>
<b>Partie I -     <b>SYNTHESE BIBLIOGRAPHIQUE</b> .....</b>	<b>5</b>
I. <b>PREAMBULE A LA GESTION DES DECHETS</b> .....	7
I.1. <i>La gestion des déchets en Europe</i> .....	7
I.2. <i>La gestion des déchets en France</i> .....	8
I.3. <i>Règlementation européenne et française</i> .....	10
II. <b>MECANISMES DE DEGRADATION DES DECHETS</b> .....	10
II.1. <i>Dégradation aérobie de la matière organique</i> .....	11
II.2. <i>Dégradation anaérobie de la matière organique</i> .....	12
II.3. <i>Facteurs influençant la dégradation d'un déchet lors de l'enfouissement</i> .....	15
III. <b>MODES DE GESTION DES DECHETS</b> .....	18
III.1. <i>Le compostage</i> .....	18
III.2. <i>La méthanisation</i> .....	21
III.3. <i>L'enfouissement</i> .....	24
III.4. <i>Le concept Bioréacteur</i> .....	25
III.5. <i>Nouvelles voies de gestion des déchets : Prétraitements avant enfouissement</i> .....	28
III.5.1. <i>Co-enfouissement des déchets avec des mâchefers</i> .....	33
III.5.2. <i>Modalités d'inoculation</i> .....	34
III.5.3. <i>Prétraitement mécanique et biologique</i> .....	35
IV. <b>COMPORTEMENT DES DECHETS EN CONDITIONS D'ENFOUISSEMENT</b> .....	39
IV.1. <i>Caractéristiques d'un déchet ménager français</i> .....	39
IV.1.1. <i>Composition du déchet ménager français</i> .....	40
IV.1.2. <i>Evolution au cours de la dégradation</i> .....	42
IV.1.3. <i>Impact d'un prétraitement sur les caractéristiques du déchet</i> .....	43
IV.2. <i>Qualité du biogaz produit</i> .....	44
IV.2.1. <i>Evolution de la composition du biogaz</i> .....	45
IV.2.2. <i>Facteur influençant la production de biogaz</i> .....	45
IV.3. <i>Qualité du lixiviat généré</i> .....	46
IV.3.1. <i>Composition globale d'un lixiviat</i> .....	47
IV.3.2. <i>Matière organique</i> .....	49
IV.3.3. <i>Métaux</i> .....	52
IV.3.4. <i>Impacts du mode de gestion sur la composition du lixiviat</i> .....	55
V. <b>EVALUATION DE L'IMPACT D'UN PRETRAITEMENT</b> .....	56
V.1. <i>Essais en batch sur solide</i> .....	56
V.1.1. <i>Tests de biodégradabilité du déchet</i> .....	56
V.1.2. <i>Test de Lixiviation du déchet</i> .....	59
V.2. <i>Essais pilotes</i> .....	62
V.3. <i>Essais sur site</i> .....	64
V.4. <i>Caractérisation des déchets et des lixiviats</i> .....	65
V.4.1. <i>Caractérisation physicochimique des déchets</i> .....	65
V.4.2. <i>Suivi analytique et caractérisation des lixiviats</i> .....	68
V.5. <i>Critères de stabilité</i> .....	73

<b>Partie II - Matériels et méthodes .....</b>	<b>77</b>
I. SCHEMA EXPERIMENTAL SUIVI.....	79
I.1. <i>ELIA : bilan final d'une longue étude</i> .....	79
I.2. <i>BIOPTIME : début d'une nouvelle étude</i> .....	80
II. DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX.....	84
II.1. <i>ELIA : étude en casiers de 23 m<sup>3</sup></i> .....	84
II.1.1. Caractéristiques des casiers.....	84
II.1.2. Déchets étudiés .....	84
II.1.3. Modalités étudiées.....	85
II.2. <i>BIOPTIME : étude en pilotes de 68 L</i> .....	87
II.2.1. Caractéristiques des pilotes .....	87
II.2.2. Déchets étudiés .....	88
II.2.3. Modalités de prétraitements étudiées.....	89
III. CARACTERISATION PHYSICOCHIMIQUE DES DECHETS.....	92
IV. ANALYSES DU GAZ.....	94
IV.1. <i>Casiers ELIA</i> .....	94
IV.2. <i>Pilotes BIOPTIME</i> .....	94
IV.3. <i>Test de lixiviation et test BMP</i> .....	95
V. ANALYSES DES LIXIVIATS ET DES JUS DE LIXIVIATION .....	95
V.1. <i>Conservation des échantillons</i> .....	95
V.2. <i>Analyses réalisées</i> .....	96
V.2.1. Charge minérale .....	99
V.2.2. Métaux .....	99
V.2.3. Charge organique .....	100
V.2.4. Fractionnement de la matière organique selon le caractère hydrophobe .....	102
VI. POTENTIEL DE RELARGAGE DES DECHETS .....	103
VI.1. <i>Optimisation du test de lixiviation</i> .....	103
VI.1.1. Conditions opératoires .....	104
VI.1.2. Influence de la durée de lixiviation.....	104
VI.1.3. Influence du renouvellement de la solution d'élution.....	106
VI.1.4. Choix du test de lixiviation à appliquer .....	107
VI.2. <i>Couplage Test de Lixiviation et BMP</i> .....	108
VI.3. <i>Application du test de lixiviation</i> .....	110
<b>Partie III - Résultats et discussions.....</b>	<b>113</b>
I. PROJET ELIA .....	115
I.1. <i>Suivi de la composition du lixiviat et du biogaz</i> .....	115
I.1.1. Production et composition du biogaz.....	116
I.1.2. Caractéristiques du dernier lixiviat produit.....	117
I.1.3. Corrélation entre production de biogaz et analyses du lixiviat.....	120
I.1.4. Bilan des différentes filières .....	122
I.2. <i>Caractérisation des déchets excavés</i> .....	125
I.2.1. Caractéristiques bio-physicochimiques.....	125
I.2.2. Lixiviation des déchets excavés .....	126
I.3. <i>Bilan complet</i> .....	135
I.4. <i>Conclusion au projet ELIA</i> .....	138

II. PROJET BIOPTIME .....	139
II.1. <i>Caractérisation bio-physicochimique des déchets</i> .....	139
II.2. <i>Etape de prétraitement aérobie des déchets</i> .....	142
II.3. <i>Etude approfondie du déchet témoin</i> .....	143
II.3.1. Suivi de la lixiviation des déchets.....	143
II.3.2. Tests BMP des fractions liquides et solides après lixiviation.....	151
II.3.3. Caractérisation de la phase réfractaire après BMP .....	153
II.3.4. Conclusion .....	155
II.4. <i>Mise en place des pilotes</i> .....	155
II.5. <i>Suivi de la biodégradation du déchet</i> .....	159
II.5.1. Evolution du déchet au cours des 6 premiers mois .....	159
II.5.2. Mise en place d'une étape de saturation / désaturation.....	163
II.5.3. Comportement du déchet après l'étape de saturation / désaturation.....	164
II.6. <i>Mobilisation des espèces minérales et organiques</i> .....	167
II.7. <i>Humidité du déchet et production de lixiviat</i> .....	169
II.8. <i>Évaluation de l'effet d'une modalité de traitement par l'étude de la matière organique</i> 170	
II.8.1. Matière organique initialement mobilisée.....	170
II.8.2. Evolution des caractéristiques de la matière organique .....	173
II.8.3. Etat de la matière organique lors de l'excavation .....	176
II.9. <i>Mobilisation d'espèces métalliques</i> .....	178
II.10. <i>Bilan comparatif des modalités de prétraitement</i> .....	181
II.10.1. Comportement en conditions de stockage .....	181
II.10.2. Flux de biogaz et de lixiviat émis .....	183
II.10.3. Bilan massique et hydrique du procédé de traitement .....	187
II.11. <i>Etude approfondie des modalités les plus performantes</i> .....	189
II.11.1. Lixiviation des déchets.....	189
II.11.2. Bilan complet du traitement du déchet A*_L2 .....	194
II.12. <i>Etat de stabilité des modalités de traitement testées</i> .....	197

<b>CONCLUSION GENERALE .....</b>	<b>200</b>
----------------------------------	------------

<b>REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES.....</b>	<b>204</b>
---	------------

<b>ANNEXES.....</b>	<b>222</b>
---------------------	------------



# LISTES DES FIGURES

---

Figure 1 : Démarche expérimentale suivie. ....	2
Figure 2 : Production et méthodes de traitement des déchets ménagers générés en 2007 en Europe (Source : Office statistique des communautés européennes (EUROSTAT).....	8
Figure 3 : Production de déchets ménagers et assimilés en France en 2006 (ADEME, 2009).....	8
Figure 4 : Traitement des déchets ménagers et assimilés collectés en France en 2007 (ADEME, 2009). ....	9
Figure 5 : Etapes de dégradation d'un substrat solide (Aguilar-Juarez 2000). ....	11
Figure 6 : Dégradation de la matière organique en conditions aérobies (d'après Gourdon, 2001). ...	12
Figure 7 : Voies de dégradation de la matière organique en conditions anaérobies (Marcato, 2007). .....	13
Figure 8 : Evolution de la matière organique par digestion anaérobie. ....	14
Figure 9 : Différents types de composts urbains (Francou, 2003). ....	19
Figure 10 : Représentation schématique de deux procédés de compostage : tas statique aéré et lits rectangulaires remués.....	21
Figure 11 : Différents types de réacteurs de méthanisation (Moletta, 2005). ....	23
Figure 12 : Objectifs d'une modalité de prétraitement des déchets. ....	29
Figure 13 : Conception générale d'un prétraitement mécanique et biologique. ....	35
Figure 14 : Evolution de la composition du biogaz au cours de la dégradation des déchets ménagers (Farquhar et Rovers, 1973). ....	45
Figure 15 : Evolution théorique de la composition des lixiviats émis par des CSDU de classe II (Christensen et Kjeldsen, 1989). ....	48
Figure 16 : Corrélation entre phases de dégradation et évolution des substances humiques.....	52
Figure 17 : Démarche expérimentale développée.....	79
Figure 18 : Suivi expérimental du programme ELIA. ....	80
Figure 19 : Organisation du projet BIOPTIME. ....	81
Figure 20 : Etude expérimentale des pilotes 68 L.....	82
Figure 21 : Calendrier général des programmes ELIA et BIOPTIME. ....	83
Figure 22 : Représentation schématique et photographique des casiers expérimentaux (Lornage, 2006). ....	84
Figure 23 : Gestion des déchets lors du remplissage des casiers (Lornage, 2006). ....	85
Figure 24 : Etapes de fonctionnement du prétraitement biologique. ....	86
Figure 25 : Pilotes 68 L du programme BIOPTIME. ....	87
Figure 26 : Protocole d'extraction des substances de type humiques et fulviques. ....	93
Figure 27 : Protocole de séparation des acides de type humique et de fractionnement de la matière organique du lixiviat. ....	102
Figure 28 : Evolution de la DCO et du COD au cours de la lixiviation a) données expérimentales b) modélisation de l'évolution de la DCO	105
Figure 29 : Evolution du COD (a) et de la DCO (b) au cours de la lixiviation avec ou sans renouvellement.....	106
Figure 30 : Caractéristiques des molécules organiques extraites au cours de la lixiviation sans (a) et avec (b) renouvellement.....	107
Figure 31 : Schéma du protocole expérimental. ....	109
Figure 32 : Système flacon + bouchon utilisé pour les Tests de Lixiviation.....	109
Figure 33 : Type de tests de lixiviation utilisés. ....	110
Figure 34 : Démarche de bilan du programme ELIA. ....	115
Figure 35 : Fractionnement de la matière organique du dernier lixiviat selon le caractère hydrophobe.....	120

Figure 36 : Evolution de l'indice SUVA du lixiviat et de la composition en CO <sub>2</sub> et CH <sub>4</sub> du biogaz au cours de l'enfouissement pour les 4 casiers. ....	121
Figure 37 : Evolution du pH et de la concentration en AGV de la phase liquide au cours de la lixiviation. ....	127
Figure 38 : Evolution de la teneur en CO <sub>2</sub> et O <sub>2</sub> du ciel gazeux au cours de la lixiviation. ....	127
Figure 39 : Evolution de la conductivité et de la concentration en DCO de la phase liquide au cours de la lixiviation.....	128
Figure 40 : Différentes formes de l'azote dans la phase liquide après 24 et 120 heures de lixiviation (a) quantité relarguée (b) répartition des espèces.....	130
Figure 41 : Evolution de la DBO ultime, du ratio DBO <sub>5</sub> /DCO, du ratio DCO/COD et de l'indice SUVA au cours de la lixiviation. ....	131
Figure 42 : Fractionnement de la matière organique relarguée dans la phase liquide après 24 et 120 heures de lixiviation. ....	132
Figure 43 : Démarche expérimentale de suivi des pilotes BIOPTIME.....	139
Figure 44 : Répartition par catégories du déchet reconstitué témoin (%MS).....	140
Figure 45 : Evolution du pH et de la concentration en AGV.....	144
Figure 46 : Evolution de la DBO <sub>5</sub> et de la DBO ultime selon le temps de lixiviation.....	144
Figure 47 : Production et composition cumulée du biogaz.....	145
Figure 48 : Evolution de la conductivité et du TAC durant la lixiviation. ....	145
Figure 49 : Evolution du potentiel redox au cours de la lixiviation.....	146
Figure 50 : Evolution des teneurs en Ca <sup>2+</sup> , Mg <sup>2+</sup> et en NTK au cours de la lixiviation.....	147
Figure 51 : Evolution de la DCO et du COD au cours de la lixiviation. ....	147
Figure 52 : Evolution du rapport DCO/DBO <sub>5</sub> et de l'indice SUVA au cours de la lixiviation.....	148
Figure 53 : Fractionnement de la matière organique de la phase liquide au cours de la lixiviation. ....	149
Figure 54 : Répartition de la DCO et du NTK entre les fractions hydrosolubles et non hydrosolubles après 24 et 120 heures de lixiviation.....	150
Figure 55 : Comparaison des cinétiques de production de méthane pour les fractions solides et liquides. ....	152
Figure 56: Fractionnement de la MO après 24 et 120 heures de lixiviation et après tests BMP. ....	154
Figure 57 : Production cumulée de biogaz des différents pilotes au cours des 6 premiers mois.....	159
Figure 58 : Proportion de CH <sub>4</sub> dans le biogaz après 6 mois d'enfouissement.....	160
Figure 59 : Evolution du pH dans les différents pilotes au cours des 6 premiers mois. ....	161
Figure 60 : Evolution du pH et de la concentration en AGV après la saturation / désaturation. ....	165
Figure 61 : Production cumulée de biogaz et ratio CH <sub>4</sub> / CO <sub>2</sub> des différents pilotes après la saturation / désaturation. ....	166
Figure 62 : Identification des phases de dégradation sur le suivi de la DCO. ....	168
Figure 63 : Evolution du ratio lixiviat produit / eau apportée au cours de l'enfouissement pour les modalités gérés selon la configuration 1.....	169
Figure 64 : Evolution du ratio lixiviat produit / eau apportée au cours de l'enfouissement pour les modalités gérés selon la configuration 2.....	170
Figure 65 : Répartition de la matière organique extraite du premier lixiviat.....	171
Figure 66 : Evolution de l'indice SUVA du lixiviat au cours de l'enfouissement pour les pilotes de configuration 1. ....	173
Figure 67 : Evolution de l'indice SUVA du lixiviat au cours de l'enfouissement pour les pilotes de configuration 2. ....	174
Figure 68 : Evolution de la répartition de la matière organique au cours du temps pour les pilotes C*, B*_1, A*_L2 et A*_M1.....	175
Figure 69 : Evolution des caractéristiques de la matière organique (ratio AH*/AF* et SH*) au cours du temps pour les pilotes C*, B*_1, A*_L2 et A*_M1.....	176
Figure 70 : Répartition de la matière organique extraite du dernier lixiviat.....	177
Figure 71 : Schématisation du comportement des déchets en conditions d'enfouissement. ....	182

Figure 72 : Evolution du déchet au cours de la lixiviation (pH, AGV, %O <sub>2</sub> et %CO <sub>2</sub> ). .....	190
Figure 73 : Proportion d'espèces minérales et organiques relarguées au cours de la lixiviation. ...	191
Figure 74 : Répartition de la matière organique extraite après 24 et 120 heures de lixiviation. ....	194
Figure 75 : Evolution du déchet excavé A*_L2 au cours de la lixiviation. ....	196
Figure 76 : Evolution de la composition du ciel gazeux (%CO <sub>2</sub> et %O <sub>2</sub> ) au cours de la lixiviation. .....	198
Figure 77 : Ajouts dosés pour le dosage du Pb dans un lixiviat minéralisé.....	228
Figure 78 : Ajouts dosés pour le dosage du Cu dans un lixiviat minéralisé. ....	229
Figure 79 : Ajouts dosés pour le dosage du Ni dans un lixiviat minéralisé.....	229



# TABLE DES TABLEAUX

---

Tableau I : Facteurs et espèces influençant la dégradation anaérobie des déchets. ....	16
Tableau II : Installations de compostage en 2006 en France. ....	20
Tableau III : Installations de méthanisation des déchets français en 2007. ....	22
Tableau IV : Avantages et limites du concept bioréacteur (Berthe, 2006). ....	26
Tableau V : Caractéristiques des sites français en mode bioréacteur. ....	27
Tableau VI : Screening des principales modalités de prétraitement des déchets. ....	30
Tableau VII : Teneur en éléments métalliques dans les mâchefers (mg/kg). ....	33
Tableau VIII : Objectifs des principales opérations de prétraitement mécanique des déchets. ....	36
Tableau IX : Composition chimique des ordures ménagères résiduelles en masse sèche (ADEME, 2009). ....	41
Tableau X : Teneur en métaux dans les déchets ménagers (mg/kgMS) ....	41
Tableau XI : Classement des lixiviats selon leur âge (Millot, 1986 ; Ramade, 1998). ....	49
Tableau XII : Caractéristiques de la matière organique issue des lixiviats au cours des 3 phases de dégradation (Berthe <i>et al.</i> , 2008 ; Feuillade <i>et al.</i> , 2009). ....	51
Tableau XIII : Teneurs moyennes en éléments métalliques dans les lixiviats ( $\mu\text{g}\cdot\text{L}^{-1}$ ). ....	53
Tableau XIV : Principaux tests de biodégradabilité d'un déchet. ....	58
Tableau XV : Caractéristiques des différents types de test de lixiviation (François, 2004). ....	60
Tableau XVI : Paramètres influençant le relargage de polluants en conditions de lixiviation. ....	61
Tableau XVII : Essais pilotes mentionnés dans la littérature. ....	63
Tableau XVIII : Techniques de caractérisation physicochimiques du déchet. ....	66
Tableau XIX : Méthodes de caractérisation des lixiviats : techniques et objectifs. ....	69
Tableau XX: Rapports caractéristiques de la matière organique. ....	72
Tableau XXI : Indicateurs de stabilité des déchets ménagers dégradés. ....	74
Tableau XXII : Composition du déchet collecté (Lornage <i>et al.</i> , 2007). ....	85
Tableau XXIII : Caractéristiques des modalités étudiées dans le cadre du programme ELIA. ....	85
Tableau XXIV : Composition du déchet reconstitué. ....	88
Tableau XXV : Modalités de prétraitement mise en place. ....	90
Tableau XXVI : Caractéristiques des boues de STEP et des bouses de vaches. ....	91
Tableau XXVII : Composés lixiviés après 48 heures de contact. ....	91
Tableau XXVIII : Techniques analytiques mises en œuvre sur le déchet. ....	92
Tableau XXIX : Caractéristiques des méthodes et des appareillages de mesure. ....	97
Tableau XXX : Valeurs de l'indice SUVA avec et sans renouvellement ( $\text{L}/\text{cm}^2/\text{gC}$ ). ....	105
Tableau XXXI : Caractéristiques du protocole de lixiviation mis en place. ....	108
Tableau XXXII : Quantité de substrat dans chaque fiole ....	110
Tableau XXXIII : Production de biogaz et de méthane des 4 casiers. ....	117
Tableau XXXIV : Composition du dernier lixiviat produit (Leloup, 2010). ....	118
Tableau XXXV : Durée des 3 phases de dégradation et caractéristiques de la matière organique. ....	119
Tableau XXXVI : Bilan massique et hydrique lors du stockage. ....	122
Tableau XXXVII : Flux de pollution par voie gazeuse et liquide. ....	123
Tableau XXXVIII : Caractéristiques des déchets avant stockage et au moment de l'excavation. ....	125
Tableau XXXIX : Composition en cations et anions après 24 heures (en italique) et 120 heures (en gras) de lixiviation. ....	129
Tableau XL : Caractéristiques de la matière organique extraite après 120 heures de lixiviation. ....	133
Tableau XLI : Caractéristiques de la matière organique du déchet. ....	133
Tableau XLII : Quantités de polluants extraits après 120 heures de lixiviation. ....	134
Tableau XLIII : Bilan de la lixiviation après 120 heures de contact. ....	135

Tableau XLIV : Bilan carbone et azote de la filière de traitement en masse sèche (en kgC et kgN). .....	136
Tableau XLV : Lixiviation des espèces carbonées et azotées avant et après traitement (en MS)...	137
Tableau XLVI : Caractéristiques moyennes des déchets utilisés. ....	140
Tableau XLVII : Concentration en cations et anions après 24 et 120 heures de lixiviation.....	146
Tableau XLVIII : Données du fractionnement de la matière organique au cours de la lixiviation.	149
Tableau XLIX : Teneur en DCO, NTK, MO et AH*s après 24 et 120h de lixiviation par rapport au déchet initial.....	150
Tableau L: Principales caractéristiques analytiques des substrats utilisés.....	151
Tableau LI : BMP des différentes fractions après 24 et 120 heures de lixiviation. ....	152
Tableau LII : Analyses de la fraction liquide résiduaire après BMP .....	153
Tableau LIII : Analyses de COD, DCO et NTK après retranchement de la part liée au témoin. ....	154
Tableau LIV : Gamme de concentration du lixiviat de saturation. ....	157
Tableau LV : Bilan hydrique de la saturation / désaturation après 24 heures. ....	157
Tableau LVI : Pertes par lessivage lors de la saturation / désaturation. ....	158
Tableau LVII : Teneur maximale en espèces inhibitrices au cours des premiers mois (g/L).....	162
Tableau LVIII : Concentration en AGV et en K <sup>+</sup> évacués lors de la saturation / désaturation (g/L) après 6 mois de stockage.....	163
Tableau LIX : Bilan hydrique de la saturation / désaturation au septième mois de stockage. ....	164
Tableau LX : Caractéristiques de la matière organique libérée dans le premier lixiviat. ....	172
Tableau LXI : Caractéristiques de la matière organique libérée dans le dernier lixiviat.....	177
Tableau LXII : Proportion d'éléments métalliques dans le déchet et les mâchefers. ....	178
Tableau LXIII : Gamme de valeurs de la teneur en cuivre des lixiviats.....	180
Tableau LXIV : Flux de production de lixiviat.....	183
Tableau LXV : Flux de production de biogaz.....	186
Tableau LXVI : Bilan hydrique et massique. ....	188
Tableau LXVII : Caractéristiques du déchet à l'état initial et après 120 heures de lixiviation. ....	192
Tableau LXVIII : Caractéristiques de la matière organique extraite après 120 heures de lixiviation. .....	193
Tableau LXIX : Bilan carbone de la filière de traitement en matière sèche (en gC).....	195
Tableau LXX : Proportions d'espèces lixiviées en 120 heures avant et après traitement. ....	196
Tableau LXXI : Paramètres caractéristiques de l'état de dégradation des déchets.....	197
Tableau LXXII : Paramètres caractéristiques de l'état de dégradation des déchets. ....	198

## SIGLES et ABREVIATIONS

---

<b>ADEME</b>	Agence De l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie
<b>AFNOR</b>	Association Française de NORmalisation
<b>CRPE</b>	Centre de Recherche sur la Propreté et l'Environnement
<b>ELIA</b>	Environmental Landfill Impact Assessment
<b>INSA</b>	Institut National des Sciences Appliquées
<b>AF*</b>	Acide de type Fulvique
<b>AGV</b>	Acide Gras Volatil
<b>AH*</b>	Acide de type Humique
<b>AT4</b>	Test respirométrique (à 4 jours)
<b>AT7</b>	Test respirométrique (à 7 jours)
<b>BIOPTIME</b>	Programme de recherche sur la préparation des déchets pour l'optimisation de la biodégradation par méthanisation
<b>BMP</b>	Biochemical Methane Potential
<b>CNC</b>	Combustibles Non Classés
<b>COD</b>	Carbone Organique Dissous
<b>COV</b>	Composé Organique Volatile
<b>COT</b>	Carbone Organique Total
<b>CSDU</b>	Centre de Stockage de Déchets Ultimes
<b>DBO<sub>5</sub></b>	Demande Biologique en Oxygène au bout de 5 jours
<b>DBO ultime</b>	Demande Biologique en Oxygène au bout de 21 jours
<b>DCO</b>	Demande Chimique en Oxygène
<b>DMA</b>	Déchets Ménagers et Assimilés
<b>GB21</b>	Gas Bildung test (à 21 jours)
<b>GRESE</b>	Groupement de Recherche Eau Sol Environnement
<b>HPI*</b>	Substances de type hydrophile
<b>HPO*</b>	Substances de type hydrophobe
<b>ICPE</b>	Installations Classées pour la Protection de l'Environnement
<b>INC</b>	Incombustibles Non Classés
<b>ISDI</b>	Installation de Stockage de Déchets Inertes
<b>ISDND</b>	Installation de Stockage de Déchets Non Dangereux

<b>LISBP</b>	Laboratoire d'Ingénierie des Systèmes Biologiques et Procédés
<b>L/S</b>	Ratio Liquide sur Solide
<b>MH</b>	Masse Humide
<b>MIOM</b>	Mâchefers d'Incineration d'Ordures Ménagères
<b>MM</b>	Matière Minérale
<b>MODECOM</b>	MéthOde DE Caractérisation des Ordures Ménagères
<b>MO</b>	Matière Organique
<b>MS</b>	Matière Sèche
<b>MV</b>	Matière Volatile
<b>NTK</b>	Azote Kjeldahl
<b>Ntot</b>	Azote Total
<b>OHPA</b>	Bactéries productrices obligées d'hydrogène
<b>OM</b>	Ordures Ménagères
<b>PEHD</b>	PolyEthylen High Density
<b>PMA</b>	Poids Moléculaire Apparent
<b>PTMB</b>	Pré-Traitements Mécaniques et Biologiques
<b>PVC</b>	Polychlorure de vinyle
<b>RH</b>	Rapport d'humification
<b>rpm</b>	Rotations Par Minute
<b>SH*</b>	Substances de type Humique
<b>STEP</b>	Station d'épuration des eaux
<b>SUVA</b>	Specific Ultra-Violet Absorbance
<b>TA</b>	Titre Alcalimétrique
<b>TAC</b>	Titre Alcalimétrique Complet
<b>TL</b>	Test de Lixiviation
<b>TPH*</b>	Substances de type transphilique
<b>UF</b>	Ultrafiltration
<b>VERI</b>	Veolia Environnement Recherche et Innovation

# INTRODUCTION

---

Les ressources et matières premières prélevées dans la nature sont transformées et consommées par les ménages et les activités économiques. Elles sont aussi sources de rejets, en particulier sous forme de déchets. Ces déchets étant générateurs de nuisances pour l'homme et la nature, il est essentiel d'en contenir la production et d'en maîtriser le devenir. Compte tenu des quantités produites et de leur diversité de composition, la gestion des déchets est devenue au fil du temps, une des préoccupations majeures tant au regard de l'impact environnemental et sanitaire que de la nécessité de préserver les ressources naturelles.

Les différentes étapes de la gestion intégrée des déchets (collecte, tri, traitement et stockage) impliquent de nombreuses voies et options techniques telles que la réduction de la production de déchets à la source, le tri, le recyclage, l'incinération, l'enfouissement, le compostage, la mise en place de prétraitement... Le stockage apparaît néanmoins comme l'une des phases ultimes et inévitables de tout traitement. Une grande partie des déchets émis est donc encore aujourd'hui majoritairement éliminée par enfouissement (35,5 % en 2007). Lorsqu'ils sont mal maîtrisés, les centres de stockage représentent des sites polluants potentiellement toxiques et nocifs pour l'environnement ce qui a conduit ces espaces à devenir de véritables centres techniques de gestion des déchets où les émissions de biogaz et lixiviat sont maîtrisées. Ces centres sont en continuelle évolution pour répondre aux évolutions réglementaires et s'adapter aux avancées technologiques. Le monde des déchets est un secteur où le fruit de la recherche est complexe à mettre en œuvre in situ sans passer par des échelles intermédiaires.

Un état dit stabilisé d'un massif de déchet enfoui est relativement long à s'instaurer dépassant souvent la durée légale de suivi d'un centre de stockage qui est fixée à 30 ans. Une modification imprévue des conditions de stockage peut donner lieu à une éventuelle reprise ou un arrêt de l'activité biologique et donc à des émissions incontrôlées ou mal maîtrisées dans l'environnement de polluants (biogaz et/ou lixiviat). Il apparaît donc indispensable à la fois de modifier la cinétique de dégradation des déchets en recherchant de nouveaux moyens permettant de l'accélérer mais aussi de définir de façon précise des indicateurs fiables de stabilisation indépendant de la notion de durée d'enfouissement. Une amélioration de la cinétique de stabilisation induit une réduction de la durée des émissions issues des centres de stockage. En outre, l'Union Européenne a édicté plusieurs réglementations dont le but est de réduire l'impact global des déchets sur l'environnement. Ainsi, la directive 99/31/CE fixe des objectifs de réduction de la quantité de déchets à enfouir notamment au travers de la réduction de leur charge organique, principale actrice dans les processus d'émissions gazeux et liquide d'un centre de stockage.

Ainsi, afin de répondre à ces enjeux environnementaux, ce mode de gestion tend à évoluer pour ne laisser accéder aux centres de stockage que les déchets dits ultimes. Différents scénarii de préparation ou de prétraitement avant enfouissement du déchet sont envisageables mais tous ne présentent pas les mêmes potentialités au niveau cinétique, environnemental et économique. La

réduction quantitative et l'accélération de la stabilisation biologique des déchets au cours de l'enfouissement peuvent ainsi contribuer à limiter les impacts environnementaux tout en favorisant un enfouissement propice à la production contrôlée de méthane. L'accélération de la cinétique de biodégradation des déchets va donc de pair avec une optimisation de la production de biogaz destiné à être valorisé. Dans le contexte actuel de promotion des énergies renouvelables, l'utilisation de la matrice déchet comme ressource d'énergie constitue une option économiquement intéressante.

La présente thèse s'intéresse à l'impact de nouveaux modes de gestion des déchets notamment au vue de leurs aptitudes à accélérer la dégradation des déchets. L'objectif de ce travail consiste, en effet, en une étude multiparamétrique et multi-échelle destinée à définir l'effet de différents scénarii de prétraitement. La finalité à long terme étant de pouvoir appliquer sur site les modalités ciblées.

Ce travail de thèse s'appuie sur deux projets de recherche visant à étudier l'effet et l'impact de scénarii de traitement des déchets ménagers et assimilés : ELIA et BIOPTIME. Le projet ELIA, arrivé à son terme au cours de la thèse a été la base de travail pour l'élaboration de bilans complets sur l'influence de 3 modes de gestion. Le projet BIOPTIME aborde la notion de multi-échelle (1 L, 68 L et 1m<sup>3</sup>) et vise à définir des scénarii de préparation et/ou de prétraitement des déchets favorisant, lors du stockage la production de méthane. Ce travail de thèse s'inscrit plus particulièrement au niveau de l'identification des modalités de prétraitement les plus performantes lorsqu'elles sont testées en conditions simulées d'enfouissement à l'échelle pilote (68 L).

La démarche expérimentale suivie est similaire pour les deux projets permettant ainsi de faire un parallèle entre les deux études (Figure 1). Elle repose sur l'application de techniques analytiques analogues aux éléments entrants (déchets) et aux flux sortants (lixiviat et biogaz) afin de caractériser au mieux le fonctionnement des différents modes de gestion mis en place.

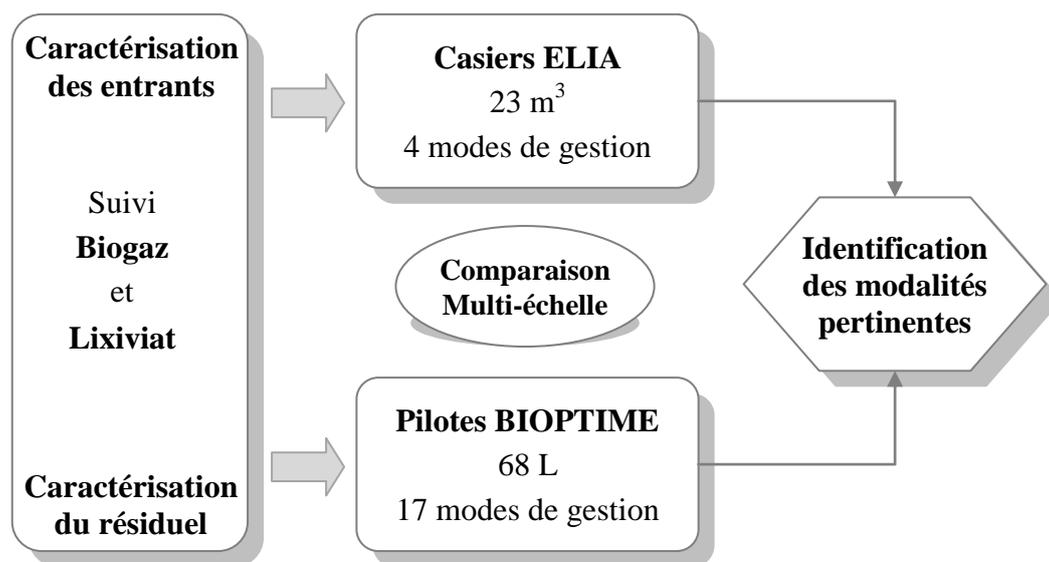


Figure 1 : Démarche expérimentale suivie.

Le contrôle de l'avancement de la dégradation des déchets au cours de l'enfouissement s'effectue principalement sur les lixiviatés générés. En effet, le lixiviat est souvent considéré comme un fluide

de choix pour ce type d'étude car sa composition suit les caractéristiques du massif de déchets dont il est issu. Une attention particulière est également apportée à l'évolution des caractéristiques de la matière organique du lixiviat au cours de la dégradation. Initialement présente dans les déchets lors de leur enfouissement, elle subit de multiples transformations au cours des différentes phases de dégradations permettant ainsi d'avoir des indications sur l'état de dégradation du système. Cette étude utilise donc le comportement de la matière organique mobilisée dans le lixiviat comme vecteur d'information des réactions de dégradation se produisant au sein du massif de déchets et donc de l'état d'avancement de la biodégradation.

Sur une matrice solide, l'estimation de l'impact d'une modalité de traitement s'effectue le plus souvent au travers de tests de potentiel méthanogène (BMP) ou de tests de lixiviation (TL). Toutefois, l'un comme l'autre, ces tests sont souvent critiqués quant à leur aptitude à retranscrire l'état réel de dégradation et de stabilité des déchets. Le développement d'une méthodologie adaptée à une matrice aussi complexe qu'est le déchet semble donc être indispensable afin d'appréhender au mieux l'état de dégradation d'un déchet. En effet, l'arrêt de la production de biogaz ou l'émission d'un lixiviat dont les caractéristiques physicochimiques n'évoluent quasiment plus ne sont pas toujours indicatrices d'un état stabilisé.

L'ensemble des travaux réalisés dans le cadre de cette thèse vont dans ce sens : définir des paramètres pertinents afin de mettre en évidence l'effet des différentes modalités de traitement testées et ainsi cibler les modes de gestion des déchets en conditions d'enfouissement de demain...

Ce manuscrit se découpe en trois parties distinctes étroitement liées les unes aux autres.

Dans un premier temps, un état des lieux des connaissances et des techniques analytiques en terme de gestion des déchets est présenté. Ces données servent de moteur à la détermination des voies d'action utilisées afin de mener à bien l'objectif fixé dans le cadre de ce travail de thèse.

La deuxième partie de ce manuscrit consiste en un listing des modalités de prétraitement mais également des matériels et méthodes employés. La démarche expérimentale appliquée lors de la mise au point d'un protocole de lixiviation adapté à la matrice déchet est présentée.

La troisième partie présente l'ensemble des résultats issus de l'exploitation des données obtenues dans le cadre des 2 projets de recherche : suivi rigoureux du biogaz produit et de la composition des lixiviats générés mais également étude du comportement des déchets en conditions de lixiviation. Pour chaque filière de traitement (prétraitement + enfouissement), des bilans hydrique, massique et un bilan des flux totaux émis sont réalisés afin de parfaire la quantification de l'impact des modalités testées.

La synthèse des effets de l'application de nouveaux modes de gestion sur la dégradation des déchets en conditions d'enfouissement permet d'ouvrir de nouvelles perspectives à ce travail.



# PARTIE I - SYNTHÈSE BIBLIOGRAPHIQUE

---

*Ce premier chapitre permet de positionner le sujet de la thèse dans le contexte complexe de la gestion des déchets ménagers et assimilés en France mais également en Europe. L'enjeu économique et environnemental qu'ils représentent est important du fait de leur impact sur l'environnement, les écosystèmes et les populations.*

*Les grandes étapes de la biodégradation des déchets, en ciblant les principaux facteurs influençant la dégradation en conditions anaérobies, seront rappelées de façon synthétique dans une première partie. Une attention particulière est portée aux aspects relatifs à la matière organique.*

*Les modes de gestion actuels tendant à évoluer, un screening des nouvelles voies de traitement des déchets ménagers et leurs conséquences sur la biodégradation des déchets seront présentés dans un deuxième temps. Cet état des lieux des différents traitements existants est indispensable afin de cibler les modalités les plus intéressantes pour atteindre les objectifs fixés, à savoir une accélération de la cinétique de biodégradation et de stabilisation des déchets.*

*Cet état des connaissances s'étendra également aux différents moyens et techniques pouvant être utilisées afin de déterminer au mieux l'impact du mode de traitement ciblé.*



## I. Préambule à la gestion des déchets

"Est considéré comme un déchet tout résidu d'un processus de fabrication, de transformation ou d'utilisation, toute substance, matériau, produit ou plus généralement tout bien meuble abandonné ou que son détenteur destine à l'abandon" (Code de l'environnement, article L 541-1). Ces déchets se répartissent en différentes catégories en fonction de leur origine, de leur potentiel polluant, de leur teneur élémentaire en polluant ainsi que de leur écotoxicité (code de l'environnement, Articles R541-7 à R541-11). Toutefois, la définition des catégories de déchets peut varier sensiblement selon le pays. Les principales sources de déchets qui alimentent les différentes catégories sont l'agriculture, la construction, l'industrie et les zones urbaines. Les déchets agricoles sont les plus importants du point de vue quantitatif et les déchets industriels sont les plus problématiques du point de vue de l'impact sur l'environnement. La gestion des déchets ménagers est donc sujette à de nombreuses interrogations de part l'hétérogénéité de leur composition. De manière générale, l'évolution des modes de vie et des habitudes conjuguées à la croissance démographique a une forte incidence sur la proportion de déchets produits chaque jour. Ils peuvent augmenter en quantité mais également en nocivité et en complexité.

*Cette étude ne prendra en considération que les "déchets ménagers et assimilés" qui en France, par arrêté du Ministère de l'écologie et du développement durable et depuis janvier 2006, sont désormais appelés "déchets non dangereux". En opposition aux déchets dangereux qui nécessitent une gestion et une prise en considération spécifique, les déchets non dangereux regroupent l'ensemble des déchets industriels banals collectés avec les déchets des ménages, les déchets de collectivités et les ordures ménagères au sens strict.*

### I.1. La gestion des déchets en Europe

La quantité de déchets produits dans chaque pays ainsi que leur composition sont liées au degré d'urbanisation, au niveau des revenus, aux types de consommation et au style de vie des ménages. Ainsi, la production de déchets et les méthodes de traitement diffèrent sensiblement entre les états membres de l'union européenne (Figure 2). Ces déchets se répartissant en différentes catégories (Figure 3).

Les pays d'Europe occidentale produisent davantage de déchets industriels et d'ordures ménagères que les pays d'Europe centrale et orientale où l'exploitation minière est la principale source de déchets.

En 2008, selon EUROSTAT (Office statistique des communautés européennes), les Européens ont généré 524 kg de déchets non dangereux par habitant. Le Danemark, l'Irlande et Chypre arrivent en tête du classement avec plus de 800 kg de déchets municipaux par habitant. Les volumes les plus bas, inférieurs à 400 kg par personne, ont été relevés en Roumanie, en Lettonie, en Pologne, en Slovaquie et en République tchèque.

Au sein des 27 pays de l'union européenne, 42 % des déchets municipaux traités ont été enfouis, 20 % incinérés, 22 % recyclés et 17 % compostés. L'enfouissement des déchets reste encore aujourd'hui le moyen de traitement le plus répandu en Europe devant l'incinération ; cette option est la moins onéreuse malgré l'introduction de taxes de stockage dans certains pays européens. Les États membres présentant les plus fortes proportions de déchets municipaux recyclés ont été l'Allemagne (46 %), la Belgique (39 %) et la Suède (37 %). Le compostage constitue également une voie de gestion prépondérante dans certains pays comme en Autriche (38 %) et en Italie (33 %) alors que cette technique n'est pas du tout pratiquée dans d'autres pays tels qu'en Bulgarie, à Chypre ou encore en Roumanie.

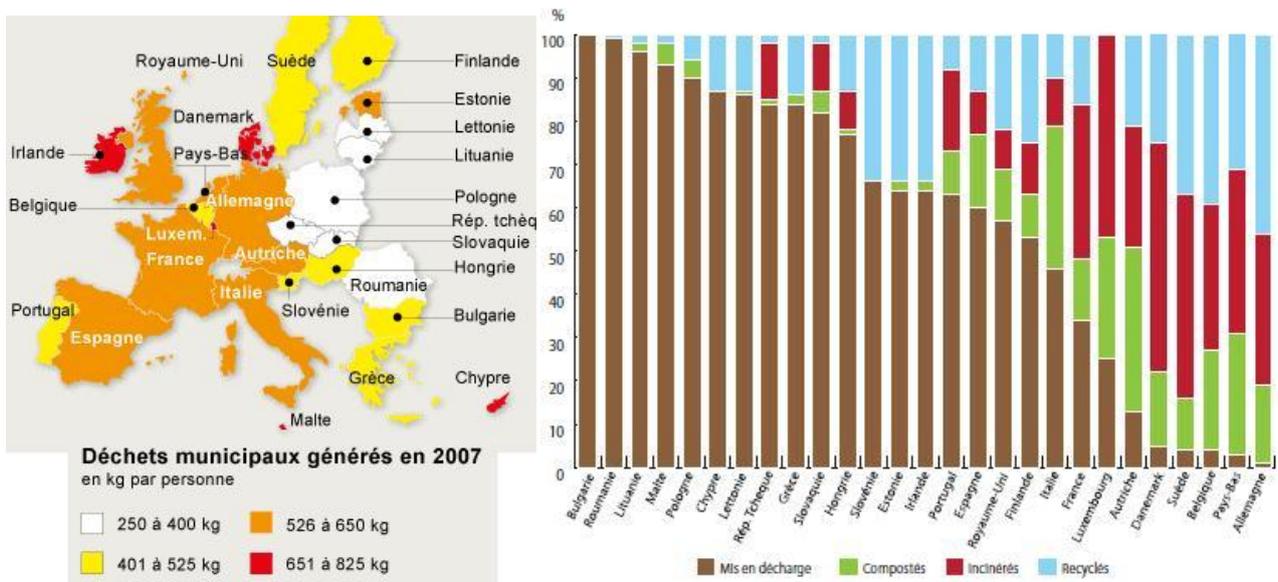


Figure 2 : Production et méthodes de traitement des déchets ménagers générés en 2007 en Europe (Source : Office statistique des communautés européennes (EUROSTAT)).

*L'augmentation de la quantité de déchets municipaux produits chaque année reflète les habitudes de consommation et de production non durables des Européens. Une meilleure gestion des déchets municipaux et le recours à des solutions adaptées jouent un rôle clef pour faire face aux impacts environnementaux liés à cette augmentation.*

## I.2. La gestion des déchets en France

En 2006, la France a généré 868 millions de tonnes de déchets « toutes catégories confondues ». Les déchets collectés par les municipalités atteignent 50 millions de tonnes, soit 536 kg par habitant et par an (Figure 3).

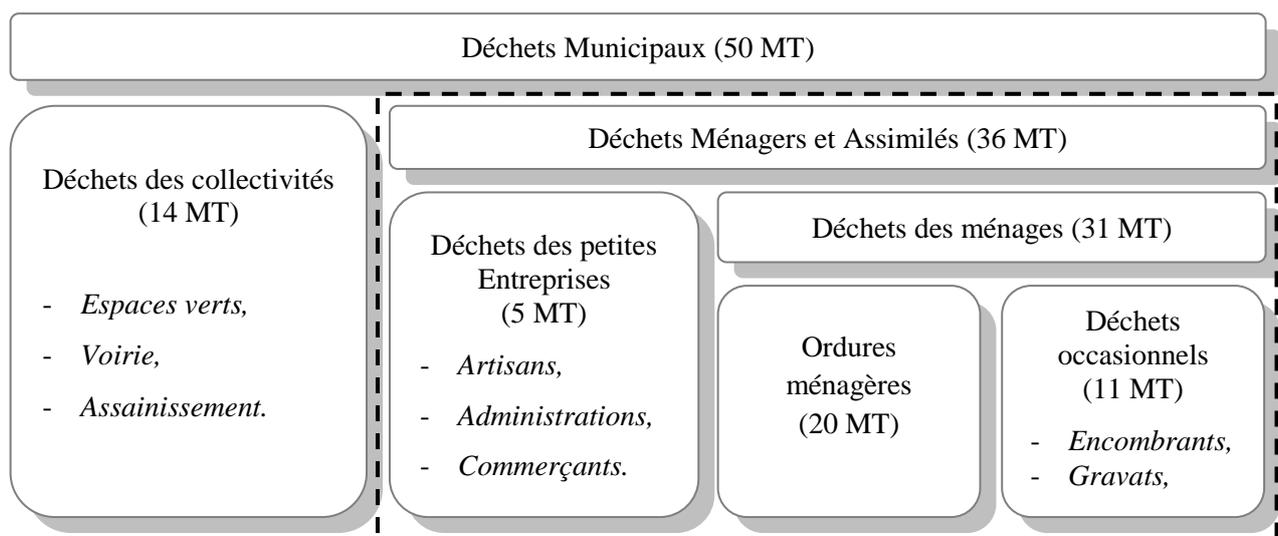


Figure 3 : Production de déchets ménagers et assimilés en France en 2006 (ADEME, 2009).

Les 36 millions de tonnes de déchets ménagers et assimilés correspondent quant à eux à une production de 316 kg par habitants et par an soit près de 62 % de la production totale de déchets (ADEME, 2009).

La production annuelle d'ordures ménagères de chaque Français a doublé en 40 ans. Depuis 2002, une stabilisation voire même une diminution est constatée dans le contexte démographique actuel de croissance régulière. Ainsi, la légère diminution des tonnages d'ordures ménagères collectées et la hausse de la population française s'exprime par une baisse de 11 kg de déchet produits par habitant et par an, le ratio passant de 327 à 316 kg/hab/an entre 2004 et 2006 soit une baisse de 3,4% en deux ans.

Pour l'élimination de ces déchets, il n'existe pas aujourd'hui de traitement idéal, la filière d'élimination doit combiner différents modes de traitement adaptés aux déchets produits et au contexte local ; diverses filières de traitement coexistent (Figure 4). En effet, les différentes filières de traitement ne peuvent pas accepter la totalité des déchets et sont elles mêmes à l'origine de résidus gérés par les centres de stockages considérés alors comme l'ultime maillon indispensable à toute filière de traitement.

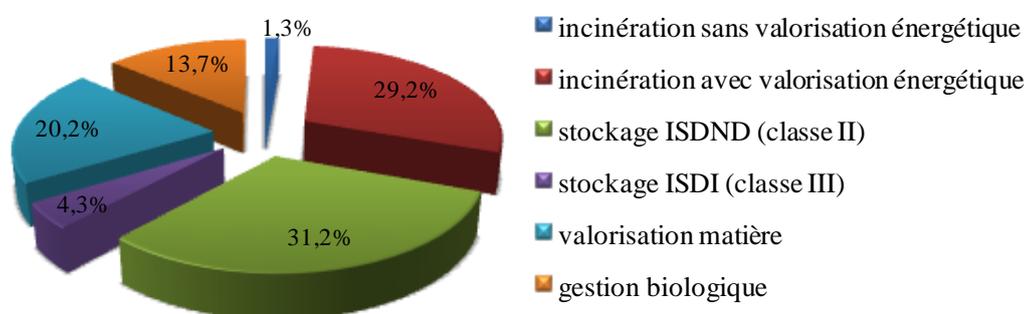


Figure 4 : Traitement des déchets ménagers et assimilés collectés en France en 2007 (ADEME, 2009).

La mise en centre de stockage (Installation de Stockage des Déchets Non Dangereux de classe II ou Installation de Stockage des Déchets Inertes de classe III) et la valorisation énergétique représentent les modes d'élimination qui prédominent actuellement en France ; respectivement 35,5 et 29,2 %. La valorisation énergétique s'effectue lors de l'incinération de déchets ; l'électricité et la chaleur produites sont en grande partie vendues. Grâce au système Eco-emballage, près de 34,1 % des déchets ménagers et assimilés collectés sont orientés vers une filière de recyclage (valorisation matière et gestion biologique).

En outre, bien que la mise en centre de stockage devrait être le dernier recours dans la hiérarchie des modes de gestion des déchets, après la collecte, le tri, la récupération et d'autres modes de valorisation ou d'élimination, elle se positionne comme l'une des deux voies majoritaires grâce à trois principaux avantages : les tonnages à enfouir sont importants à des coûts très compétitifs, cette voie est complémentaire avec les filières de traitement thermique et le biogaz produit peut être valorisé (ADEME, 2009). En effet, le captage du biogaz permet une valorisation sous forme de chaleur ou d'électricité selon la configuration du système ce qui limite fortement l'impact sur l'environnement.

Selon la nature des déchets admis, les centres sont répartis en trois classes : classe I pour les déchets dangereux et spéciaux, classe II pour les déchets ménagers et assimilés, classe III pour les déchets inertes. Seuls les centres de stockage de classe II habilités à recevoir des déchets ménagers et assimilés seront considérés dans ce travail.

### I.3. Règlementation européenne et française

Au niveau européen et national, la gestion des déchets est régie par un ensemble législatif et réglementaire lié directement au type de déchets.

En France, la réglementation se base sur le Code de l'Environnement (Livre V, Titre IV, articles L 541-1 et suivants). La loi française du 13 juillet 1992 (n°92-646), relative à l'élimination des déchets a marqué un tournant vis-à-vis de la mise en décharge des déchets. Cette loi prévoit la valorisation des déchets par réemploi, tri et recyclage avec pour objectif d'obtenir des matériaux réutilisables ou de l'énergie. De plus, elle stipule qu'à compter du 1<sup>er</sup> juillet 2002, les installations d'élimination des déchets par stockage ne seront autorisées à accueillir que des déchets ultimes. Un déchet ultime étant considéré comme un "déchet résultant ou non du traitement d'un déchet, qui n'est plus susceptible d'être traité, dans les conditions techniques et économiques du moment par extraction de la part valorisable ou par réduction de son caractère polluant ou dangereux" (articles L 541-1 du Code de l'Environnement). Ces déchets correspondent principalement à des encombrants des ménages, des déchets de construction de chantier non récupérables mais également de la fraction non valorisable des ordures ménagères.

Plus récemment, l'arrêté du 19 janvier 2006 modifie en deux principaux points la réglementation relative aux installations de stockage de déchets ménagers et assimilés : les mots "déchets ménagers et assimilés" sont remplacés par les mots "déchets non dangereux" et la définition des installations de stockage de déchets ménagers et assimilés est remplacée par la définition suivante : "Installation de stockage de déchets non dangereux ou déchets ultimes " (ISDND).

Des directives communautaires établissent le cadre juridique pour le traitement de déchets dans l'Union européenne. Elles définissent des notions de base telles que la valorisation, l'élimination et mettent en place les exigences essentielles relatives à la gestion des déchets comme l'obligation pour les États membres d'établir des plans de gestion des déchets. Elles posent également les grands principes tels que l'obligation de traiter les déchets d'une manière qui ne soit pas nocive pour l'environnement et la santé humaine. La directive aujourd'hui en vigueur est la directive n°2008/98 du 19/11/2008 dont la date limite de transposition dans les différents états est le 12/12/2010. A côté de cette directive générale existent d'autres textes comme la directive 1999/31/CE du 26/04/1999 concernant le stockage des déchets.

La directive 1999/31/CE vise à prévenir ou à réduire les atteintes portées à l'environnement par le stockage des déchets. Ainsi, elle détaille les différentes catégories de déchets et s'applique à tous les sites d'élimination des déchets classés en trois catégories selon le type de déchet (dangereux, non dangereux et inertes).

L'un des objectifs majeurs de cette réglementation est une réduction de 35 % d'ici à 2016 du volume de déchets biodégradables enfouis par rapport au volume mesuré en 1995. La collecte séparée des déchets organiques, le tri et le recyclage est ainsi encouragé par cette mesure. Elle établit les types de déchets pouvant être admis en centre de stockage par la mise en place de procédures d'admission des déchets sur la base de la composition, de l'origine et du comportement du déchet à la lixiviation définissant son contenu en polluants organiques et inorganiques.

## II. Mécanismes de dégradation des déchets

Au sein d'un massif de déchets, la dégradation s'effectue par le biais d'une multitude de réactions chimiques et biologiques fortement liées à la présence de microorganismes spécifiques à chaque phase de dégradation. En effet, le développement d'une flore microbiologique adaptée est possible dans ce milieu dès lors que la température et l'humidité sont optimales. Les mécanismes de dégradation (aérobie ou anaérobie) dépendent de la présence ou non d'oxygène (Lanini *et al.*,

2001). Cette dégradation s'effectue principalement sur la part organique biodégradable (El-Fadel *et al.*, 1997) ; composés majoritaires dans la composition du déchet ménager (Bilgili *et al.*, 2009).

Au cours de la gestion des déchets ménagers et assimilés, la voie aérobie de dégradation n'a lieu que lors du prétraitement des déchets alors que la voie anaérobie correspond à la période d'enfouissement des déchets. Dans les deux cas, la première étape est commune et correspond à une phase d'hydrolyse au cours de laquelle les molécules organiques complexes sont, sous l'action de microorganismes, transformées en molécules solubles de plus petite taille, substrat indispensable aux réactions biologiques qui suivent (Figure 5). La finalité de ces deux voies métaboliques est similaire, elle tend vers une stabilisation du système.

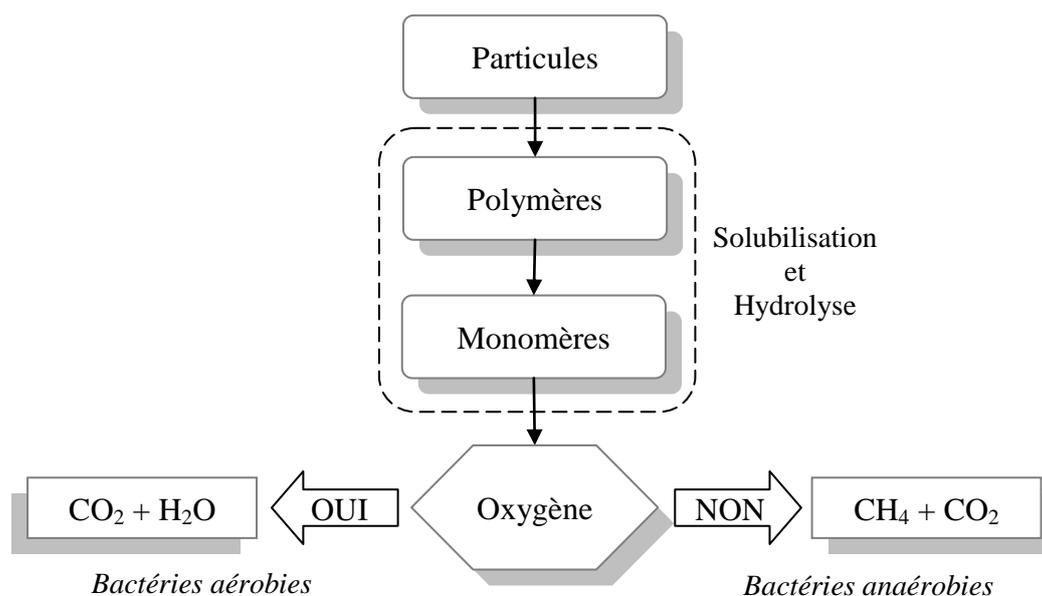


Figure 5 : Etapes de dégradation d'un substrat solide (Aguilar-Juarez 2000).

## II.1. Dégradation aérobie de la matière organique

Le processus de dégradation aérobie de la matière organique a largement été étudié notamment dans le cadre des travaux sur les composts. Le principe repose sur une bio-oxydation de la matière organique en présence d'oxygène sous l'action d'une population microbienne aérobie complexe. Ces microorganismes consomment l'oxygène gazeux ou l'oxygène présent en solution pour minéraliser la matière organique en  $\text{CO}_2$  et  $\text{H}_2\text{O}$ . Les différentes étapes de ce processus sont décrites sur la Figure 6 (d'après Gourdon, 2001) ; la durée de chaque étape dépend notamment de la composition du déchet.

Dans un premier temps, les molécules organiques simples facilement biodégradables (sucres, lipides, protéines) sont décomposées et biodégradées par des microorganismes aérobies (bactéries acidogènes, champignons). Cette étape engendre une forte production de chaleur et une montée rapide de la température au cœur du massif de déchets. L'élévation de la température peut atteindre des valeurs de  $60^\circ\text{C}$  voire  $75^\circ\text{C}$  laissant place à des micro-organismes thermorésistants (essentiellement des bactéries) pouvant survivre à ces hautes températures. Une part importante de matière organique est perdue sous forme de  $\text{CO}_2$ , et un assèchement du compost lié à l'évaporation de l'eau est souvent observé. La diminution de la quantité de matières organiques facilement dégradables provoque un ralentissement de l'activité microbienne générant une phase de refroidissement au cours de laquelle des microorganismes mésophiles colonisent à nouveau le massif de déchets. Ces microorganismes mésophiles peuvent ainsi transformer et stabiliser la

matière organique résiduelle (lentement et difficilement biodégradable) à partir des constituants élémentaires initialement présents dans le déchet (C, N, O, P...). Cette étape dite de maturation est dominée par des processus d'humification.

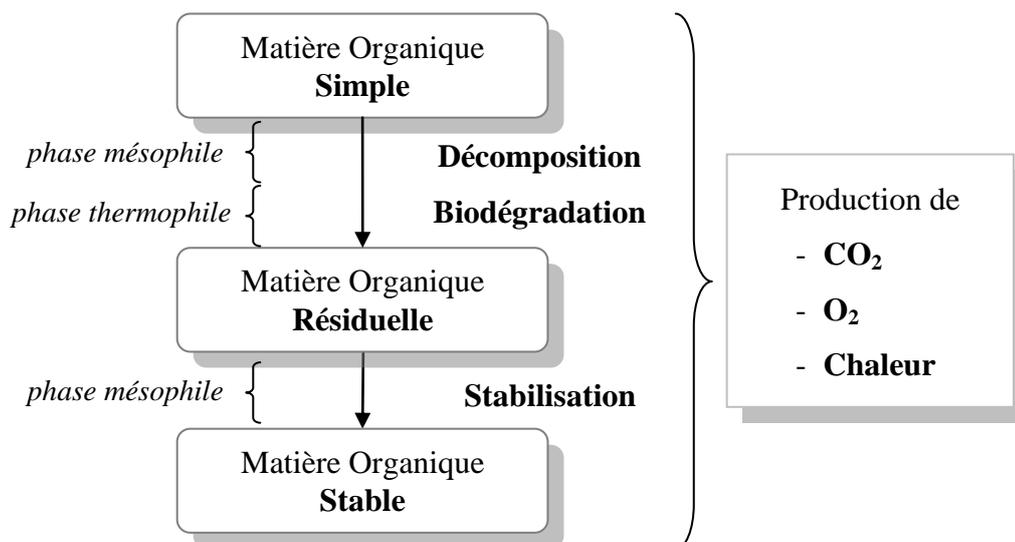


Figure 6 : Dégradation de la matière organique en conditions aérobies (d'après Gourdon, 2001).

Ces mécanismes de dégradation interviennent notamment lors du compostage. Ce procédé est en effet défini comme étant un procédé biologique contrôlé de dégradation et de transformation de la matière organique par un consortium microbien évoluant en conditions aérobies et conduisant à l'élaboration d'une matière organique humifiée et stabilisée (Sharma *et al.*, 1997 ; Francou *et al.*, 2008). Dans le cas des déchets, le comportement de la matière organique est similaire à celui de l'humification naturelle des résidus organiques en substances humiques dans les sols (Antizar-Ladislao *et al.*, 2006). Les différentes communautés microbiennes se succédant au cours du compostage sont majoritairement constituées de bactéries, de champignons et de protozoaires (Tuomela *et al.*, 2000 ; Hassen *et al.*, 2001). Les mécanismes de transformation de la matière organique au cours du procédé de compostage peuvent se décomposer en différentes phases définies selon l'évolution de la température au sein du massif de déchets. En outre, bien que globalement en conditions aérobies, la présence de zones anaérobies au cours du procédé a été mise en évidence par certains auteurs pendant les premières phases de dégradation du fait de l'intense activité microbienne consommatrice d'oxygène et génératrice de CO<sub>2</sub> mais également à cause d'une aération insuffisante (Beck-Friis *et al.* 2000).

## II.2. Dégradation anaérobie de la matière organique

Les processus de dégradation anaérobie de la matière organique ont été principalement étudiés dans des travaux portant sur des fermenteurs, des méthaniseurs et lors de l'enfouissement des déchets

La dégradation d'un substrat donné s'effectue dans des conditions d'anaérobiose, une quantité substantielle d'oxygène peut toutefois être initialement présente. Les réactions pouvant se produire lors de cette courte phase aérobie sont celles précédemment décrites (Partie I - II.1) et correspondant à la dégradation de macromolécules organiques (facilement dégradables et oxydables) en monomères. Certains polymères difficilement biodégradables sont également rendus accessibles pour la suite de la dégradation. En effet, cette première étape dite d'**hydrolyse** est importante notamment car le déroulement des autres phases de dégradation en découle. Elle dépend de la quantité d'oxygène disponible (initialement emprisonnée) et peut être considérée comme l'étape limitante de la digestion anaérobie en fonction des possibilités de diffusion de l'oxygène

(Aguilar-Juarez, 2000). La diminution progressive de la quantité d'oxygène crée des conditions d'anaérobiose au cours desquelles différentes étapes se succèdent ; les produits d'une étape devenant les substrats de l'étape suivante (Figure 7).

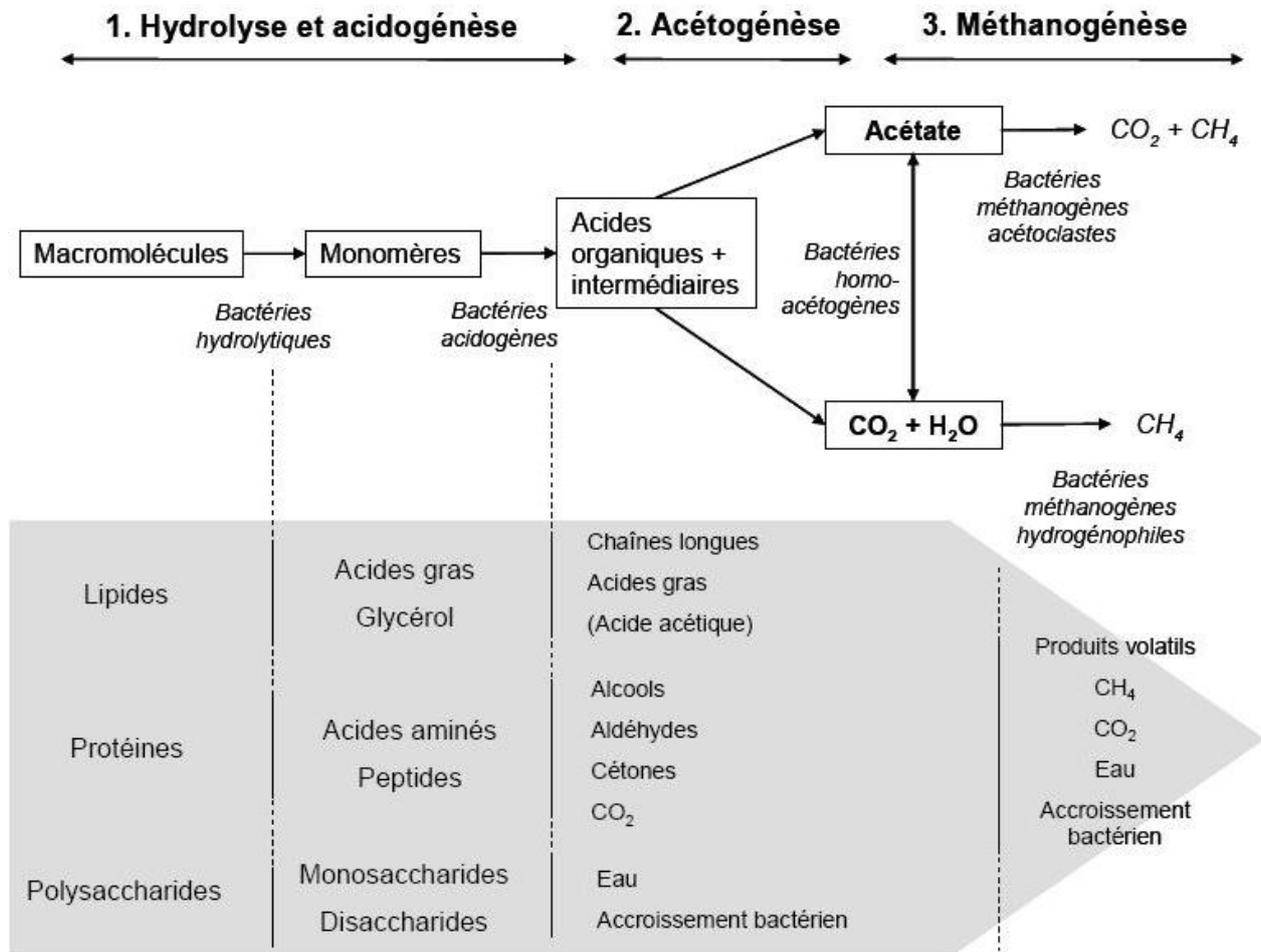


Figure 7 : Voies de dégradation de la matière organique en conditions anaérobies (Marcato, 2007).

La dégradation de ces matrices solides s'effectue par le biais de différents mécanismes de type physique (échange d'ions, adsorption, absorption, filtration, évaporation, extraction, encapsulation...), chimique (neutralisation, précipitation, oxydation, réduction, complexation, ionisation, réaction acide-base...) et biologique (hydrolyse, catabolisme, fermentation, nitrification, dénitrification, réduction des sulfates, minéralisation...). Le système est extrêmement dynamique et au sein duquel de nombreux processus ont lieu simultanément ; l'action de chaque processus influençant celle des autres. De plus, les différentes étapes de cette dégradation sont conditionnées par l'action d'un écosystème microbien complexe. L'ensemble des réactions de dégradation du déchet aboutissent à une libération (et consommation) de liquides (lixiviats) et de gaz (biogaz) dans des conditions anaérobies.

Ainsi, au cours de la digestion anaérobie, l'ensemble des réactions de dégradation et de transformation de la matière organique est imputée à un consortium bactérien au sein duquel chaque type de microorganisme a un rôle défini par les conditions du milieu. Ainsi, la gamme de températures pouvant varier de 10 à 65°C au cœur du substrat, des bactéries psychrophiles (10 à 25°C), mésophiles (25 à 45°C) et thermophiles (45 à 65°C) fonctionnent en synergie (Barlaz *et al.*, 1990). Ces trois grands groupes de microorganismes se composent selon leur affinité avec l'oxygène en bactéries anaérobies facultatives ou strictes (pour les étapes d'**hydrolyse** et

d'**acidogénèse**) et en bactéries anaérobies strictes (acétogènes productrices obligées d'hydrogène pour l'étape d'**acétogénèse** et Archaeobactéries pour l'étape de **méthanogénèse**) (Gourdon, 2001).

Les monomères issus de la dégradation des macromolécules organiques en phase d'hydrolyse sont à leur tour dégradés, au cours de l'**acidogénèse**, en acides organiques à courte chaîne (Acides Gras Volatils tels que l'acétate, le butyrate ou le propionate), en alcools (éthanol, glycérol ou méthanol) ou en cétones (acétone), avec une libération d'azote ammoniacal (sous forme de  $\text{NH}_4^+$  ou  $\text{NH}_3$ ) dans le cas d'une hydrolyse des protéines, de dioxyde de carbone ( $\text{CO}_2$ ) et d'hydrogène ( $\text{H}_2$ ). Cette phase, à l'origine d'une acidification du milieu, est généralement très rapide en raison du fort taux de croissance des bactéries mises en jeu.

Les acides gras volatils (AGV), les alcools et les cétones précédemment générés sont immédiatement transformés en acétate ( $\text{CH}_3\text{COO}^-$ ), dioxyde de carbone ( $\text{CO}_2$ ) et hydrogène ( $\text{H}_2$ ) au cours de l'étape d'**acétogénèse**. Les populations microbiennes intervenant dans cette réaction sont soit des bactéries homo-acétogènes ayant une production exclusive d'acétate à partir d'hydrogène notamment soit des bactéries productrices obligées d'hydrogène (OHPA) à l'origine de la génération d'hydrogène. La présence de ces deux types de bactéries contribue à la régulation de l'hydrogène dans le milieu.

Le maintien des conditions anaérobies favorise le métabolisme d'une flore méthanogène utilisant l'acétate, le dioxyde de carbone et l'hydrogène comme substrat afin de produire du biogaz principalement composé de méthane ( $\text{CH}_4$ ). Cette étape de **méthanogénèse** s'effectue par deux voies métaboliques distinctes selon la nature du substrat dégradé. Les bactéries méthanogènes acétoclastes utilisent l'acétate comme substrat alors que les bactéries méthanogènes hydrogénotrophes produisent du biogaz par conversion du gaz de fermentation ( $\text{CO}_2$  et  $\text{H}_2$ ) en méthane. Ce double mécanisme a la particularité d'éliminer l'hydrogène gazeux et de réguler la production d'AGV. Des mécanismes parallèles à ces différentes phases peuvent avoir lieu en présence de sulfate dans un milieu très réducteur. Des bactéries sulfato-réductrices transforment l'hydrogène en dioxyde de carbone et sulfure d'hydrogène ( $\text{H}_2\text{S}$ ). Lorsque la concentration en sulfate est élevée, les réactions de sulfato-réduction entrent en compétition avec la méthanogénèse

La baisse de la production de biogaz est souvent assimilée à un état de stabilisation du système au sein duquel, la matière organique est biodégradée au maximum et seules les substances les plus stables telles que l'humine, les acides de type humiques et fulviques, composés organiques les plus complexes et les plus réfractaires, perdurent. Ce processus souvent mal défini de stabilisation de la matière organique est assimilable au stade d'humification des sols ou des composts (Berthe *et al.*, 2008 ; Francou *et al.*, 2008). L'ensemble du processus de dégradation de la matière organique d'un substrat donné peut être résumé selon le schéma (Figure 8).

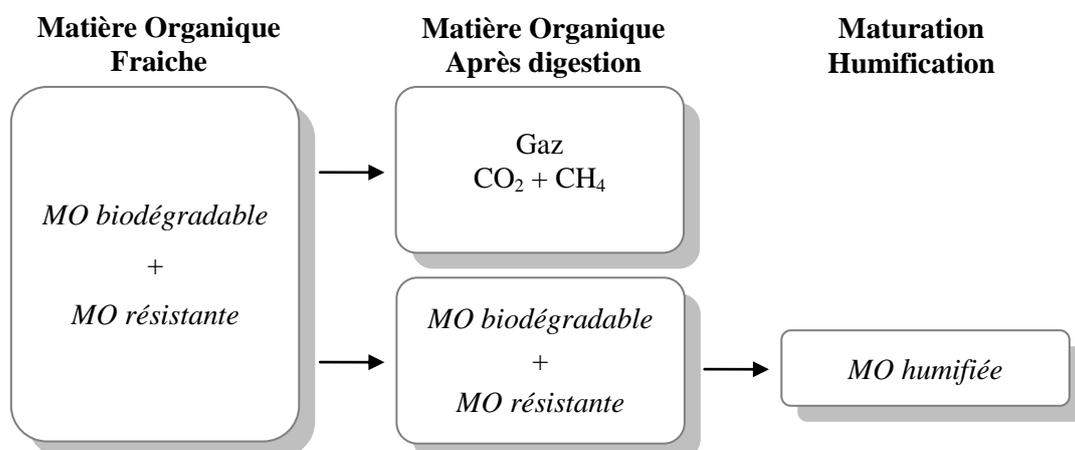


Figure 8 : Evolution de la matière organique par digestion anaérobie.

Toutes ces réactions théoriques sont soumises aux conditions thermodynamiques du milieu garanties par une syntrophie étroite entre les membres du consortium bactérien. Ainsi, une variation des conditions physico-chimiques du milieu engendre un dysfonctionnement du processus de dégradation et une inhibition de la méthanogénèse.

La succession de ces différentes étapes aboutit donc à la minéralisation de la matière organique et à sa transformation en molécules plus complexes. Dans la pratique, la distinction entre les différentes phases est difficile et approximative. L'attribution d'une échelle de temps à chacune de ces phases l'est également car les vitesses d'évolution sont très variables d'un système à un autre. En effet, la vitesse de réaction de la digestion anaérobie dépend de la vitesse de croissance des microorganismes présents (chaque réaction biologique possède son propre métabolisme) et de la composition initiale du produit à dégrader. Ainsi, étant donné le nombre important d'étapes et de genres bactériens présents dans le processus de dégradation anaérobie, la vitesse globale de réaction s'ajustera en fonction de celle de l'étape la plus lente.

En outre, la biodégradabilité de substrats organiques solides dépendant de leur disponibilité pour les microorganismes, les caractéristiques physiques de la matrice initiale (granulométrie, humidité...) doivent être suffisantes pour permettre aux microorganismes l'accès aux substances à dégrader.

*L'évolution de ces différentes phases de dégradation ainsi décrite est une vision théorique qui ne représente pas réellement ce qui se passe au cœur d'un massif de déchets lors de l'enfouissement. En effet, un massif de déchets est un milieu hétérogène avec des surfaces d'échange, des zones de tassement, et des gradients de température et d'humidité spécifiques (Fermor, 1993). En outre, sachant que désormais seuls les déchets dits ultimes sont admis en centre de stockage, les réactions biologiques décrites ci-dessus devraient tendre à disparaître car cette mesure implique que les déchets organiques ne seront plus enfouis qu'après traitement. Seuls les centres de stockage actuellement en cours d'exploitation ou en phase de suivi post exploitation fonctionneront selon cette évolution théorique. Un nouveau comportement des centres de stockage dû à un nouveau mode d'exploitation reste donc à étudier.*

### II.3. Facteurs influençant la dégradation d'un déchet lors de l'enfouissement

Du fait de la diversité des espèces bactériennes mises en jeu ainsi que de l'interdépendance des différentes étapes du processus, plusieurs paramètres peuvent interférer dans le bon déroulement de la digestion anaérobie (Trably, 2002). De plus, les mécanismes biologiques induits par ses microorganismes sont à la fois dépendants et déclencheurs des conditions physico-chimiques du milieu dans lequel ils évoluent. De ce fait, chaque modification de ces paramètres, même minime, a des effets directs multiples sur l'activité microbienne et donc sur les étapes de dégradation.

Le Tableau I présente les différents facteurs susceptibles d'influencer la dégradation des déchets (François, 2004 ; Gachet, 2005 ; Berthe, 2006). Cette influence peut se faire de façon à favoriser la dégradation ou de manière plus drastique par une inhibition des mécanismes biologiques in-situ. La mesure de ces paramètres peut s'effectuer sur le déchet en amont de l'enfouissement, sur l'installation de stockage au cours de son exploitation ou sur le lixiviat et le biogaz générés. Les gammes de valeurs de chacun de ces paramètres généralement rencontrées dans la littérature sont très variables d'un auteur à l'autre du fait notamment des conditions expérimentales au cours desquelles ces résultats ont été obtenus.

Tableau I : Facteurs et espèces influençant la dégradation anaérobie des déchets.

Facteurs	Effet / Conséquence	Gamme de valeurs		Références
		optimal	critique	
Compactage	E : Amélioration du contact substrat / microorganismes C : Baisse de la perméabilité			Yuen <i>et al.</i> , 1995 Palmowski et Muller, 1999
Broyage	E : Homogénéisation par augmentation surface de contact C : Augmentation de la biodégradation			Sponza et Agdag, 2005
Humidité	E : Développement microorganismes C : Accumulation des AGV	> 25-30% = 55% > 60%	25 % 50 % saturation	Palmisano et Barlaz, 1996 Purcell <i>et al.</i> , 1997 Gachet, 2005
Nutriments (C, N, P)	E : Apport en éléments nutritifs C : Déséquilibre de l'activité biologique	MO/N/P=1250/5,5/1 C/N =16 C/N/P= 100/4/1		Mata-Alvarez ,2002 Agdag et Sponza, 2007
Température	E : Accroissement de l'activité bactérienne C : Augmentation de la production de biogaz	30 - 35°C 35 - 40°C	45 - 65°C	Yuen <i>et al.</i> , 1995 Mata-Alvarez, 2002
Oxygène	E : Oxydation de la charge organique C : Limite ou empêche la méthanogenèse			(Barlaz <i>et al.</i> , 1990 Aguilar-Juarez, 2000
pH	E : Modification des conditions chimiques du milieu C : Inhibition des bactéries	6 - 8 6,8 - 7,5	< 6	Yuen <i>et al.</i> , 1995 Chugh <i>et al.</i> , 1998
Potentiel d'oxydoréduction	E : Modification des conditions chimiques du milieu C : Modification des phases de dégradation	> -100 mV > - 200 mV -200 à -300 mV		Pohland et Al-Yousfi, 1994 François, 2004
AGV	Inhibition de l'action des microorganismes	< 3 g/L	6 g/L > 10 g/L	Ehrig, 1983 Aguilar <i>et al.</i> , 1995
TAC	Régulation du pouvoir tampon	> 2g/L		Yuen <i>et al.</i> , 1995
N	Apport de nutriments azotés pour les bactéries	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> : 50-200mg/L	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> : 1,5 - 3g/L	Yuen <i>et al.</i> , 1995
S	Inhibition de la méthanogenèse	< 200 mg/L		Wens <i>et al.</i> , 2001

En amont de tout processus de dégradation, les caractéristiques physico-chimiques du déchet entrant en centre de stockage ont un impact majeur sur le comportement de ce dernier en conditions anaérobies (Qu *et al.*, 2008). La composition du déchet, de part son hétérogénéité, garanti aux microorganismes présents un apport varié en différents éléments (C, N, P, S). Le carbone, principalement contenu dans la matière organique, est utilisé par les microorganismes pour les besoins énergétiques et la synthèse des nouveaux constituants cellulaires. La consommation de carbone est 15 à 30 fois plus importante que celle de l'azote pourtant considérée comme un nutriment principal à la croissance bactérienne. Ce paramètre est donc essentiel à la dégradation du déchet afin d'éviter les phénomènes de carences susceptibles de bloquer certaines étapes réactionnelles.

Le conditionnement des déchets (compostage, broyage, humidité...) influe quant à lui sur leur biodisponibilité pour les microorganismes augmentant la biodégradation notamment lors de l'étape d'hydrolyse avec une solubilisation des macromolécules organiques (Valencia *et al.*, 2009). La granulométrie et le compactage des déchets se sont ainsi avérés être pertinents dans l'accélération de la biodégradation (Warith, 2002).

Des déchets broyés conduisent à une production plus importante de méthane (Buivid *et al.*, 1981 ; Sanders *et al.*, 2000) du fait de l'augmentation des aires spécifiques de contact favorisant l'efficacité d'une plus grande concentration en bactéries pour dégrader le déchet. Il y a toutefois un pallier au-delà duquel le broyage n'a plus d'effet significatif sur la dégradation et notamment sur la production de biogaz. La limite technico-économique est également très importante à prendre en considération lors d'une étape de broyage des déchets. En effet, le surcoût lié à l'étape de broyage ne doit pas être trop important.

L'humidité est un paramètre clé de la croissance microbienne. Pour se développer correctement, les microorganismes ont besoin d'une quantité d'eau minimale correspondant à la quantité d'eau vitale nécessaire à leur développement, leur mobilité et leur diffusion. Un manque d'eau est souvent responsable d'un retard dans la dégradation des déchets (Chugh *et al.*, 1998). Les données varient, selon les auteurs, entre 40 et 80 % de la masse sèche même si la majorité des auteurs recommandent un taux d'humidité supérieur à 60 % (Yuen *et al.*, 1995 ; Purcell *et al.*, 1997 ; Reinhart *et al.*, 2002). Les résultats obtenus lors d'essais en colonne ont montré qu'une humidité de 55 % est suffisante pour obtenir un taux de biodégradation et une vitesse de production de biogaz importants (Gachet, 2005). Une humidité trop importante, proche de la saturation, s'avérerait inhibitrice pour les réactions de dégradation (Gurljala et Suflita, 1993) car la dilution rendrait moins efficaces les actions des microorganismes sur le substrat solide à dégrader. Néanmoins, ce paramètre est difficile à contrôler du fait de l'hétérogénéité de la matrice responsable de variations spatiales du taux d'humidité (Kelly *et al.*, 2006).

En outre, même si la dégradation anaérobie des déchets est principalement liée à des réactions biologiques, la prise en compte de paramètres physico-chimiques est essentielle car il s'agit bien de réactions chimiques et biochimiques qui régissent l'ensemble de ces processus biologiques. En effet, les mécanismes de dégradation anaérobie sont fortement influencés par les conditions d'oxydoréduction, de pH, de température mais également par différents équilibres chimiques. La température est l'un des facteurs les plus importants car elle détermine la nature des populations microbiennes actives pendant la dégradation et contrôle de ce fait les vitesses des cinétiques biochimiques. Pour chacune des populations présentes, il existe une température optimale au-delà de laquelle les réactions de dégradation peuvent être complètement inhibées ; une température supérieure à 70°C risque de bloquer les processus méthanogènes.

Selon leur concentration et leur disponibilité dans le milieu, certaines espèces (hydrocarbures, AGV, chloroforme...) peuvent influencer sur le métabolisme de la flore microbienne. L'étape de méthanogenèse présente également une sensibilité particulière envers les métaux lourds, les sulfates, l'ammoniaque et certains autres cations pour lesquels l'effet inhibiteur est encore peu connu. Une attention particulière est portée à la teneur en acides gras volatiles (AGV) car ils

constituent la principale cause d'inhibition du système : l'inhibition due aux AGV a un effet bactériostatique pour la population méthanogène. Le suivi de ce paramètre est donc essentiel afin de détecter tout problème de stabilité du processus (Bolzonella *et al.*, 2003). Le seuil d'inhibition à ne pas dépasser diffère selon les auteurs mais se situe généralement entre 3 et 10 g/L (Aguilar *et al.*, 1995 ; Yuen *et al.*, 1995). La forme inhibitrice voire toxique de l'azote pour les microorganismes méthanogène est l'azote ammoniacal. Ainsi, un blocage de la dégradation des déchets par accumulation de  $\text{NH}_4^+$  est mentionnée dans la littérature avec des concentrations de l'ordre de 3g/L (Wens *et al.*, 2001).

*L'ensemble des paramètres influant est maintenant bien connus mais leurs effets individuels demeurent encore difficilement quantifiables en raison de leur mutuelle dépendance. De manière générale, un dérèglement de certains de ces paramètres peut donc être responsable d'un ralentissement ou d'une disparition de l'activité microbiologique mais également d'un effet inhibiteur souvent irréversible ou tout du moins difficilement maitrisable en conditions de stockage. La connaissance de la matrice entrante ainsi que des caractéristiques de fonctionnement de l'installation utilisée s'avèrent donc être indispensables au bon déroulement de la dégradation des déchets en centre de stockage.*

### **III. Modes de gestion des déchets**

Depuis leur source de production jusqu'à leur élimination, la gestion des déchets ménagers et assimilés implique de nombreux modes de traitement tels que la prévention à la source, le tri et le recyclage, la méthanisation, l'incinération ou l'enfouissement en centre de stockage (Figure 4). Le choix de l'un de ces modes de gestion est étroitement lié à des conditions technico-économiques mais surtout à la composition du déchet. En effet, le choix du mode de gestion, la compréhension et la recherche de solutions aux émissions inévitables de pollutions doivent tenir compte de l'hétérogénéité des déchets. En outre, malgré la diversification des modes de gestion, le stockage apparaît encore comme l'étape finale et inévitable de la gestion intégrée des déchets ménagers et assimilés. Par conséquent, ces différentes étapes de la gestion des déchets ménagers et assimilés ont une influence sur la quantité et la qualité des déchets admis en centre de stockage. Ainsi, la réduction de déchets à la source et le recyclage induisent une modification des caractéristiques bio-physico-chimiques des déchets enfouis. La mise en place de la collecte sélective entraîne une réduction de la pollution métallique mais également une concentration des éléments inertes dans le déchet résiduel non valorisables allant en centre de stockage.

*Cette partie de l'étude bibliographique sur la gestion des déchets ménagers et assimilés se concentre sur les modes de gestion biologique (compostage et méthanisation) et de stockage en négligeant les filières de valorisation matière (recyclage, tri...) et de valorisation énergétique comme l'incinération car elles ne font pas partie de la suite de l'étude.*

#### **III.1. Le compostage**

Le compostage est une pratique ancestrale de valorisation de la matière reproduisant le processus naturel de transformation dans le sol des matières organiques fraîches, d'origine animale et végétale, en matière organique humifiée, communément appelée humus. L'évolution des déchets suivant étroitement celle des sociétés, les déchets compostés aujourd'hui sont bien différents de ceux du passé qui étaient essentiellement organiques même si en théorie, tout déchet organique biodégradable est compostable (Manlay *et al.*, 2007). Ainsi, aux composts « artisanaux » destinés à un usage très local se sont ajoutés les composts industriels visant à digérer les déchets des

collectivités (déchets urbains) et des industries (effluents d'élevage, déchets de sucreries de la filière betteravière et déchets de papeteries). De plus, la pratique du compostage s'est fortement développée en France depuis quelques années du fait de l'évolution de la réglementation en matière de gestion des déchets imposant une réduction de la part biodégradable avant enfouissement (directive européenne 99/31/CE).

Ce procédé possède de nombreux avantages notamment la transformation d'un matériau en fin de vie, le déchet, en un amendement organique stable : le compost. Il engendre également une réduction de masses et de volumes d'environ 50 % par rapport aux déchets initiaux dues à la minéralisation des composés organiques, à la perte d'eau et à la modification de la porosité du milieu (Das et Keener, 1997 ; Eklind et Kirchmann, 2000). Cette perte de masse est majoritairement de la matière organique (Kirchmann et Widen, 1994). La dégradation aérobie thermophile au cours du processus de compostage a également un effet hygiénisant du fait des gammes de températures atteintes, de la durée du traitement, du développement d'une flore saprophyte rentrant en compétition avec les populations pathogènes et la stabilisation durable de la matière organique (Sæbø et Ferrini, 2006). Le compostage présente également la particularité de pouvoir être réalisé sur des tonnages très faibles (compostage individuel) ou très importants (installations industrielles de plusieurs dizaines de milliers de tonnes de capacité annuelle).

Les déchets dits urbains pouvant être compostables sont répartis en cinq catégories selon leurs caractéristiques physico-chimiques (Figure 9).

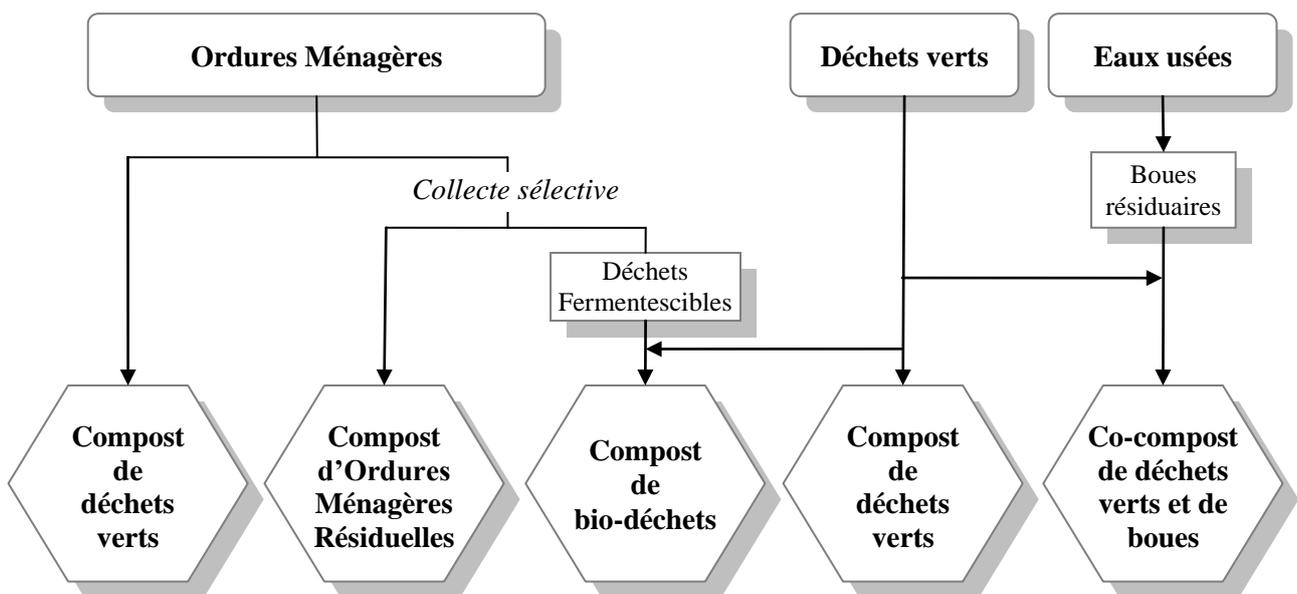


Figure 9 : Différents types de composts urbains (Francou, 2003).

En raison de leur très forte humidité, les boues de stations d'épuration urbaines doivent être mélangées à un composé plus structuré comme les déchets verts afin d'être compostées. Ils regroupent l'ensemble de déchets végétaux issus des jardins publics ou privés (tontes d'herbe, élagage, feuilles...). Les déchets ménagers peuvent être séparés en deux sous catégories : la fraction résiduelle des déchets ménagers obtenue après séparation des papiers-cartons, verres, emballages et la fraction fermentescible correspondant aux déchets organiques biodégradables également appelés bio-déchets. En outre, la collecte sélective des déchets fermentescibles, en vue de leur compostage, s'inscrit dans les objectifs de la directive européenne 99/31/CE de réduction de la part de déchets évolutifs enfouis. La répartition des tonnages traités par compostage des principaux déchets organiques urbains en France est présentée dans le Tableau II.

En France, plus de 400 plates-formes de compostage traitent plus de 3,8 Mt de déchets de différentes origines et génèrent environ 2 Mt de composts (ADEME, 2006).

Tableau II : Installations de compostage en 2006 en France.

	<b>Ordures ménagères</b>	<b>Bio-déchets</b>	<b>Déchets verts</b>	<b>Boues (+ Déchets verts)</b>
<b>Nombre de sites</b>	65	40	215	126
<b>Quantité traitée (Mt)</b>	1,35	0,14	≈ 1,5	0,89
<b>Composts produits (t)</b>	0,5	0,17	0,92	0,45

Outre la diversité des déchets compostables, de nombreux procédés de compostage conduisent à une grande variabilité des composts produits. Les systèmes de compostage vont des plateformes les plus simples (constituées uniquement d'une surface à l'air libre et de quelques engins) aux plateformes les plus sophistiquées (constituées d'espaces abrités, de systèmes de ventilation ou d'appareils de contrôle continu). Les principaux procédés de compostage existants se distinguent selon la configuration de l'installation et le type d'aération. Selon le mode d'aération choisie, la mise en place de retournements peut s'avérer indispensable. La fréquence de retournement est fonction du taux de décomposition, du taux d'humidité, de la porosité des matériaux et de la durée de compostage. Le taux de décomposition étant plus important au début du processus, la fréquence de retournement diminue au fur et à mesure de l'avancement de la dégradation. En outre, l'augmentation de la température due à l'activité biologique aérobie combinée à l'aération conduisent à un assèchement important pouvant bloquer le processus de transformation de la matière. Un contrôle périodique de l'humidité au cours de traitement suivi d'un ajout d'eau afin de maintenir l'humidité à son niveau optimal s'avère donc indispensable.

Les déchets doivent également être parfaitement mélangés préalablement à leur compostage afin d'éviter une mauvaise répartition de l'air et un compostage irrégulier. Une bonne structure permet également au déchet de conserver une porosité constante tout au long du processus.

Le compostage peut se faire en andains, en récipients clos ou sous forme de vermi-compostage. Le compostage en andains consiste à placer un mélange de matières premières dans de longs tas étroits appelés andains. Trois types de procédés sont couramment employés : le compostage en andains retournés, le compostage en andains aérés passivement et le compostage en tas statiques aérés (Figure 10).

Dans le cas du compostage en andains retournés, l'apport d'air est simplement du au retournement du massif à traiter alors que pour les procédés aérés (passivement ou intégralement) une insufflation d'air est indispensable et le retournement moins fréquent voire inexistant (tas statiques aérés). Le taux d'échange avec l'air dépend de la taille de l'andain et de sa porosité. Quand l'andain est trop grand, des zones anaérobies peuvent alors se créer et à l'inverse des andains trop petits favorisent la déperdition de chaleur ralentissant le processus de biodégradation.

Le compostage en récipients clos regroupe l'ensemble des techniques pour lesquelles les matières à composter sont confinées selon quatre types de procédés : en casiers, en lits rectangulaires remués, en silos ou en tambours rotatifs. Ces méthodes sont basées sur l'aération forcée du massif et comprennent des techniques mécaniques de retournement visant à accélérer le processus de compostage. La technologie du compostage en casier se définit comme des murs et un toit servant à contenir les matières à traiter ainsi qu'un système d'aération forcée à la base du casier ; ce procédé nécessite peu voire aucun retournement. Le fonctionnement en casiers permet de s'affranchir des problèmes climatiques, de maîtriser les odeurs et ainsi offrir un meilleur contrôle de la température. Le système dit à lit remué est une combinaison des méthodes d'aération contrôlée et de retournement périodique. Le compostage a lieu entre des murs qui forment de longs et étroits

couloirs appelés lits, le retournement est effectué par un système mécanique circulant en haut de chaque mur (Figure 10).

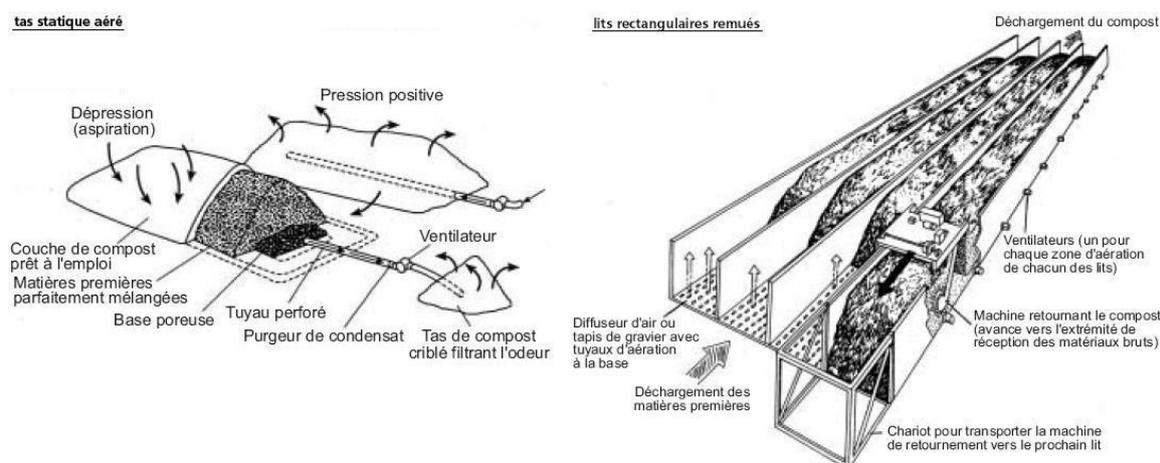


Figure 10 : Représentation schématique de deux procédés de compostage : tas statique aéré et lits rectangulaires remués.

Le vermi-compostage également appelé lombricompostage quant à lui correspond à l'utilisation de vers capables de dégrader les résidus organiques. Les espèces concernées peuvent absorber et rejeter chaque jour l'équivalent de leur poids tout en favorisant l'apport d'oxygène au sein du massif de déchets à traiter.

*Dans le cas d'une matrice aussi complexe que le déchet ménager et assimilé, la mise en place d'un procédé de compostage et notamment la valorisation du compost obtenu est rendu difficile par la présence d'éléments polluants et/ou toxiques tels que le verre, le plastique ou les éléments métalliques. En effet, le résidu obtenu ne peut pas être valorisé selon la norme française NF U44-051 relative aux amendements organiques. Le procédé de compostage de part la biotransformation aérobie de la matière qu'il génère peut toutefois être considéré comme un excellent prétraitement avant enfouissement.*

### III.2. La méthanisation

Au cours de ces dernières années, le traitement des déchets par méthanisation s'est très fortement développé en Europe mais également en France. Il s'agit d'un procédé très ancien (identifié en 1776) dont l'adaptation aux déchets ne date pourtant que les années 1990. L'intérêt énergétique est à l'origine du développement de la méthanisation. En effet, elle correspond à une digestion anaérobie de la matière organique par écosystème microbien en biogaz, mélange de méthane (CH<sub>4</sub>) et de gaz carbonique (CO<sub>2</sub>) hautement valorisable.

La méthanisation est considérée comme une méthode qui permet à la fois de récupérer de l'énergie mais également d'éliminer des déchets ou tout du moins d'en réduire le volume et d'en modifier la composition. En effet, le résidu solide non digéré appelé digestat correspond à la fraction peu ou difficilement biodégradable du déchet entrant. Dans le cas de résidus organiques, le digestat peut être composté et aura après maturation des propriétés analogues à celles d'un compost élaboré avec le même déchet initial.

La méthanisation concerne principalement la valorisation des déchets agricoles (résidus de culture, déjections animales...) et des industries (papeterie, agro-alimentaire, pharmaceutique...) mais également des boues urbaines. Toutefois, ce procédé s'étend peu à peu au traitement des ordures ménagères (Fraction Fermentescible). Ce traitement est particulièrement bien adapté aux effluents

chargés et notamment à ceux qui contiennent une forte proportion de carbone par rapport à l'azote et phosphore ; la composition idéale de la matrice à traiter est de l'ordre de : MO/N/P = 1250/5,5/1 (Mata-Alvarez, 2002).

Les données liées à ces unités de méthanisation en France sont mentionnées dans le Tableau III (ADEME, 2006).

Tableau III : Installations de méthanisation des déchets français en 2007.

	<b>Boues de STEP</b>	<b>Déchets industriels</b>	<b>Déchets ménagers</b>	<b>Déchets agricoles</b>
<b>Nombre d'installations</b>	68	103	5	6
<b>Capacité de traitement</b>	17,7 M <sub>eqhab</sub>	853 t <sub>DCO</sub> /j	331 000 t/an	< 80 000 t/an
<b>Coût du traitement</b>	56 - 120 €/tMS	20 - 70 €/tDCO	80 €/tDCO	
<b>Production énergétique</b>	345 GW <sub>th</sub> 45 GW <sub>elec</sub>	196 GW <sub>th</sub> 4 GW <sub>elec</sub>	32 GW <sub>th</sub> 31 GW <sub>elec</sub>	1,3 GW <sub>th</sub> 3,3 GW <sub>elec</sub>

th : thermique / elec : électrique

Ces chiffres sont en constante évolution ; les unités de méthanisation de déchets ménagers sont de 6 en 2010 et devrait atteindre 25 d'ici à 2015 (ADEME, 2006).

La mise en œuvre d'un procédé de méthanisation, quelque soit le déchet à traiter, va dépendre de plusieurs paramètres notamment la teneur en matière sèche (solide ou liquide) et le type de matière (particulaire ou soluble). De manière générale, l'étape de méthanisation est un processus endothermique qui se déroule en enceinte fermée (digesteur, fermenteur, ou réacteur) généralement calorifugée afin d'y maintenir une température constante. Les caractéristiques d'une installation dépendent des systèmes d'alimentation (pompe, gravité), du type de digesteur (batch, continu, semi-continu, discontinu, multi-étages), du type d'agitation (mécanique, hydraulique...) ou encore de la technologie utilisée pour récupérer et stocker le biogaz (gazomètre, couverture flexible...). La technologie à mettre en place est donc adaptée aux caractéristiques de la matrice à traiter ; les différents réacteurs de méthanisation disponibles sont présentés sur la Figure 11. Une erreur de conception ou de dimensionnement entraîne des dysfonctionnements du procédé généralement caractérisés par une accumulation d'AGV susceptible de bloquer la dégradation (Marcato, 2007).

Ainsi, les procédés se distinguent principalement dans un premier temps selon la teneur en matière sèche (Marcato, 2007) :

- les procédés à voie humide (MS < 15 %) : utilisés pour les effluents dits liquides (boues, lisiers) ou pour les déchets solides après dilution.
- les procédés à voie sèche (MS entre 15 et 40 %) : utilisés pour les déchets solides.

La température de réaction permet également de différencier 2 types de digestion anaérobie :

- la digestion anaérobie mésophile : température de 35°C et temps de 3 semaines.
- la digestion anaérobie thermophile : température de 55-60°C et temps de 10-15 jours.

Pour finir, le mode d'alimentation et d'extraction des déchets est à l'origine de 4 types de procédés distincts :

- les procédés continus : utilisés pour les matrices liquides ; l'alimentation et la vidange du digesteur se font en permanence avec une quantité entrante équivalente à celle sortante.

- les procédés discontinus (batch) : utilisés pour les déchets solides ; les digesteurs sont remplis puis vidés séquentiellement lorsque la production de biogaz chute ou devient nulle.
- les procédés semi-continus : le digesteur est progressivement rempli par des charges successives convenablement réparties dans le temps et la vidange n'est réalisée que lorsque le volume utile du digesteur est atteint et que la production de biogaz n'est plus suffisante.
- les procédés multi-étages : les différentes étapes de la méthanogenèse (hydrolyse, acidogenèse, acétogenèse et méthanogenèse) se font dans un réacteur différent.

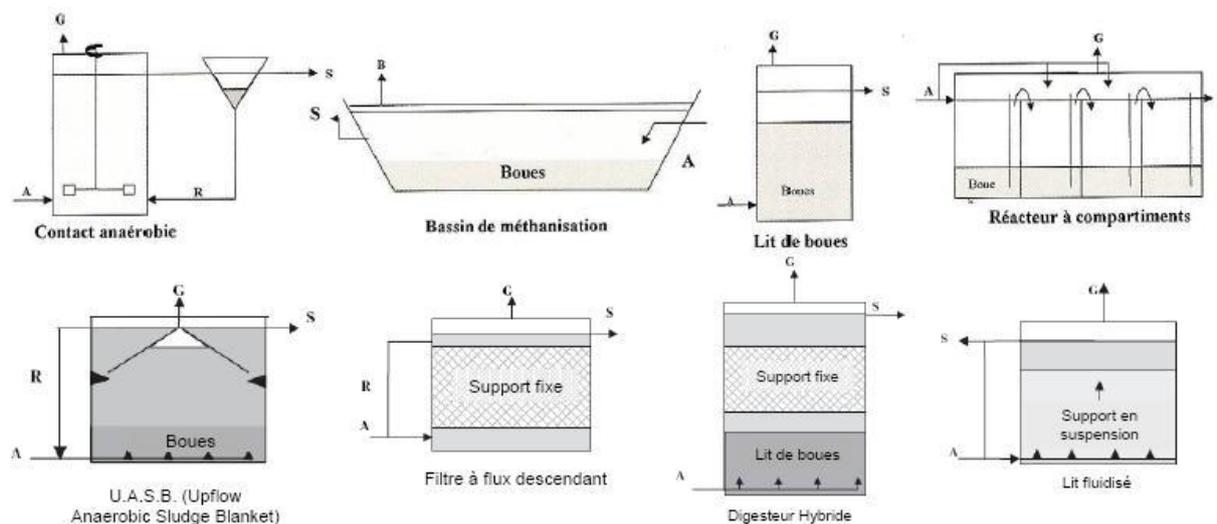


Figure 11 : Différents types de réacteurs de méthanisation (Moletta, 2005).

Pour l'ensemble de ces procédés, l'énergie produite par le biogaz (près d'1/3) est utilisée pour réchauffer et maintenir en température le digesteur. Les charges organiques appliquées sont très élevées et peuvent varier de 1 à 40 kg de DCO par m<sup>3</sup> de réacteur et par jour selon la technologie employée, le degré de biodégradabilité anaérobie de la matrice et la température utilisée. Cependant, même si la température influe sur les vitesses de réactions chimiques et biologiques améliorant la vitesse de dégradation et de formation du méthane, la quantité produite est inchangée. Les rendements de biodégradation de la matière organique sont de l'ordre de 60 à 70 % en réacteur infiniment mélangé sur des produits à forte concentration en matière solide et peuvent atteindre 95% d'abattement dans le cas de DCO soluble dans un réacteur à lit fixé ou fluidisé (Marcato, 2007).

En outre, compte tenu de la grande diversité de composition des déchets méthanisables, la mise en place d'un prétraitement est indispensable afin de les adapter à un traitement biologique anaérobie en système clos et ainsi tenter d'uniformiser la matrice entrante. Pour atteindre ces objectifs, des traitements physiques (homogénéisation, broyage, criblage...) ou biologiques (pré-compostage, ensemencement...) sont appliqués en amont de la digestion.

*Cette technologie présente donc de nombreux avantages résidant notamment dans la faible consommation énergétique du procédé et la possibilité de valoriser une partie de l'énergie biogaz produite contrairement à la voie aérobie où l'injection d'oxygène est indispensable et coûteuse. Néanmoins, le niveau de fiabilité de ce type d'installation n'est pas encore optimum et de nombreux problèmes d'exploitation, d'origine mécanique ou biologique, peuvent être rencontrés.*

### III.3. L'enfouissement

Malgré le développement des filières « nobles » de gestion des déchets telles que la collecte sélective, le tri, la valorisation matière ou le recyclage, la part résiduelle constituée par les refus de ces nouvelles filières est toutefois importante. Les conditions techniques et surtout économiques actuelles ne permettent pas d'éviter l'enfouissement. Des déchets contenant encore des matières biodégradables ou valorisables dont l'accessibilité est trop faible ou dont la valorisation est jugée non rentable sont ainsi encore stockés.

Au fil des avancés réglementaires, scientifiques et technologiques, les anciennes décharges généralement non contrôlées ont progressivement évoluées vers un concept de Centre de Stockage des Déchets Ultimes (CSDU). Il s'agit désormais de véritables sites industriels confinés, conçus et gérés de manière à minimiser les impacts sur l'environnement.

Ainsi, les centres de stockage étant des systèmes réactifs, leur implantation, leur exploitation et leur gestion doit se faire dans des conditions parfaitement maîtrisée (ADEME, 1999b). Dans un premier temps, le choix du site doit s'effectuer de manière à combiner les contraintes physico-chimiques de l'installation et les caractéristiques du sol. Ce dernier doit garantir la stabilité mécanique de la structure tout en préservant ses ressources en eau d'une éventuelle pollution. L'exploitation des installations de stockage est gérée en une subdivision de la zone d'exploitation en casiers eux-mêmes subdivisés en alvéoles. L'étanchéité inférieure est garantie par une structure multicouche constituée d'une barrière de sécurité active et d'une barrière de sécurité passive. Ce système permet de rendre les casiers hydrauliquement indépendants tout en favorisant la collecte et le drainage des lixiviats. Le remplissage des casiers (ou alvéoles) s'effectue par couches successives compactées de manière à assurer une cohésion mécanique du massif et limiter les nuisances olfactives et d'envols.

Le biogaz et le lixiviat générés sont collectés en vue d'être traités et/ou valorisés par le biais de drains placés respectivement au sein du massif de déchets et dans le système d'étanchéité inférieur. Au cours de la phase d'exploitation les centres de stockage ont l'obligation de contrôler et de maîtriser les flux entrant et les flux sortant. Dès qu'un casier est comblé, une couverture finale semi-perméable ou imperméable est mise en place sur les déchets de manière à les isoler de l'environnement extérieur réduisant également les volumes de lixiviats et de biogaz produits et facilitant le suivi post-exploitation. En effet, la réglementation impose la mise en place d'un suivi post-exploitation rigoureux aussi longtemps que le centre de stockage est susceptible d'entraîner un danger pour l'environnement (directive européenne 99/31/CE). Pendant cette période, l'exploitant reste responsable de l'entretien, de la surveillance et du contrôle des installations mais également de l'analyse des gaz, des lixiviats et des nappes d'eau souterraines. L'objectif étant de s'assurer de la sécurité et de la pérennité du système. Les modalités de suivi restent relativement identiques à celles réalisées au cours de l'exploitation avec toutefois une fréquence d'analyses moindre. Cependant, la durée de vie des centres de stockage s'étend bien au delà de leur date d'arrêt d'exploitation. Pour certains auteurs, il faut plusieurs centaines d'années pour atteindre un état dit « stabilisé » du système (Belevi et Baccini, 1989 ; Heyer *et al.*, 2005). En effet, la stabilisation des déchets, c'est-à-dire leur évolution vers un état physico-chimique définitif et inaltérable, débute dès leur enfouissement et se poursuit souvent pendant des décennies voire plus.

En dernier lieu, une réhabilitation du site grâce à une revégétalisation a lieu afin de protéger le sol de toute évolution climatique extérieure mais également de repositionner le site dans son environnement initial.

Depuis 1993, le parc des installations de stockage des déchets a diminué en nombre d'unités en France. Elles sont, en 2006, au nombre de 304 qui ont reçu 22,9 Mt de déchets (ADEME, 2009). La baisse constatée résulte pour partie de la fermeture de sites exploités sans l'autorisation requise ; une stabilisation semble toutefois s'installer malgré le double mouvement de fermetures et

d'ouvertures des sites. En outre, la montée de l'intercommunalité et le renforcement des réglementations relatives à la protection de la santé et de l'environnement ont eu pour effet de concentrer les installations. Les plus grandes installations peuvent recevoir jusqu'à 1,3Mt de déchets (ADEME, 2009).

*Les centres de stockage des déchets ont évolué peu à peu vers la création de sites respectueux de l'environnement. Ils sont conçus et gérés de manière à minimiser les quantités d'eau entrant en contact avec le déchet réduisant ainsi l'activité biologique anaérobie du fait de l'assèchement progressif du massif de déchets. L'objectif étant de ralentir la production de biogaz issu de la biodégradation anaérobie de la matière organique en phase méthanogène. Cependant, l'absence d'activité biologique dans un site parfaitement confiné ne signifie pas la complète stabilisation du massif de déchets. L'efficacité des systèmes d'étanchéité n'étant pas garantie à long terme, une infiltration d'eau dans le massif de déchets induirait une reprise non contrôlée de l'activité biologique caractérisée par la production de lixiviat et de biogaz non maîtrisée. Une meilleure stabilisation bio-physico-chimique des déchets enfouis dans un temps plus court s'avère donc indispensable afin de limiter ces risques environnementaux liés à une reprise de l'activité biologique. Différentes options techniques ont ainsi été envisagées et testées à l'heure actuelle : le prétraitement des déchets avant enfouissement ou encore la gestion des centres de stockage selon le concept bioréacteur.*

### III.4. Le concept Bioréacteur

Afin de satisfaire des exigences règlementaires et économiques toujours plus grandes, le concept de bioréacteur a été développé pour optimiser les conditions de dégradation biologique des déchets et atteindre plus rapidement la stabilisation (Yuen *et al.*, 1995 ; Reinhart *et al.*, 2002). Le concept de bioréacteur considère le massif de déchets comme un réacteur biologique clos (Barlaz *et al.*, 1990) dans lequel se produisent des réactions chimiques et biologiques complexes et pouvant être stimulés de manière à transformer et stabiliser plus rapidement le déchet tout en maîtrisant les émissions liquides et gazeuses (Reinhart *et al.*, 2002 ; Warith, 2002).

La stimulation de la dégradation s'effectue par le biais de procédés appropriés à l'activation des processus microbiologiques. L'humidité étant un paramètre clé de la croissance microbienne (Pohland, 1980), il a été choisi comme paramètre sur lequel se sont focalisés de nombreux travaux dès les années 70. La recirculation des lixiviats générés par le centre de stockage est utilisée comme la principale option technique permettant de maintenir une humidité suffisante (Reinhart et Al-Yousfi, 1996). En plus d'augmenter l'humidité du massif de déchets, la recirculation des lixiviats permet de véhiculer des nutriments essentiels aux micro-organismes en place mais également d'apporter des microorganismes pouvant coloniser des zones encore asséchées (Bilgili *et al.*, 2007 ; Vignerot *et al.*, 2007). Néanmoins, ce paramètre difficile à contrôler du fait de l'hétérogénéité de la matrice (Kelly *et al.*, 2006) doit être bien maîtrisé afin de ne pas inhiber les réactions de dégradation (Gurljala et Suflita, 1993).

La mise en place de ce concept peut s'effectuer en conditions aérobies (injection contrôlée d'air et recirculation des lixiviats) ou anaérobies (maintien du confinement et recirculation des lixiviats) (Reinhart *et al.*, 2002 ; Bilgili *et al.*, 2007 ; Erses *et al.*, 2008). Même si le bioréacteur aérobie présente, entre autres, l'avantage de dégrader les composés difficilement biodégradables en conditions anaérobies, ce mode de gestion présente des inconvénients techniques majeurs (humidité et température difficiles à maîtriser, surcoût de fonctionnement...). L'option de bioréacteur anaérobie est donc plus couramment utilisée.

L'un des objectifs principal du concept bioréacteur est d'atteindre la stabilisation du massif de déchets dans un délai relativement court de l'ordre de la génération. Les nombreuses études menées

à ce jour ont permis de mettre en évidence les avantages et les limites du concept de bioréacteur anaérobie (Tableau IV). Une amélioration significative de la dégradation des déchets est observée par de nombreux auteurs en mode bioréacteur (Reinhart et Al-Yousfi, 1996 ; François *et al.*, 2007). Le taux de conversion en méthane est également supérieur par rapport à ce qui peut être observé dans un centre de stockage dit conventionnel (Pacey, 1997). La forte production de gaz sur un temps relativement court facilite sa valorisation en tant que source d'énergie. Toutefois, la recirculation lors des phases d'hydrolyse et d'acidogenèse peut conduire à un blocage de la phase méthanogène par une production trop importante d'acides organiques (Kinman *et al.*, 1987). Afin d'éviter l'accumulation de composés pouvant inhiber la dégradation tels que les AGV ou l'azote, il est nécessaire d'alterner les phases de recirculation du lixiviat avec des phases de repos (Berthe *et al.*, 2008). Ainsi, les conditions opératoires de recirculation (fréquence, quantité, composition du lixiviat) sont essentielles pour obtenir une biodégradation optimale du déchet (Benbelkacem *et al.*, 2010).

Tableau IV : Avantages et limites du concept bioréacteur (Berthe, 2006).

	<b>Effet de la recirculation</b>	<b>Références</b>
<b>Avantages</b>	Accélération de la dégradation et/ou de la stabilisation des déchets	Suflita <i>et al.</i> , 1992 Reinhart et Al-Yousfi, 1996
	Diminution de la charge organique du lixiviat Diminution de la DCO	Reinhart et Al-Yousfi, 1996 Özkaya <i>et al.</i> , 2004
	Augmentation du volume de biogaz produit Augmentation de la vitesse de production du biogaz	Demir <i>et al.</i> , 2004 Sponza et Agdag, 2005 Fallaha <i>et al.</i> , 2009
	Amélioration de la vitesse de tassement des déchets	Mehta <i>et al.</i> , 2002 Özkaya <i>et al.</i> , 2004
	Réduction des impacts environnementaux	Warith, 2002
	Diminution des gaz à effet de serre	Fallaha <i>et al.</i> , 2009
<b>Limites</b>	Chemins préférentiels	Morris <i>et al.</i> , 2003
	Procédé à adapter selon le climat	Šan et Onay, 2001
	Accumulation de l'azote	Vigeneron <i>et al.</i> , 2007
	Accumulation de composés non biodégradables	Burton et Watson-Craik, 1998
	Réduction de la perméabilité au-delà de 25-30 m	Bouchez <i>et al.</i> , 2005
	Instabilité du massif de déchets	Bouchez <i>et al.</i> , 2005

Les aspects risques, hygiène et sécurité sont de même nature lors d'une gestion bioréacteur que sur un CSDU moderne typique même s'ils sont amplifiés durant la phase d'exploitation et réduits durant le suivi post-exploitation. Ainsi, d'un point de vue économique, les surcoûts liés à la construction des systèmes de recirculation sont amortis par les économies réalisées lors du suivi post-exploitation.

Au niveau de sa conception, le bioréacteur doit présenter la même structure protectrice qu'un centre de stockage classique (barrières d'étanchéité, réseau de collecte et de captage...) mais également un système de stockage et de réinjection des lixiviats (Reinhart *et al.*, 2002). L'accélération de la

biodégradation se caractérisant par une production de biogaz plus grande sur une période plus courte, les infrastructures doivent donc être dimensionnées en considération. En outre, la principale difficulté de conception réside dans le dimensionnement et la mise en place des réseaux de recirculation du lixiviat ; il s'agit d'une étape critique (Mehta *et al.*, 2002). La répartition spatiale et temporelle du lixiviat réinjecté doit se faire de manière uniforme au sein du massif de déchets tout au long de la biodégradation afin d'éviter les zones de saturation ainsi que les zones sèches (Reinhart et Al-Yousfi, 1996 ; Reinhart *et al.*, 2002). Le suivi d'un centre de stockage fonctionnant selon un concept bioréacteur s'effectue de manière similaire à un mode de gestion conventionnel avec toutefois une attention particulière à porter à l'humidité et à la température qui permettent ainsi d'appréhender le fonctionnement de la recirculation sur les vitesses de biodégradation. Cependant, les moyens de mesure fiables pour suivre l'évolution de ces deux paramètres sont limités.

La grande majorité des centres de stockage fonctionnant en mode bioréacteur sur site se situent aux Etats-Unis (Mountain View, Alachua County...) mais également au Royaume-Uni, en Italie, en Australie ou encore en France. Avec plus de 130 sites répertoriés comme pratiquant la recirculation de lixiviats, les Etats Unis sont ainsi considérés comme les précurseurs de la technologie bioréacteur. Ce concept semble petit à petit s'imposer comme une option potentielle pour le traitement des déchets ménagers et assimilés en France. Ce mode de gestion des déchets est désormais reconnu par la réglementation européenne (décision du Conseil n°2003/33/CE) et française (arrêté ministériel du 19 janvier 2006 modifiant l'arrêté du 09/09/1997) comme une pratique permettant d'accroître la cinétique de production de biogaz. Les principaux sites français pratiquant la recirculation du lixiviat sont regroupés dans le Tableau V (Gachet, 2005). Il s'agit de sites ayant fait l'objet de suivis rigoureux au regard de la production de biogaz et de la stabilisation des déchets enfouis.

Tableau V : Caractéristiques des sites français en mode bioréacteur.

Site	Dimensions	Type de déchets	Références
<b>Montech</b> (depuis 1994)	3 cellules 120 000 - 150 000 m <sup>3</sup> profondeur : 20 m	60 % OM 40 % DIB	Aguilar-Juarez, 2000
<b>Vert le grand</b> (depuis 2000)	2 cellules 10 000 et 25 000 m <sup>3</sup> profondeur : 40 - 45 m densité : 0,8 - 1 t/m <sup>3</sup>	35 % OM 65 % assimilés	Aran, 2001
<b>SYDOM du Jura</b> (depuis 2000)	11 500 m <sup>3</sup> profondeur : 10 m	51,2 % OM fines 2,1 % fines recyclage 4,3 % refus de tri 42 % tout venant	Gachet, 2005
<b>La Vergne</b> (depuis 2003)	3 cellules 120 000 - 150 000 m <sup>3</sup> profondeur : 6 - 13 m	34 % DIB 24 % OM 22 % refus compostage 15 % encombrants 5 % déchets verts	Guérin <i>et al.</i> , 2004

Les paramètres opérationnels relevés sur l'ensemble des sites français varient considérablement d'une installation à l'autre du fait de la nature du déchet enfoui et des dimensions du site. Le débit de recirculation varie ainsi de 1 à plus de 20 m<sup>3</sup>/jour maximum. Dans le cas du SYDOM du Jura, le taux de recirculation appliqué était de 0,11 L/tMS/jour (Gachet, 2005).

*Malgré les nombreux avantages liés au stockage des déchets ménagers en concept bioréacteur, les limites du procédé ainsi que les difficultés d'exploitation sur site associés à l'accumulation de composés polluants non biodégradables amènent quelques interrogations sur ce procédé (Delvigne et al., 2010). De plus, le recul quand aux performances de ce type de fonctionnement est encore insuffisant même si les nombreuses études en pilotes et en laboratoire ont montré les limites et les inconvénients du bioréacteur anaérobie avec recirculation du lixiviat. D'autres modes de gestion permettant d'optimiser la dégradation des déchets sont envisagés.*

### III.5. Nouvelles voies de gestion des déchets : Prétraitements avant enfouissement

Depuis l'introduction de la notion de déchet ultime dans la réglementation européenne et avec l'augmentation constante de la quantité de déchets à enfouir, des technologies alternatives de traitement des déchets se sont développées. En effet, la directive européenne 99/31/CE fixe des objectifs de réduction à la source des déchets, de réduction de la quantité de déchets enfouis et de réduction de la charge organique des déchets enfouis. Cette réduction consiste en une élimination préalable de la fraction biodégradable des déchets pour ne conserver que la part difficilement biodégradable désignée comme étant un déchet ultime non valorisable et pouvant alors être stockée. Outre cette démarche de réduction du volume de déchets à enfouir, des enjeux environnementaux et économiques imposent de rechercher de nouveaux moyens permettant d'accélérer la biodégradation des déchets afin d'atteindre au plus vite un état stabilisé où les flux de polluants émis sont faibles et n'engendrent pas un danger pour l'environnement (Warith, 2002).

Ainsi, des techniques de préparation du déchet ou de prétraitement avant enfouissement sont mises en place. Les objectifs de ces deux méthodes sont totalement différents en restant toutefois complémentaires. Le prétraitement vise à réduire la part de fraction organique enfouie limitant ainsi les flux polluants (biogaz et lixiviat) alors que la préparation des déchets vise à accélérer la cinétique de stabilisation du déchet réduisant ainsi la durée de vie du site. Néanmoins, l'effet d'un prétraitement peut également se faire au niveau de la biodégradation des déchets tout comme une méthode de préparation peut modifier le volume de déchets à enfouir. La réglementation actuelle n'imposant pas de préparation des déchets avant enfouissement, la valeur ajoutée que cette technique est susceptible de créer réside dans ce double effet.

Dans le cadre de cette étude, les termes de préparation avant enfouissement et de prétraitement du déchet seront confondus sous la dénomination : modalité de prétraitement des déchets avant enfouissement. La Figure 12 synthétise les différents effets attendus d'une modalité de prétraitement.

Cette problématique de réduction du volume de déchets à enfouir est d'autant plus importante que les installations actuelles de traitement des déchets sont proches de la saturation (ADEME, 2009). L'intérêt économique de l'amélioration des conditions de dégradation des déchets en situation d'enfouissement est également un facteur important à prendre en considération. En effet, le biogaz constitue une énergie renouvelable pouvant être facilement valorisée en énergie thermique ou électrique. L'amélioration des cinétiques de stabilisation des déchets a pour principale conséquence une réduction des durées post-exploitation des centres de stockage. Cette démarche s'intègre parfaitement dans un concept de développement durable.

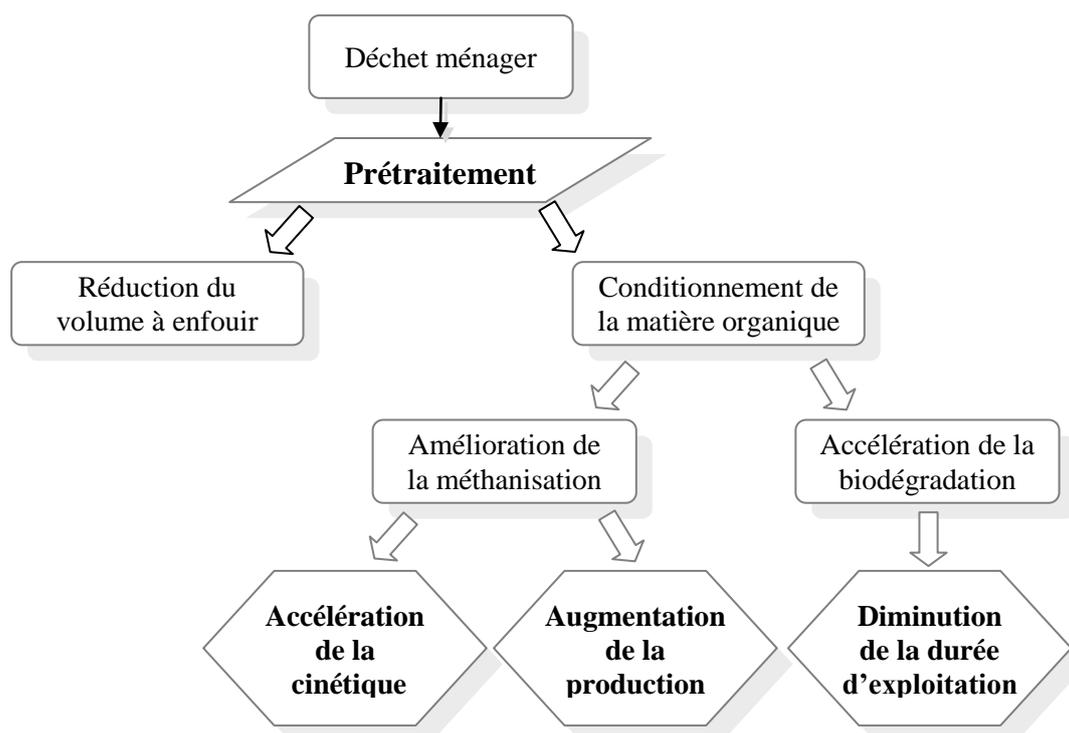


Figure 12 : Objectifs d'une modalité de prétraitement des déchets.

La définition d'une modalité de prétraitement s'appuie sur la composition du déchet et sur les paramètres influant et limitant le processus de biodégradation (Partie I - II.3). En effet, le déchet ménager ayant une structure dynamique, il subit de nombreuses réactions physiques, chimiques et biologiques fortement dépendantes des conditions du milieu dans lequel il se trouve. De part sa composition, notamment riche en matière organique, divers procédés peuvent être appliqués avant enfouissement. L'action des prétraitements est généralement axée sur la fraction fermentescible des déchets car il s'agit de la fraction la plus évolutive au sein d'un massif de déchets puisqu'elle est facilement biodégradable et assimilable par les microorganismes. En outre, la décomposition des déchets au sein d'un centre de stockage est principalement influencée par l'humidité, la teneur en oxygène et l'accumulation de produits inhibiteurs. De nombreuses études ont désigné la phase d'hydrolyse des composés organiques comme étant une étape limitante sur l'ensemble du processus de biodégradation (Buivid *et al.*, 1981 ; Aguilar-Juarez, 2000 ; Palmowski et Müller, 2000). L'action menée sur cette phase d'hydrolyse permet d'entrer plus rapidement en phase de méthanogenèse et ainsi augmenter la cinétique de production de biogaz.

La plupart de ces techniques sont souvent combinées au sein d'un même procédé afin de multiplier les effets désirés (Komilis *et al.*, 1999b). Les principaux prétraitements étudiés et relatés dans la littérature sont présentés dans le Tableau VI. Les principaux leviers d'action utilisés pour améliorer la dégradation biologique des déchets sont généralement liés à l'humidité, au broyage et compactage des déchets, à l'ajustement du pH, à l'aération ou encore à l'ajout d'éléments nutritifs ou d'inoculum (Reinhart *et al.*, 2002). Le nombre important d'études récentes mentionnées dans la littérature montre l'intérêt des auteurs pour ce sujet.

Le prétraitement appliqué peut être de nature mécanique, physique, thermique, chimique ou encore biologique. Malgré des objectifs similaires, l'impact des modalités de prétraitement reste différent et dépend des conditions bio-physico-chimiques. En effet, les modalités de prétraitement sont définies selon les phases de dégradation sur lesquelles elles agissent et donc selon les mécanismes réactionnels au sein desquels elles interfèrent. L'évaluation de cet impact repose principalement sur des données caractérisant les émissions de polluant (biogaz et lixiviat).

Tableau VI : Screening des principales modalités de prétraitement des déchets.

Prétraitement	Objectifs et Avantages	Inconvénients	Références
Séparation des différentes fractions	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Valorisation de certaines fractions</li> <li>- Evite les blocages liés à des matières nuisibles</li> <li>- Réduction de volume</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Difficultés techniques</li> </ul>	ADEME, 1993
Broyage	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Augmentation surface de contact</li> <li>- Meilleure circulation de l'eau</li> <li>- Réduction de volume</li> <li>- Accélération de la biodégradation</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Hydrolyse initiale excessive</li> <li>- Inhibition par les AGV</li> </ul>	Sponza et Agdag ,2005 Luo <i>et al.</i> , 2009
Compactage	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Meilleure distribution des nutriments</li> <li>- Meilleur contact entre substrat et microorganismes</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Ralentissement de la production de biogaz</li> <li>- Plus efficace sur déchet sec</li> </ul>	Yuen <i>et al.</i> , 1995 Palmowski et Muller, 1999
Traitement thermique	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Déstructuration des fibres</li> <li>- Accélération de la vitesse d'hydrolyse des déchets</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Surcoûts élevés</li> <li>- Mise en œuvre complexe</li> </ul>	Boulangier al., 2009b
Injection d'air	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Accélération de la stabilisation</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Surcoûts élevés</li> </ul>	O'Keefe et Chynoweth, 2000 Read <i>et al.</i> , 2001 Heyer <i>et al.</i> , 2005
Recirculation des lixiviats	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Inoculation</li> <li>- Maintien d'une humidité optimale</li> <li>- Accélération de la dégradation</li> <li>- Augmentation de la production de biogaz</li> <li>- Réduction du lessivage de la MO du déchet</li> <li>- Réduction du temps de stabilisation</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Conditions de fonctionnement difficiles</li> <li>- Inhibition par les AGV</li> <li>- Accumulation de composés non biodégradables</li> </ul>	Warith, 2002 Sponza et Agdag, 2005 Leloup, 2010
Macération acide	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Accélération de la vitesse d'hydrolyse des déchets</li> <li>- Augmentation de la quantité de méthane</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Risque d'acidification forte si la durée de la macération est trop élevée</li> </ul>	Boulangier <i>et al.</i> , 2009b
Incineration de la fraction légère Ajout de cendres	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Réduction de volume</li> <li>- Faibles émissions de biogaz et de lixiviat</li> <li>- Diminution du lessivage des métaux</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Faible production de biogaz</li> <li>- Biogaz peu valorisable</li> </ul>	Lo et Liao, 2007

<b>Prétraitement</b>	<b>Objectifs et Avantages</b>	<b>Inconvénients</b>	<b>Références</b>
Ajout de mâchefers	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Capacité tampon</li> <li>- Rapide production de biogaz</li> <li>- Support au développement des microorganismes</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Fortes variabilité avec la nature du mâchefer</li> <li>- Effet toxique (métaux)</li> </ul>	Banks et Lo, 2003 Boni <i>et al.</i> , 2007 Lo et al. 2010
Ajout d'acides ou de bases fortes	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Accélération du processus d'hydrolyse</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Inhibition de la croissance microbienne</li> </ul>	Bhattacharyya <i>et al.</i> , 2008
Ajout d'une solution tampon ou nutritive	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Ajustement du taux d'humidité</li> <li>- Régulation du pouvoir tampon</li> <li>- Apport des nutriments essentiels</li> <li>- Empêche l'accumulation des AGV</li> <li>- Favorise la méthanogenèse</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Faisabilité industrielle</li> </ul>	Sponza et Agdag, 2005
Ajout de boues de STEP	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Inoculation</li> <li>- Augmentation de l'humidité</li> <li>- Apport de nutriments</li> <li>- Réduction de la DCO et des AGV</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Effet dépendant de la nature de la boue</li> </ul>	Agdag et Sponza, 2007 Sosnowski <i>et al.</i> , 2003
Inoculation avec des microorganismes complexes	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Dégradation des composés cellulotiques</li> <li>- Amélioration de la méthanogenèse</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Sélectivité des microorganismes difficile</li> </ul>	Wei <i>et al.</i> , 2007
Inoculation avec des bouses de vaches	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Amélioration de la biodégradation</li> <li>- Augmentation de la production de méthane</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Accumulation d'AGV</li> </ul>	Paavola <i>et al.</i> , 2006 Forster-Carneiro <i>et al.</i> , 2007
Inoculation avec une flore ruminale (bovine ou caprine)	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Apport de microorganismes</li> <li>- Augmentation de la production de biogaz</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Adaptabilité des microorganismes</li> </ul>	Lopes <i>et al.</i> , 2004 Yue <i>et al.</i> , 2007
Préparation aérobie	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Diminution de la charge organique facilement hydrolysable</li> <li>- Augmentation de la température</li> <li>- Augmentation de la stabilisation</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Accumulation d'AGV</li> <li>- Réduction de la production de biogaz</li> <li>- Effet lié à la durée de prétraitement</li> </ul>	Barlaz <i>et al.</i> , 1990 Aguilar-Juarez, 2000 Babyranidevi et Bhoyar, 2003
Prédigestion anaérobie	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Forte production de biogaz</li> <li>- Accélération de la stabilisation</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Accumulation d'AGV</li> </ul>	Forster-Carneiro <i>et al.</i> , 2007

Dès la conception du centre de stockage et plus particulièrement de son mode opératoire de fonctionnement, les conditions d'exploitation sont fixées. En effet, l'exploitation des casiers en couche mince, la mise en place d'une couverture semi perméable ou la gestion selon un concept bioréacteur influent sur la dégradation des déchets et notamment sur la production de biogaz.

L'humidité étant un paramètre essentiel à toute activité biologique, l'humidification la matière au moment de l'enfouissement ou l'injection de liquide au cours de l'exploitation du casier peuvent représenter un levier d'action intéressant pour accélérer la stabilisation des déchets. L'ajustement de la teneur en humidité peut s'effectuer avec de l'eau, une solution nutritive, une solution tampon ou encore du lixiviat. La recirculation du lixiviat est l'option généralement privilégiée car elle véhicule également des microorganismes essentiels à la dégradation des déchets (Bilgili *et al.*, 2007).

Cet apport de microorganismes peut également s'effectuer par le biais de différentes sources d'inoculation contenant des flores méthanogènes adaptées à la dégradation des déchets en conditions anaérobies.

Plusieurs types d'inoculum ont été testés par de nombreux auteurs : des boues de station d'épuration (Sosnowski *et al.*, 2003), des bouses de vaches (Forster-Carneiro *et al.*, 2007), une flore ruminale (Yue *et al.*, 2007) ou encore des microorganismes spécifiques (Wei *et al.*, 2007). Le ratio inoculum / substrat conditionne l'obtention d'une biodégradabilité optimale (Sánchez *et al.*, 2001). De manière générale, l'inoculation avec ce type de matrice améliore la biodégradation des déchets en influant sur l'étape de méthanogenèse. Le temps de stabilisation des déchets et donc la durée de post exploitation du centre de stockage sont réduits. En outre, ces expériences de co-enfouissement permettent de réutiliser des sous-produits généralement non valorisables. Le concept de développement durable est ainsi bien représenté.

Les premières phases de dégradation et notamment d'hydrolyse aérobie de la matière organique sont cruciales à la mise en place des processus de biodégradation (Aguilar-Juarez, 2000). Une injection d'air au sein du massif de déchet a été étudiée par plusieurs auteurs afin de rendre optimale cette étape d'hydrolyse, libérant ainsi la quasi-totalité des polymères organiques (Read *et al.*, 2001). Cette aération peut également s'effectuer de façon cyclique et combinée à une recirculation du lixiviat tout au long de l'exploitation du casier afin d'alterner hydrolyse et méthanogenèse (O'Keefe et Chynoweth, 2000). Cette alternative permet de se soustraire à un blocage éventuel de la biodégradation et ainsi dégrader au maximum la matière organique emprisonnée au sein du massif de déchets (Heyer *et al.*, 2005). Toutefois, l'insufflation d'air dans un centre de stockage est peu employée du fait du surcoût généré par la mise en place et le fonctionnement d'un tel procédé.

La généralisation du tri et de la valorisation matière, c'est-à-dire du type de déchets enfouis, induit également un comportement différent des centres de stockage (modification de la composition des lixiviats et du biogaz). Outre l'aspect de valorisation, la séparation de certaines fractions (extraction des matières nuisibles) permet d'éviter une inhibition des processus biologiques par des éléments toxiques. Cet aspect valorisation prend également en considération le traitement thermique des déchets et notamment leur incinération. Depuis quelques années, le traitement thermique est en nette augmentation car il permet de réduire le volume de déchets à enfouir tout en produisant une énergie valorisable. Après stabilisation, le résidu obtenu, cendres ou mâchefers, est alors valorisé ou stocké de façon permanente. L'incinération engendrant la destruction de la quasi-totalité des composés organiques contenus dans le déchet, le résidu obtenu est peu biodégradable ; les émissions liées au stockage de ce résidu seul sont donc minimales.

Le prétraitement des déchets peut également avoir lieu avant enfouissement par le biais notamment d'une action mécanique ou physique sur les déchets dans le but d'augmenter leur biodisponibilité pour les microorganismes agissant lors des différentes étapes de dégradation.

L'enfouissement de déchets traités thermiquement (chauffage, autoclavage...) engendre de faibles émissions de lixiviat et de biogaz. La cinétique de production de biogaz est plus importante que pour un déchet non prétraité mais la quantité cumulée reste plus faible (Boulanger *et al.*, 2009b). Ce

biogaz n'est pas suffisamment valorisable du fait de la quantité importante d'hydrogène qu'il contient. Le lixiviat est peu chargé en polluants (DCO cumulée de l'ordre de 500 mg/kg de MS) avec cependant une teneur en chlorures et sulfates plus élevée que pour un centre de stockage conventionnel.

Le broyage et le compactage permettent d'accroître l'uniformité du déchet et donc sa surface spécifique favorisant ainsi le contact du substrat avec les microorganismes responsables de sa dégradation notamment lors de la phase d'hydrolyse (Luo *et al.*, 2009). La diminution des interstices au sein du massif de déchets limite également la présence de zones d'inactivité dont le déblocage à long terme engendrerait une reprise non désirée de l'activité microbienne (Palmowski et Muller, 1999). Cette étape de traitement mécanique par broyage est très souvent couplée à un traitement de type biologique. Ces traitements sont développés dans le but d'hydrolyser et de dégrader la matière organique rapidement biodégradable. La diminution de cette charge organique facilement hydrolysable permet d'avoir une étape de méthanogenèse plus rapide. Selon la composition du déchet et le temps de traitement, ce procédé peut se faire en milieu aérobie ou anaérobie (Komilis *et al.*, 1999a). Dans les deux cas, la cinétique de production de biogaz est plus importante et la stabilisation du massif de déchets est plus rapide (Lornage *et al.*, 2007 ; Berthe *et al.*, 2008). La mise en place de ce type de traitement peut s'effectuer sur la totalité des déchets à enfouir ou seulement sur une fraction d'entre eux ; la fraction fermentescible étant la plus souvent biologiquement prétraitée.

### III.5.1. Co-enfouissement des déchets avec des mâchefers

Les mâchefers d'incinération des ordures ménagères (MIOM) sont les scories ou résidus solides récupérés après incinération des déchets ménagers et des déchets industriels banals. Ils se présentent sous la forme de granules poreuses de couleur grise. Les mâchefers ont un caractère complexe et évolutif en relation directe avec leurs conditions d'obtention (Arm, 2004). En effet, leur composition dépend du type de déchets incinérés et de la qualité de l'incinération (type de four, température, temps de séjour...). La composition chimique élémentaire d'un mâchefer est très proche de celle de certaines roches volcaniques ou de certaines pouzzolanes. Constituée de la partie lourde et incombustible des déchets, il s'agit d'une matrice essentiellement minérale composée de silicates, de carbonates, de sulfates et d'oxydes métalliques (Forteza *et al.*, 2004). Les caractéristiques minéralogiques des mâchefers jouent un rôle important dans leur comportement à la lixiviation notamment d'un point de vue environnemental avec la solubilisation de certains éléments métalliques (Cu, Zn, Pb, Ni, Cr...). Le Tableau VII recense les données de la littérature relatives à la teneur en éléments métalliques dans les mâchefers.

Tableau VII : Teneur en éléments métalliques dans les mâchefers (mg/kg).

Métaux	As	Cd	Cr	Cu	Ni	Pb	Zn
Van Gerven <i>et al.</i> , 2007	< 0,01	< 0,01	0,19	13,4	0,15	0,77	2,6
Arickx <i>et al.</i> , 2007	< 0,1	7 - 27	84-145	3681-3839	173-236	2013-3218	3482-6847

Une forte disparité dans les différentes valeurs obtenues par les différents auteurs est observable et peut être imputée à l'origine du mâchefer mais également au procédé d'analyse employé pour quantifier la teneur en métal.

Selon leur caractère polluant, les mâchefers se distinguent en 3 catégories :

- catégorie V : mâchefers valorisables,
- catégorie M : mâchefers devant subir une étape de maturation afin de pouvoir être valorisés mais pouvant également être stockés en CSDU de classe II

- catégorie S : résidus ne correspondant pas aux qualités environnementales requises pour une valorisation (relargage de métaux lourds par exemple) et devant être stockés en CSDU de classe II.

Cette classification s'effectue après une procédure de lixiviation normée (NF/X31-210) au cours de laquelle les différents polluants présents dans le mâchefer sont extraits puis analysés (Circulaire du 9 mai 1994). Seule la catégorie « S » correspondant aux mâchefers stockables peut être enfouie en centre de stockage. Il s'agit de mâchefers à forte fraction lixiviable. L'incinération des ordures ménagères et assimilées en France produit près de 3 millions de tonnes de mâchefers dont 70 % sont valorisés après passages sur des plates formes de traitement et de maturation et moins de 30 % sont stockés en centre de stockage de classe II (ADEME, 2008).

L'impact du stockage des mâchefers en CSDU est fortement étudié dans la littérature au regard du potentiel polluant qu'ils apportent notamment en éléments métalliques (Lo, 2005 ; Feng *et al.*, 2007 ; Lo et Liao, 2007). Cependant, peu d'auteurs se sont intéressés à l'effet de la présence de ces mâchefers sur les mécanismes de dégradation des déchets (Banks et Lo, 2003 ; Boni *et al.*, 2007 ; Lo *et al.*, 2010). De manière générale, l'ajout de mâchefers confère au milieu une alcalinité ayant un effet positif sur les mécanismes anaérobies de dégradation (Lo *et al.*, 2009). Ainsi, dans la mesure où la quantité ajoutée n'est pas trop importante, l'ajout de résidus d'incinération permet d'améliorer l'alcalinité du milieu en influant sur l'activité enzymatique des microorganismes présents (Fang *et al.*, 1998) et permettant de rentrer plus rapidement en phase de méthanogenèse (Boni *et al.*, 2007). Une stabilité mécanique importante est aussi observée (Boni *et al.*, 2007). Les différents effets liés à l'incorporation de mâchefers au sein du massif de déchet sont toutefois dépendant du type de mâchefer ainsi que de la proportion ajoutée par rapport à la quantité de déchets (Boulanger *et al.*, 2009a). Les mécanismes d'action des mâchefers au sein du massif de déchets n'ont pas encore été clairement identifiés par les différents auteurs même si un certain nombre d'hypothèses ont été émises telle que la rugosité de surface des mâchefers pourrait être propice à la mise en place d'un biofilm méthanogène (Boulanger *et al.*, 2009a).

### III.5.2. Modalités d'inoculation

L'ensemble des différentes étapes de la dégradation des déchets est conditionnées par l'action d'un écosystème microbien complexe présent à tous les stades de la transformation de la matière. Cette flore microbienne est donc l'un des leviers d'action afin d'accélérer ces mécanismes réactionnels de dégradation. L'étape qu'il est essentiel d'optimiser est la méthanogenèse du fait de l'important potentiel de valorisation du biogaz produit. En outre, cette phase précédant la maturation des substances organiques, son optimisation induit une stabilisation plus rapide de la matière. Un apport de microorganismes de type méthanogène est donc réalisé sous forme d'un co-enfouissement avec une matrice organique contenant une source d'inoculation. Différents inoculum sont mentionnés dans la littérature (Forster-Carneiro *et al.*, 2007), les plus courants étant les boues de STEP et les déjections animales (vaches, porcs, volailles...). Le rejet de ces matières étant très réglementé, l'enfouissement en centre de stockage reste souvent la solution de traitement ultime.

L'origine de l'inoculum, c'est-à-dire sa composition mais surtout le ratio inoculum / substrat, sont des paramètres clés dans le cadre d'un co-enfouissement (Sánchez-Monedero *et al.*, 2001 ; Lopes *et al.*, 2004). Lors de la fermentation acidogène de déchets organiques, ce ratio est d'environ 30 % en poids (Sans *et al.*, 1995). Dans le cas spécifique de la dégradation anaérobie des déchets où l'inoculation est réalisée avec une population méthanogène active, ce ratio peut être significativement réduit (Obaja *et al.*, 2003). L'inoculation avec une flore microbienne adaptée permet ainsi d'accélérer la stabilisation des déchets enfouis tout en augmentant la production de méthane.

### III.5.3. Prétraitement mécanique et biologique

Dans le contexte actuel de gestion intégrée des déchets, le prétraitement mécanique et biologique des déchets avant enfouissement s'avère être une alternative intéressante. Ce prétraitement est né du constat que les principaux désagréments techniques et écologiques de l'enfouissement des déchets provenaient de la présence de matière organique biodégradable. En outre, l'application de la directive européenne 1999/31/CE relative à l'enfouissement des déchets induit le développement de procédés permettant de réduire la quantité de déchets biodégradables à enfouir tels que des prétraitements mécaniques et biologiques. Initié en Allemagne et en Autriche, le concept connaît un récent succès en France depuis quelques années car il s'intègre parfaitement dans une logique de développement durable prônant la réduction de la durée et de l'intensité des impacts liés au stockage des déchets ménagers et assimilés.

Les objectifs du prétraitement mécanique et biologique sont d'une part la valorisation des fractions de déchets potentiellement recyclables (verre, plastique, métaux...) et d'autre part la réduction de la quantité de matière organique biodégradable enfouie tout en influant sur la stabilisation biologique des déchets après enfouissement (Münnich *et al.*, 2006). Ce type de prétraitement a pour objectif d'accélérer la dégradation et la stabilisation des déchets dans le but de réduire la durée du suivi de post-exploitation. Ces opérations de prétraitement visent également à réduire les quantités (volume) de déchets à enfouir, limiter les émissions de polluants, pendant et après la période d'exploitation et s'affranchir des phénomènes de tassements dans les casiers suite à la dégradation biologique des déchets. Réunis sous l'appellation PTMB, les Pré-Traitements Mécaniques et Biologiques correspondent à l'association d'opérations mécaniques et biologiques. Les technologies PTMB peuvent s'appliquer aux déchets ménagers non triés ou aux ordures ménagères résiduelles (Figure 13).

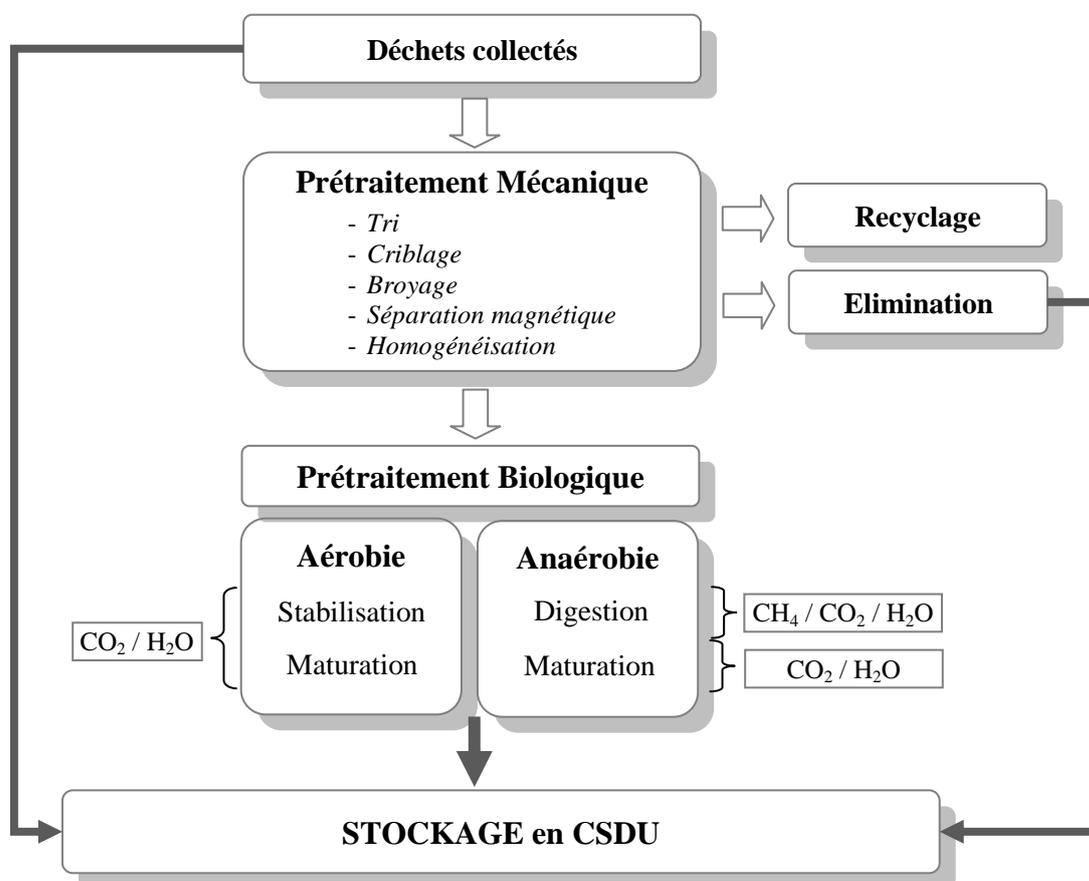


Figure 13 : Conception générale d'un prétraitement mécanique et biologique.

Les différentes options techniques des prétraitements mécaniques (tri, broyage...) et biologiques (aérobies et anaérobies) dépendent du type de déchets et des objectifs attendus par un tel procédé. La mise en place d'un PTMB peut également s'effectuer avant incinération afin de réduire la part de déchets à incinérer ; les résidus d'incinération pourront tout de même être stockés en CSDU. Il n'existe donc pas de conception type du prétraitement mécanique et biologique des déchets. Ce processus présente une grande flexibilité d'application.

### III.5.3.1 Traitement mécanique

Un prétraitement mécanique est indispensable en amont de tout procédé biologique afin de préparer la matrice à être biodégradée. L'objectif principal du prétraitement mécanique est de séparer et trier les matières recyclables et les encombrants qui ne sont pas susceptibles d'être dégradés biologiquement des déchets biodégradables avant de les envoyer en phase de stabilisation biologique. Le choix du type d'opération mécanique est lié aux conditions technico-économiques du site ainsi qu'au type de traitement en aval. Le Tableau VIII liste les principales opérations de prétraitement mécanique existantes ainsi que leurs objectifs.

Tableau VIII : Objectifs des principales opérations de prétraitement mécanique des déchets.

Procédés	Objectifs
Tri manuel	Séparation des éléments valorisables
Criblage mécanique	Séparation granulométrique
Tri par densité	Récupération des papiers et plastiques
Tri électrostatique	
Tri magnétique	Récupération des éléments métalliques ferreux
Séparation des métaux non ferreux	Récupération de l'aluminium
Broyage	Meilleure homogénéisation
Homogénéisation	Optimisation le traitement biologique
Compactage	Réduction de volume

Plus le déchet initial est complexe et plus il sera difficile et coûteux de séparer les éléments recyclables des éléments indésirables. L'efficacité des opérations mécaniques a des conséquences sur le prétraitement biologique et donc sur le comportement du déchet lors du stockage. Le blocage ou l'inhibition de la dégradation biologique est évité grâce à l'extraction de matériaux nocifs lors des phases de tri. La qualité du traitement mécanique influe donc sur la qualité des fractions valorisables et sur les processus biologiques qui se déroulent en aval. Un traitement mécanique intense est nécessaire pour rendre la matière organique disponible pour la stabilisation biologique (Münnich *et al.*, 2006). Cette étape permet également une réduction de volume de la quantité de déchets à enfouir du fait de la valorisation ou de l'incinération de certaines fractions. En outre, Les déchets sont généralement broyés de manière à avoir une meilleure homogénéisation favorisant ainsi les transferts de chaleur, de masse et de liquide (Sponza et Agdag, 2005).

### III.5.3.2 Traitement biologique

L'action du traitement biologique s'effectue au niveau de la matière organique contenue dans le déchet. Malgré la grande hétérogénéité de la matrice déchet, la fraction organique reste majoritaire

et constitue l'un des plus importants vecteurs de pollution en raison de son caractère évolutif. Ainsi, le traitement biologique consiste à minéraliser la matière organique contenue dans les déchets en éléments simples tels que le dioxyde de carbone (CO<sub>2</sub>), le méthane (CH<sub>4</sub>) ou l'eau et à la transformer en composés organiques plus difficilement biodégradables. La charge organique contenue dans les déchets est alors réduite créant une stabilisation biologique. Les mécanismes d'action de la stabilisation biologique avant enfouissement sont similaires à ceux du compostage ou de la méthanisation des déchets. L'objectif visé reste toutefois totalement différent puisqu'il ne réside pas dans la production d'un compost stable biologiquement et valorisable en agriculture. Cependant, les procédés mécaniques et biologiques de prétraitement des déchets sont largement inspirés des procédés de compostage et de méthanisation existants.

Différents procédés peuvent être utilisés lors de la stabilisation biologique, soit en aérobie, soit en anaérobie, soit une combinaison des deux (Komilis *et al.*, 1999b). Les procédés aérobies ont été davantage étudiés que les procédés anaérobies ; ils représentent d'ailleurs une part importante des procédés industriels aujourd'hui en fonctionnement. Dans le cadre de ce travail, une attention particulière sera portée aux prétraitements de type aérobie. Le choix du traitement mis en œuvre dépend des caractéristiques du déchet et des objectifs post traitement (valorisation agronomique, incinération, stockage).

Le prétraitement aérobie des déchets avant enfouissement a beaucoup changé ces dernières années du fait de l'évolution des différentes réglementations. Des procédés de haute technologie sont venus remplacer les techniques les plus simples afin de répondre aux exigences élevées vis-à-vis des émissions de gaz et de la qualité et de l'homogénéité du produit sortant. Il est possible de distinguer 3 types de procédés aérobies possédant différents systèmes d'aération (Bari et Koenig, 2001) :

- procédés statiques : andain ou conteneur sans retournement,
- procédés semi-dynamiques : andain, conteneur ou hall avec retournement automatique,
- procédés dynamiques : tunnel rotatif fermé ou en phase liquide.

Quelque soit le type de procédé employé, la stabilisation biologique aérobie comporte deux étapes distinctes : une étape de traitement intensif suivie d'une étape dite de finition. L'étape de traitement intensif est caractérisée par une forte aération pendant 2 à 6 semaines et/ou un retournement régulier (environ 1 fois par semaine). L'étape de finition également appelée phase de maturation sert à stabiliser le résidu organique obtenu ; le taux de dégradation est faible. La fréquence d'aération et de retournements est moindre voire inexistante.

Les procédés anaérobies de prétraitement des déchets sont moins couramment utilisés du fait notamment des contraintes opérationnelles qu'ils imposent. En effet, la principale difficulté de la digestion anaérobie réside dans la mise en place de conditions d'anaérobiose stricte. La digestion anaérobie est généralement réservée au traitement des biodéchets issus d'activités collectives ou d'activités industrielles du secteur agroalimentaire. Les différents procédés existant peuvent s'effectuer par voie humide ou par voie sèche, en conditions psychrophiles (15-20°C), mésophiles (25-45°C) ou thermophiles (45-65°C), sur l'intégralité ou une partie du flux de déchet. Bien que le traitement anaérobie engendre une réduction de 50-55 % de la fraction organique, la mise en place d'un traitement final aérobie s'avère nécessaire notamment afin de satisfaire les valeurs limites imposées par la réglementation (Münlich *et al.*, 2006). Ainsi, les procédés anaérobies se déroulent en deux temps : une première phase de digestion anaérobie de 1 à 3 semaines et une deuxième phase aérobie de 3 à 6 semaines (Fricke *et al.*, 2005). L'avantage du procédé anaérobie par rapport aux techniques aérobies réside dans la production de biogaz et donc d'énergie réutilisable dans le fonctionnement de l'unité de traitement.

Pour l'ensemble des deux procédés, l'efficacité du prétraitement dépend étroitement des conditions opératoires de fonctionnement (pH, oxygène, humidité, température...). Elles doivent être suffisantes pour subvenir aux besoins des différentes populations microbiennes intervenant dans la dégradation. Les nombreuses études relatives aux prétraitements mécaniques et biologiques ont permis de cibler les conditions opératoires ayant une influence sur l'efficacité du prétraitement. La température et l'humidité ont été identifiées comme étant essentielles, interdépendantes et difficilement dissociables (Smårs *et al.*, 2002 ; Liang *et al.*, 2003). Les valeurs optimales de ces paramètres sont fonction de la nature du substrat et des conditions particulières de mise en œuvre du procédé. La température ne doit pas se situer en dessous de 20°C et au dessus de 81°C au risque d'inhiber l'activité biologique (Liang *et al.*, 2003) ; son optimal est généralement de l'ordre de 45-55°C (Venglovsky *et al.*, 2005). L'humidité est souvent considérée comme étant le paramètre ayant la plus grande influence. Une humidité trop faible (< 20 %) peut inhiber la décomposition de la matière organique tout comme une humidité trop forte (> 70 %) empêche les échanges d'oxygène. La teneur en humidité est généralement ajustée de manière à avoir une teneur comprise entre 40 et 60 % (Gurljala et Suflita, 1993 ; Yuen *et al.*, 1995 ; Gachet, 2005). Dans le cas d'un procédé de prétraitement aérobie, la teneur en oxygène est également un paramètre primordial à surveiller. Une concentration minimale de 18 % en O<sub>2</sub> est nécessaire pour limiter les zones anaérobies et assurer une dégradation aérobie de la matrice (Soyez et Plickert, 2002). Les variations de température sont généralement garantes du bon fonctionnement du système d'aération et conditionnent donc les mécanismes de dégradation. Ces paramètres sont donc corrélés les uns aux autres ainsi qu'au processus de dégradation. Leur optimisation permet d'avoir une vitesse de dégradation et d'humidification suffisante. Toutefois, il reste très difficile de définir avec précision les valeurs optimales pour chaque paramètre du fait notamment des variations de composition du déchet.

### III.5.3.3 Impacts du prétraitement mécanique et biologique

Compte tenu de leur flexibilité et de leur simplicité de mise en œuvre, les études relatives aux prétraitements mécaniques et biologiques sont nombreuses et souvent réalisées à grande échelle voire sur site (Komilis *et al.*, 1999b ; Lornage *et al.*, 2007 ; Berthe *et al.*, 2008 ; Barrena *et al.*, 2009 ; Bayard *et al.*, 2010). De manière générale, les opérations mécaniques (tri, broyage, compactage) permettent de séparer les éléments recyclables (Bezama *et al.*, 2007), d'homogénéiser et de réduire la taille des particules pour favoriser le contact entre substrat et micro-organismes alors que les opérations biologiques (compostage avec ou sans période de maturation ou méthanisation) permettent de dégrader par voie biologique la matière organique biodégradable.

La durée du prétraitement biologique constitue l'un des paramètres clé de son efficacité. En effet, plus la durée du prétraitement est longue et plus l'état de dégradation du déchet à enfouir semble avancé. Des résultats contradictoires ont toutefois montré qu'à plus long terme (plusieurs mois de stockage en casiers expérimentaux), la durée du prétraitement n'a pas d'effet sur la stabilisation du massif de déchets (Berthe *et al.*, 2008 ; Leloup, 2010). En outre, un arrêt prématuré du prétraitement lors de sa stabilisation biologique peut avoir des conséquences contre-productives sur la dégradation en condition de stockage et notamment engendrer un allongement de la phase active (Lornage *et al.*, 2007). Ainsi, quatre à six semaines d'un traitement aérobie intensif avec une bonne aération, un contrôle de la teneur en eau, de la température et de la teneur en oxygène pourrait permettre de dégrader près de 80 % de la matière organique du déchet (Fricke *et al.*, 2005). La durée totale du prétraitement atteint généralement 10 à 12 semaines étant donné que les dernières semaines servent à stabiliser le système ; la majeure partie de la dégradation a effectivement lieu durant les premières semaines de traitement. Cependant, certains auteurs estiment quant à eux que l'essentiel de la dégradation en phase aérobie se produit au cours de la phase thermophile ; quand la température de l'andain atteint 55°C et lorsque le taux de réduction des solides volatils est le plus grand (Norbu *et al.*, 2005). Contrairement à ce qui se passe dans un centre de stockage, la dégradation aérobie d'un

prétraitement est plus homogène, il n'y a pas ou peu de zones mortes permettant ainsi une dégradation plus rapide (au cours des premières semaines).

De nombreuses études ont également montré un effet du prétraitement mécanique et biologique sur le comportement des déchets en conditions d'enfouissement au niveau de la production de biogaz (Bockreis et Steinberg, 2005 ; Gioannis *et al.*, 2009) et de la composition du lixiviat (Soyez et Plickert, 2002 ; Cossu *et al.*, 2003) en termes de quantité et de durée de production (Bockreis et Steinberg, 2005). Le lixiviat est moins chargé notamment en matière organique (Berthe *et al.*, 2008) et la production de biogaz est plus rapide mais moins importante (Lornage *et al.*, 2007).

*Relativement simples à mettre en place, les prétraitements mécaniques et biologiques constituent une option en plein développement afin de répondre aux différentes exigences techniques, économiques mais également réglementaires liées à la gestion des déchets. L'efficacité du prétraitement dépend des procédés mis en œuvre au niveau de l'étape de préparation du déchet lors des opérations mécaniques et au niveau de l'étape de traitement biologique. Le prétraitement mécanique des déchets contribue au recyclage matière par extraction de matériaux valorisables, à la réduction des tonnages à traiter ainsi qu'à l'homogénéisation des déchets. Le prétraitement biologique quant à lui a pour principal objectif de réduire et stabiliser la matière organique contenue dans le déchet avant stockage afin de limiter l'impact environnemental de l'enfouissement. La mise en place d'un prétraitement mécanique et biologique représente donc l'un des moyens facilement réalisable permettant de stabiliser biologiquement le déchet en amont du centre de stockage afin de mieux pouvoir en contrôler l'évolution.*

*Les modalités de prétraitement des déchets sont mises en place de manière à stabiliser plus rapidement les déchets tout en concentrant la production de biogaz, favorisant ainsi sa valorisation énergétique. Le choix d'une modalité ou d'une combinaison de procédés de prétraitement est réalisé selon différents critères complémentaires. L'aptitude à accélérer la stabilisation des déchets est un paramètre indispensable sachant que l'aspect économique et la simplicité de mise en œuvre à l'échelle d'un CSDU ne doivent pas être négligés. Les voies possibles de réduction de la fraction organique entrante en centre de stockage est le prétraitement mécanique et biologique, le compostage ou la méthanisation.*

## **IV. Comportement des déchets en conditions d'enfouissement**

*Au sein d'un massif de déchets, des réactions biologiques et chimiques ont lieu simultanément du fait de la constante évolution de la masse de déchets. Lors des différentes phases de dégradation et de transformation de la matière organique solide, du biogaz et du lixiviat sont générés. De nombreux polluants sont véhiculés par le biogaz et le lixiviat. Ces polluants sont à l'origine de dégradations environnementales et de nuisances (bruit, odeurs...) que les réglementations européennes (Directive 1999/31/CE) et françaises (Arrêté du 9 Septembre 1997) tentent de limiter. En outre, la composition et les flux de biogaz et de lixiviat générés sont affectés par le type de déchet et le mode de fonctionnement du centre de stockage (prétraitement avant enfouissement ou recirculation de lixiviat).*

### **IV.1. Caractéristiques d'un déchet ménager français**

Les déchets ménagers ont une composition variable selon de nombreux facteurs influant tels que la région, le climat, la période de l'année, le mode de vie des habitants ou encore les pratiques de

valorisation des usagers (ADEME, 2010). La connaissance de la composition des ordures ménagères est un élément clef de la politique de gestion des déchets. Elle est indispensable à la mise en place des équipements de traitement adaptés ainsi qu'à une extraction toujours plus poussée de la part valorisable.

#### IV.1.1. Composition du déchet ménager français

Une composition moyenne des déchets ménagers est définie par la campagne de caractérisation MODECOM (MéthODE de Caractérisation des Ordures Ménagères) réalisée par l'ADEME. La première campagne de caractérisation a été mise en place en 1993 ; les résultats détaillés sont présentés en Annexe 1. L'objectif principal de cette campagne de caractérisation est de connaître la composition des ordures ménagères collectées par le service public au niveau national. Pour cette caractérisation, les déchets sont répartis en différentes catégories et sous catégories : putrescibles, papiers-cartons, plastiques, Combustibles Non Classés (CNC), Incombustibles Non Classés (INC), textiles etc... Une deuxième campagne nationale de caractérisation s'est déroulée de septembre 2007 à août 2008. Les résultats ont été rendus publics en 2009 ; ils permettent d'avoir une empreinte de la composition de la poubelle des français en 2007.

Compte tenu des marges d'incertitudes et contrairement à ce que l'on pouvait attendre, la répartition entre les différents matériaux a peu changé depuis la campagne de mesures de 1993 à l'exception des textiles sanitaires, en très forte augmentation. En effet, le déchet ménager contient en 2007 près de 9 % de textiles sanitaires (couches, lingettes, mouchoirs en papier...), soit 34 kilos par habitant par an, une augmentation significative de 6 % depuis 1993.

Les grandes catégories restent en masse humide (MH) :

- les déchets putrescibles (32,2 %MH),
- les papiers-cartons (21,5 %MH),
- le verre (12,7 %MH),
- les plastiques (11,2 %MH),
- les textiles (10,6 %MH, dont les textiles sanitaires),
- les métaux (3 %MH)
- divers matériaux composites ou non classés (8,9 %MH).

La part des emballages (carton, plastique et verre) présents dans le déchet a faiblement diminué, passant de 39 %MH à 32 %MH entre 1993 et 2007. Cette baisse est à mettre en relation avec la hausse de la valorisation par recyclage. En effet, entre 1993 et 2007, la valorisation matière a augmenté de 6,5 à 33,5 %. De même, la quantité de certains composés toxiques dans les déchets a baissé de façon importante comparée aux analyses réalisées en 1993, probablement du fait de la progression des collectes sélectives des déchets dangereux diffus, notamment en déchèterie, ainsi qu'à une meilleure conception de nombreux produits.

Des analyses physico-chimiques sont également réalisées en terme de taux d'humidité, de teneur en carbone, en azote ou encore en métaux pour chaque famille de déchet (Tableau IX).

Le potentiel polluant de ce type de déchet est principalement d'origine organique. La quantité relativement importante de carbone organique retrouvée dans le déchet traduit la forte présence de composés organiques. Cette matière organique est en grande partie apportée par la part importante de composés putrescibles, de papier carton et de plastique ; elle a augmenté de près de 6,6 % entre 1993 et 2007.

Les éléments minéraux et métalliques sont quant à eux générés par le verre, les INC, les plastiques ou encore les métaux. En effet, les métaux sont présents dans la plupart des constituants des déchets sous diverses formes. Le cuivre est issu des papiers et cartons (encre, agrafes, trombone,

verniss,...), des textiles (colorants, fermetures, boutons, ...), des métaux (fils électriques, tuyaux, robinet, ...), des spéciaux (aérosols) et éventuellement des fines (agrafes, trombones, boutons, ...). Le nickel provient des colorants utilisés dans le textile, des piles et les aérosols. Le plomb se retrouve dans les papiers et cartons (encres d'imprimerie), les combustibles non classés (stabilisants dans les caoutchoucs) et les déchets spéciaux (aérosols), les vernis et peintures. Les sources de zinc sont les papiers-cartons (encres), les textiles (fermetures et boutons), les textiles sanitaires (crème de soin pour bébé à base d'oxyde de zinc) ou encore les déchets spéciaux (piles, batteries, aérosols). La réduction en chlore et en éléments métallique est certainement liée à une meilleure pratique du tri à la source.

Tableau IX : Composition chimique des ordures ménagères résiduelles en masse sèche (ADEME, 2009).

Composant	Unité	1993	2007
Taux d'humidité	%	35,0	36,7
Matière Organique totale	%MS	59,2	65,8
Carbone Organique	%MS	33,4	34,9
Azote Kjeldhal (NTK)	%MS	-	1,1
Azote Organique	%MS	0,73	0,71
Azote Ammoniacal	%MS	-	0,014
Chlore	mg/kgMS	14000	2878
Cuivre	mg/kgMS	1048	56
Nickel	mg/kgMS	48	20
Zinc	mg/kgMS	1000	301

Les teneurs en métaux contenus dans les ordures ménagères sont variables selon les auteurs (Tableau X).

Tableau X : Teneur en métaux dans les déchets ménagers (mg/kgMS)

M E T A L	Jun <i>et al.</i> , 2007	Espinosa Lloréns <i>et al.</i> , 2008	Boni <i>et al.</i> , 2007	Madrid <i>et al.</i> , 2007	BILAN d'après Lagier, 2000
	déchet frais	déchet frais	Fraction organique	déchet composté	
<b>As</b>	-	< 0,6	-	-	-
<b>Cd</b>	0,42	< 1,0	1,5	-	1,5 - 44
<b>Cr</b>	36,24	320 - 533	45	-	50 - 400
<b>Cu</b>	36,24	99 - 833	148	128 - 244	100 - 900
<b>Hg</b>	-	1,21 - 3,75	-	-	0,1 - 5
<b>Ni</b>	20,85	-	29	23 - 54	15 - 200
<b>Pb</b>	44,31	149 - 1446	278	98 - 203	100 - 700
<b>Zn</b>	24,5	258 - 1030	321	261 - 512	400 - 2300

Le fer reste cependant le principal métal contenu dans un déchet ménager, avec des quantités avoisinant des dizaines de grammes par kilogrammes de déchets secs (Flyhammar, 1997) ; (Mårtensson *et al.*, 1999). En outre, quelle que soit la méthode d'analyse utilisée, les résultats

obtenus en terme de composition en éléments métalliques sont hétérogènes. Les valeurs annoncées par les différents auteurs révèlent des incertitudes importantes certainement liées à l'hétérogénéité du gisement. La plupart des métaux sont présents dans les déchets avec des teneurs variant du  $\mu\text{g/kgMS}$  au  $\text{g/kgMS}$  ; l'âge du déchet étant un facteur influant fortement sur la teneur en métaux. Au cours du stockage, une partie de ces métaux est mobilisée dans la phase liquide ; le lixiviat constituant le principal vecteur de transport de la pollution métallique, seules des quantités infimes de métaux sont émises avec le biogaz.

Cette composition physique et chimique révèle que 27 % des ordures ménagères résiduelles présentent un réel potentiel de valorisation matière soit 87 kg/hab/an et 63 % de ce même gisement (déchets putrescibles, papiers, cartons, textiles sanitaires) a un potentiel de valorisation organique soit 200 kg/hab/an.

#### IV.1.2. Evolution au cours de la dégradation

L'ensemble des caractéristiques des déchets évoluent au cours de l'enfouissement tant au niveau de leur propriétés physiques (granulométrie, répartition...), de leur composition chimique que de leur potentiel de biodégradation. De même, la mise en place d'un prétraitement avant enfouissement crée un changement dans la structure et la composition du déchet.

Ainsi, la granulométrie du déchet évolue lors du stockage dans le sens d'une réduction de la taille des différentes fractions (François *et al.*, 2006). La répartition de ces différentes fractions évolue également traduisant un état de plus en plus dégradé. Quatre grandes classes de composés se distinguent (François *et al.*, 2006) :

- les composés rapidement dégradables (putrescibles, déchets verts),
- les composés moyennement dégradables (papiers-cartons et CNC),
- les composés lentement dégradables (textile),
- les composés réfractaires (plastiques, métaux, verre, INC).

Ainsi, la quantité de composés dégradables diminue alors que la proportion de composés réfractaire reste stable mettant en évidence une vitesse de dégradation propre à chaque catégorie de déchets. Après 30 ans d'enfouissement en milieu anaérobie, plus de 60 % de la composition initiale du déchet a été dégradée (François *et al.*, 2006).

Au niveau de la composition chimique du déchet, la teneur en matière organique évolue significativement dans le temps renseignant sur l'état de dégradation du déchet. Cette évolution de la matière organique est à mettre en relation avec les différentes fractions du déchet car toutes n'en contiennent pas la même proportion. Même si les putrescibles ( $\approx 90\%$ ) et les papiers cartons ( $\approx 70\%$ ) restent la source principale de cette matière organique d'autres composés toutefois plus difficilement dégradables tels que les plastiques représentent une source importante en matière organique. La prise en considération de ces composés difficilement dégradables dans la mesure de la matière organique donne lieu à une surestimation de la matière organique d'un déchet et par conséquent modifie la relation entre la matière organique et l'état de dégradation du déchet (Kelly, 2002). Un déchet stabilisé présente donc une teneur totale en matière organique comprise entre 10 et 20 % (Kelly, 2002) contre plus de 60 % pour un déchet frais (ADEME, 2009). Cette matière organique résiduelle et plus difficilement dégradable est souvent considérée dans la littérature comme étant de la lignine (Kelly, 2002). Cette conclusion est liée à la composition initiale du déchet enfoui : 50 % de cellulose, 10-15 % de lignine et 12 % d'hémicellulose en masse sèche (Wang *et al.* 1994). Alors que la cellulose et l'hémicellulose vont se dégrader, la lignine, macromolécule tridimensionnelle de haut poids moléculaire, reste une source importante de matière organique. Le caractère hydrophobe de la lignine peut toutefois inhiber la dégradation de la cellulose, constituant majeur des papiers-cartons, et ainsi ralentir voire bloquer leur dégradation.

L'état de dégradation du déchet peut également être appréhendé au travers de la teneur en carbone organique. La teneur en matière organique (MO) d'un déchet est reliée à la teneur en carbone organique (COT) par la relation COT/MO qui dépend du degré de dégradation du déchet (Gachet, 2005). Malgré la grande hétérogénéité de la matrice déchets, l'évolution de la teneur en carbone organique est similaire à celle de la matière organique en étant toutefois plus représentatif d'un état d'avancement car la technique analytique généralement employée (oxydation par voie humide au bichromate de potassium) ne prend pas en compte les composés réfractaires à la dégradation.

De part leur composition (putrescibles, déchets verts, CNC et textiles), les déchets ménagers renferment également une quantité importante d'azote. Cet élément est nécessaire à tout processus de biodégradation car indispensable au développement des microorganismes (Vigneron *et al.*, 2007). La teneur en azote du déchet évolue faiblement au cours de la dégradation notamment lors des vingt premières années d'enfouissement (François *et al.*, 2006). Ce composé n'est donc souvent pas considéré comme indicateur pertinent dans l'approche de l'état de dégradation des déchets. Toutefois, à partir de ce paramètre, il est possible de calculer le rapport C/N qui permet de mettre en évidence l'évolution de la dégradation. Situé aux alentours de 70 pour un déchet frais, ce rapport diminue jusqu'à 16 après 20 ans d'enfouissement (François *et al.*, 2006).

L'aptitude du déchet à se biodégrader qui peut être assimilé à son potentiel de production de biogaz (BMP) évolue également au cours du stockage. Dans le cas d'un déchet frais, le taux de production total de méthane (déterminé à partir d'essais de biodégradabilité) est compris entre 60 et 170 Nm<sup>3</sup>CH<sub>4</sub>/tMS (El-Fadel et Massoud, 2000) avec toutefois des disparités entre les différentes fractions biodégradables : de 127 à 167 Nm<sup>3</sup>CH<sub>4</sub>/tMS pour les papiers, 209 Nm<sup>3</sup>CH<sub>4</sub>/tMS pour les cartons, 94 à 142 Nm<sup>3</sup>CH<sub>4</sub>/tMS pour les textiles et textiles sanitaire, 28 Nm<sup>3</sup>CH<sub>4</sub>/tMS pour le bois et 16 à 94 Nm<sup>3</sup>CH<sub>4</sub>/tMS pour les déchets putrescibles (Harries *et al.*, 2001a). Ce potentiel peut diminuer de près de 98 % en 20ans de confinement (François *et al.*, 2006).

#### IV.1.3. Impact d'un prétraitement sur les caractéristiques du déchet

La mise en place d'un prétraitement de type mécanique et biologique aérobie avant enfouissement engendre quant à lui une diminution du volume de déchets à enfouir de l'ordre de 55-60 % corrélable à une réduction du contenu en matière organique (Norbu *et al.*, 2005 ; Bezama *et al.*, 2007). La perte de masse au cours du traitement biologique, déterminante quant à la réduction des tonnages destinés à l'enfouissement, peut ainsi atteindre 20 à 47 % de la matière humide selon le procédé, le type de déchet et la durée de traitement (Adani *et al.*, 2004). Une réduction de 19 % en matière sèche et de 39 % de la matière organique oxydable a également été observée (Bayard *et al.*, 2010). A l'issue du prétraitement mécanique et biologique, seuls les composés plus difficilement biodégradables sont présents au sein du massif de déchets. En effet, lorsque les conditions d'aération, de température et d'humidité de la phase de traitement intensif sont optimales, une réduction en amont de la matière organique de près de 80 % est observée (Fricke *et al.*, 2005).

*La composition d'un déchet ménager évolue considérablement au cours de son enfouissement d'un point de vue physique, chimique et biologique et ce quelque soit sa nature. L'évolution du déchet dépend des conditions et de la durée d'enfouissement mais surtout de la composition initiale du déchet enfoui. Un prétraitement avant enfouissement notamment de type mécanique et biologique fait également évoluer les caractéristiques bio-physicochimiques du déchet.*

## IV.2. Qualité du biogaz produit

Du processus de dégradation anaérobie de la matière organique biodégradable des déchets résulte une production spontanée de biogaz. Ce biogaz est un gaz combustible majoritairement composé de dioxyde de carbone (CO<sub>2</sub>) et de méthane (CH<sub>4</sub>) mais également d'autres types de gaz à l'état de trace. Ainsi, suivant sa provenance, il contient aussi des quantités variables d'eau, d'azote, d'hydrogène sulfuré (H<sub>2</sub>S), d'oxygène, de composés aromatiques, de composés organo-halogénés (chlore et fluor) et des métaux lourds, ces trois dernières familles chimiques étant présentes à l'état de traces. Plus de 500 composés organiques volatils ont été recensés dans le biogaz issu de centre d'enfouissement des déchets d'ordures ménagères (Parker *et al.*, 2003). De plus, cette composition est fonction de l'état de biodégradation des composés organique initialement enfouis.

Les composés présents au sein des effluents gazeux type biogaz sont ainsi classés en 2 catégories selon leur proportion :

- les gaz majoritaires (de l'ordre du %) : CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub> et O<sub>2</sub>
- les gaz minoritaires ou gaz traces (de l'ordre du mg/Nm<sup>3</sup>) : NH<sub>3</sub>, le N<sub>2</sub>O, l'H<sub>2</sub>S et les COV (benzène, toluène, cétones, alcools, aldéhydes, esters, chloroéthylènes et autres composés organiques volatils).

Le dioxyde de carbone et le méthane sont produits lors de la méthanogenèse alors que l'O<sub>2</sub> et le N<sub>2</sub> proviennent généralement de l'air résiduel contenu dans les pores du déchet. Les composés traces qui représentent environ 1 % en volume de la totalité du biogaz peuvent soit être générés pendant le processus de biodégradation (composés sulfurés, composés de l'oxygène, hydrocarbures), soit résulter d'un apport initial des déchets (hydrocarbures aromatiques, hydrocarbures halogénés). Les organo-halogénés par exemple, éléments difficiles à traiter, proviennent de la décomposition des plastiques et de la présence de déchets toxiques comme les piles.

De part son origine et sa composition, le biogaz peut donc être considéré comme gaz naturel dangereux dont la toxicité est relativement importante. Il contribue notamment à l'effet de serre de par le CH<sub>4</sub> et le CO<sub>2</sub> qu'il contient (El-Fadel et Massoud, 2000). Jusqu'à ces dernières années, le biogaz produit par le stockage des ordures ménagères était le plus souvent considéré comme un sous-produit de la décomposition organique, et ne donnait que rarement lieu à des valorisations. Depuis dix ans, l'amélioration des techniques de stockage a engendré un accroissement des débits de gaz produits, rendant rentable et même parfois très avantageuse la récupération de l'énergie "biogaz". De plus le renforcement de la législation européenne et française impose désormais sa captation et la recherche de solutions de valorisation, ou à défaut de destruction (Directive CEE du 26/04/99 ; arrêté du 9 septembre 1997 relatif aux centres de stockage de classe II). L'aspect financier d'une réduction des coûts d'exploitation du site par valorisation du biogaz produit est également un paramètre essentiel pris en compte. A chaque type de biogaz correspond un pouvoir calorifique différent : un biogaz contenant 65 % de méthane aura par exemple un pouvoir calorifique de 6,5 kWh/m<sup>3</sup> (source : EDF). La valorisation du biogaz n'est toutefois possible que lorsque la production est suffisamment importante. En France, seulement une vingtaine d'installations de stockage de déchets ménagers ont la capacité de valoriser le biogaz produit.

Le biogaz est capté par le biais de drains mis en dépression pour bien capter le biogaz ou bien encore de puits installés dans le massif de déchets au fur et à mesure de leur entassement. Ces systèmes sont placés sur la couche drainante recouvrant chaque casier une fois celui-ci rempli. Le biogaz est ensuite évacué par un réseau de tuyaux spécifiques vers une plateforme de combustion ou de valorisation. Plusieurs modes de traitement sont ainsi aujourd'hui énoncés comme la combustion par torchère, la valorisation thermique ou électrique.

En outre, la valorisation du biogaz ne s'effectue qu'après épuration. L'élimination des éléments traces peut se faire par adsorption sur du charbon actif ou des résines spécifiques, par absorption par un liquide ou condensation par réfrigération.

#### IV.2.1. Evolution de la composition du biogaz

Le suivi de la quantité et de la qualité du biogaz produit tout au long de la durée d'exploitation d'un centre de stockage permet de se situer dans la succession des différentes phases théoriques de dégradation des déchets. En effet, la cinétique de production du biogaz est un paramètre fondamental qui permet de déterminer le temps nécessaire à la stabilisation biologique du déchet enfoui (Lornage *et al.*, 2007). L'évolution de la composition du biogaz pour un déchet ménager non prétraité peut se décomposer en 4 phases pour lesquelles les durées théoriques sont données à titre d'information (Figure 14).

L'émission de biogaz peut s'étendre sur plusieurs dizaines d'années, d'abord à un rythme croissant, puis décroissant. Au niveau des espèces majoritairement présentes, au cours des premières années d'exploitation (0 à 3 ans), le biogaz se compose majoritairement de  $N_2$  et de  $CO_2$  alors qu'au-delà de 5 ans,  $CO_2$  et  $CH_4$  sont présents dans des proportions similaires. S'il est aspiré régulièrement et sous contrôle, le biogaz se compose de 40 à 50 % de  $CH_4$ , 35 à 45 % de  $CO_2$ , 5 à 15 % de  $N_2$ , et 0 à 3 % d' $O_2$  en volume (Farquhar et Rovers, 1973).

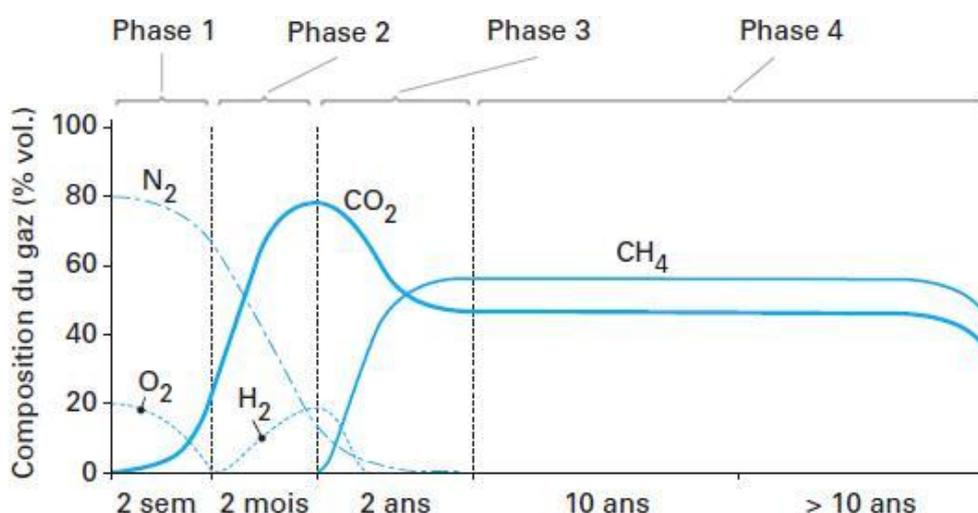


Figure 14 : Evolution de la composition du biogaz au cours de la dégradation des déchets ménagers (Farquhar et Rovers, 1973).

Les espèces minoritaires et notamment les COV apparaissent également comme des indicateurs potentiels de l'activité biologique au sein du déchet. En effet, une partie des COV retrouvés dans le biogaz sont d'origine microbiologique (Fischer *et al.*, 1999). Cependant, l'importante volatilisation de certains produits complexes présents dans les déchets peut générer un bruit de fond dans lequel il apparaît difficile d'identifier des indicateurs d'une activité biologique. Le processus de dégradation biologique des déchets générerait néanmoins trois familles de COV (Christensen *et al.*, 1989) : les composés oxygénés (présents dans le biogaz de décharge pendant la phase initiale de production de gaz), les composés soufrés (issus de la dégradation de la matière facilement biodégradable) et les hydrocarbures (naturellement générés puisque déposés avec les déchets enfouis).

#### IV.2.2. Facteur influençant la production de biogaz

Les conditions de formation du biogaz sont influencées par différents facteurs donnant lieu à des compositions spécifiques. Des facteurs tels que la nature et la composition des déchets, le degré de compactage des ordures, le taux d'humidité des ordures ou encore le type de couverture du centre de stockage influent sur la quantité de biogaz produit et sur sa composition. Il s'agit de facteurs ayant une influence directe sur la qualité de vie des micro-organismes générateurs de méthane ; la toxicité

en est également modifiée (Allen *et al.*, 1997). La production de biogaz est en effet favorisée par un taux de matière organique important (> 30 %), une forte humidité (40 à 60 %), un pH compris entre 7,5 et 8,5 et des teneurs en sodium, calcium, potassium magnésium et sulfures inférieures à 300mg/l. Certains composés tels que l'acétaldéhyde ou le phénol sont également considérés comme inhibiteurs de la production de biogaz (Allen *et al.*, 1997).

Le taux de production de méthane pour les déchets ménagers varie de 85 à 125 Nm<sup>3</sup>CH<sub>4</sub>/tMS (Harries *et al.*, 2001a ; Harries *et al.*, 2001b). La gestion du centre de stockage en mode bioréacteur engendre une amélioration de la production et de la qualité du biogaz pouvant aller jusqu'au doublement de la quantité produite lors d'une gestion conventionnelle (Augenstein *et al.*, 2005). La co-digestion de déchets municipaux avec des boues de STEP stimule également la production de méthane en terme de vitesse et de rendement (Agdag et Sponza, 2007). La composition de ce biogaz lui confère un haut potentiel de valorisation comme source d'énergie (Sosnowski *et al.*, 2003).

De même, dans le cas d'un prétraitement mécanique et biologique avant enfouissement, la mise en place précoce de la méthanogenèse est généralement observée (Lornage *et al.*, 2007) et est caractérisée par une production maximale de biogaz seulement après quelques mois d'enfouissement. Cette production de biogaz est toutefois bien inférieure à celle observée dans le cadre d'une gestion conventionnelle ; elle peut être réduite de près de 80-90 % (Leikam et Stegmann, 1999 ; Adani *et al.*, 2004 ; Münnich *et al.*, 2006). Ainsi, après un prétraitement de 16 semaines le potentiel méthanogène résiduel est de 20 Nm<sup>3</sup>CH<sub>4</sub>/tMS (Leikam et Stegmann, 1999).

*Le biogaz produit par le stockage des déchets ultimes est donc un gaz qui, malgré sa toxicité et sa nocivité pour l'environnement, est considéré comme une énergie propre et renouvelable (Forster-Carneiro et al., 2008). Il peut être capté et traité en vue d'une valorisation d'où l'idée de contrôler et d'organiser de façon industrielle la fabrication de ce biogaz notamment par le biais de procédés de méthanisation.*

### IV.3. Qualité du lixiviat généré

La genèse des lixiviats s'effectue selon des mécanismes biologique et physico-chimique complexes simultanément aérobies et anaérobies. En effet, au cours de l'exploitation du centre de stockage, les opérations de remplissage et de fermeture des alvéoles induisent la mise en place des conditions physico-chimiques nécessaires aux métabolismes aérobies et anaérobies de la biodégradation. La formation du lixiviat étant la conséquence de l'infiltration non uniforme et intermittente dans la masse de déchets d'eau de pluie, d'eau de ruissellement mais également de la présence d'humidité dans les déchets au moment de leur enfouissement (El-Fadel *et al.*, 1997). Ainsi, les composés solubles initialement présents dans les déchets enfouis ou se formant au cours des différentes phases de dégradation permettent à l'eau de se charger bactériologiquement et chimiquement de substances minérales et organiques. La courte phase aérobie qui suit l'enfouissement est peu propice à la production de lixiviat car le déchet est encore trop sec ; une fois l'oxygène consommé, le volume de lixiviat s'intensifie et se charge progressivement (Barlaz *et al.*, 1992).

Le flux de production de lixiviat ainsi que sa composition sont directement liés aux mécanismes physico-chimiques et biologiques se déroulant au sein du massif de déchet. Le lixiviat est donc un effluent complexe caractéristique du centre de stockage dont il est issu. En terme de quantité produite, différentes études réalisées mentionnent des volumes produits très variables selon le site. Une moyenne de l'ordre de 0,8 à 1,0 L/an/ tonne de déchets enfouis peut être établie (Hjelmar *et al.*, 1994). De nombreux paramètres tels que les caractéristiques physico-chimiques du déchet ou la conception du centre de stockage sont susceptibles d'influencer la production de lixiviat tant au niveau de la quantité produite qu'au niveau de leur composition (El-Fadel *et al.*, 2002).

Le volume important de lixiviat généré ne peut pas, de part sa nature, sa composition et sa toxicité, être rejeté dans le milieu naturel sans traitement préalable. Le traitement considéré fait appel à de nombreux procédés qui dépendent du volume et de la composition des lixiviats. Les différents types de traitement qui s'inspirent de ceux appliqués aux eaux usées en station d'épuration urbaines sont généralement des traitements biologiques, physico-chimiques, thermiques ou membranaires. Les lixiviats jeunes et biodégradables sont traités par le biais de procédés biologiques alors que les lixiviats plus âgés, peu ou pas biodégradables sont soumis à des traitements physico-chimiques (Millot, 1986 ; Mac Bean *et al.*, 1995). Après traitement, les lixiviats sont rejetés dans le milieu naturel sous réserve que leur composition respecte les valeurs réglementaires de rejets (arrêté 9 sept 1997). Cependant, le plus souvent, le traitement des lixiviats est assuré dans une station d'épuration collective, urbaine ou industrielle après une vérification préalable que celle-ci est apte à les traiter sans nuire à la qualité des boues d'épuration.

#### IV.3.1. Composition globale d'un lixiviat

Même s'il est difficile de prévoir la composition des lixiviats car elle dépend de la nature des déchets, du volume des précipitations ainsi que du stade de dégradation atteint, certains auteurs relèvent classiquement quatre principaux types de polluants (Christensen *et al.*, 1994) :

- la matière organique dissoute ou en suspension, issue de la biomasse (AGV, substances humiques et fulviques...)
- les micropolluants organiques (hydrocarbures, composés aromatiques...)
- les composés minéraux majeurs sous forme ionique ( $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{Fe}^{2+}$ ,  $\text{HCO}_3^-$ ,  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ...) ainsi que d'autres composés tels que les borates, les sulfites...
- les cations de métaux lourds à l'état de traces, sous forme majoritairement complexée par des ligands minéraux ( $\text{HCO}_3^-$ ,  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ) ou organiques (macromolécules de type humique et fulvique majoritairement).

Le lixiviat se compose donc d'un mélange de matière inorganique, de métaux, de matière organique biodégradable mais également de composés organiques réfractaires à la dégradation de type humique qui reflète l'hétérogénéité de composition du déchet enfoui. Les lixiviats peuvent également contenir certains micro-organismes pathogènes (Koshy *et al.*, 2007). En effet, les lixiviats issus des centres de stockage des déchets ont fait l'objet de nombreuses études d'écotoxicologie qui ont montrées le caractère dangereux de cette matrice (Martinen *et al.*, 2002 ; Silva *et al.*, 2004 ; Koshy *et al.*, 2007). Du fait de l'hétérogénéité de composition des déchets ménagers et donc de la complexité de composition du lixiviat, les causes de l'effet toxique des lixiviats sont difficiles à identifier. Les composés potentiellement toxiques identifiés à ce jour sont toutefois les métaux, les composés chlorés organiques et inorganiques ainsi que l'ammoniaque (Koukal *et al.*, 2003 ; Renou *et al.*, 2008). Il est à noter que même si certains métaux sont des oligo-éléments indispensables à la vie (Cu, Zn, Ni,...), d'autres (Cd, Pb, Hg) n'ont pas de fonction biologique connue et présentent donc une toxicité potentielle à des valeurs relativement très faibles.

La composition du lixiviat est déterminée par la multitude de réactions chimiques se produisant au cœur du massif de déchets et visant à les dégrader. Cette dégradation s'effectue en plusieurs étapes métaboliques dépendant de la teneur en oxygène du milieu et de l'action de micro-organismes spécifiques présents. Ainsi, un lien peut être établi entre la composition du lixiviat et l'état de dégradation du déchet enfoui. Une évolution théorique de la composition des lixiviats émis par des CSDU de classe II permet d'identifier les différentes étapes de la dégradation (Christensen *et al.*, 1989). La Figure 15 illustre l'évolution de la composition du lixiviat au cours des différentes phases de dégradation du déchet ; cette évolution suit celle de la composition du biogaz précédemment décrite (Figure 14).

Les phases numérotées de I à V correspondent respectivement à l'hydrolyse, l'acidogénèse, l'acétogénèse, la méthanogénèse et la maturation.

Les conditions d'aération et d'humidité liées à l'exploitation du casier de déchets favorisent le démarrage de l'activité biologique au sein du massif de déchet. Cette étape consiste en une hydrolyse suivie d'une minéralisation des polymères organiques les plus facilement biodégradables. Cette activité aérobie engendre une augmentation progressive de la température (Kim *et al.*, 2010).

La phase de mise en place des déchets est suivie d'une phase de transition au cours de laquelle les conditions aérobies évoluent vers des conditions anaérobies et réductrices. Avec l'appauvrissement du milieu en oxygène, les microorganismes facultatifs et anaérobies s'accroissent et produisent une quantité importante d'acides gras volatils (AGV). Les concentrations en AGV dans le lixiviat peuvent représenter jusqu'à 95 % de la charge organique totale (Wang *et al.*, 2009). L'activité de cette flore acidogène entraîne une chute du pH (entre 4 et 5) ce qui a pour effet de solubiliser certains composants minéraux initialement présents dans le déchet. Les lixiviats produits au cours de cette période présentent une DCO élevée (jusqu'à 100 gO<sub>2</sub>/L). Les conditions physico-chimiques du milieu (anaérobiose et potentiels d'oxydo-réduction très bas) ont également un impact sur la mobilité de certains composés comme les éléments trace métalliques. La formation de complexes entre les molécules organiques et inorganiques maintient une concentration en métaux élevée. En effet, à pH acide, la solubilité des métaux est favorisée. Certaines espèces comme les chlorures ne sont toutefois pas affectées par les variations de ces conditions physico-chimiques. Les bactéries méthanogènes, de plus en plus présentes dans le milieu, consomment ces acides et la matière organique soluble et engendre une augmentation du pH. Les conditions dans le milieu deviennent alors très réductrices. A mesure de l'établissement d'une méthanogenèse stable, la charge organique des lixiviats diminue (Ham et Bookter, 1982). Le lixiviat produit est caractérisé par un pH neutre, une faible concentration en AGV, en métaux et en particules solides en suspension.

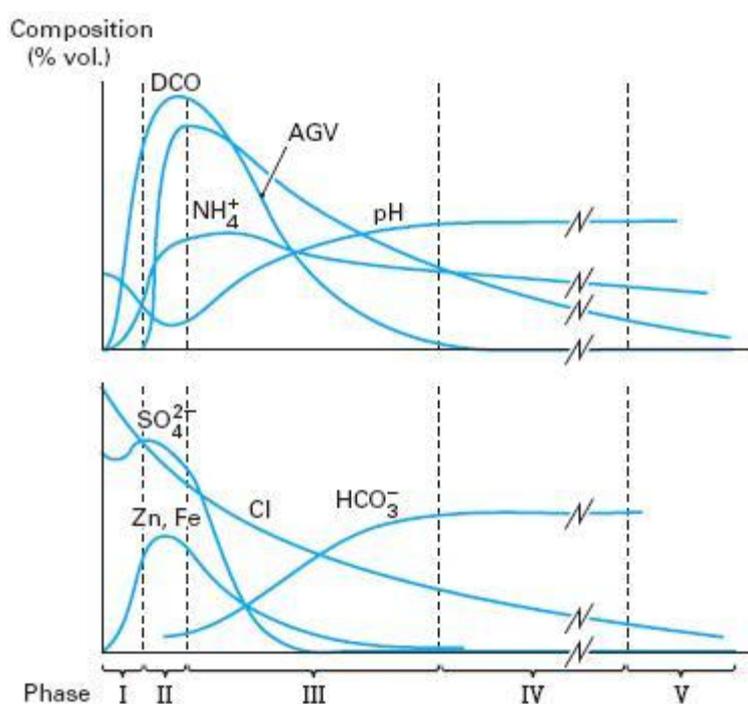


Figure 15 : Evolution théorique de la composition des lixiviats émis par des CSDU de classe II (Christensen et Kjeldsen, 1989).

En outre, une classification des lixiviats selon la durée d'enfouissement a été établie par certains auteurs en comparant leurs paramètres physico-chimiques (Tableau XI).

Tableau XI : Classement des lixiviats selon leur âge (Millot, 1986 ; Ramade, 1998).

Paramètre	Jeune	Intermédiaire	Stabilisé
Age	< à 5 ans	5 à 10 ans	> à 10 ans
pH	< 7	≈ 7	> 7
DCO (gO <sub>2</sub> /L)	> 20	3 à 15	< 2
Biodégradabilité (DBO <sub>5</sub> /DCO)	moyenne > 0,3	assez faible 0,1 à 0,3	très faible < 0,1
[Acides Organiques]	forte	moyenne	nulle

Ainsi, un lixiviat jeune (de moins de 5 ans) se situerait dans les premières phases de dégradation (hydrolyse, acidogénèse), un lixiviat de 5 à 10 ans, nommé intermédiaire correspondrait à la mise en place des phases d'acétogénèse et de méthanogénèse. Un lixiviat dit stabilisé (âgé de plus de 10 ans) appartiendrait aux phases de fin de dégradation (méthanogénèse et maturation). Toutefois, de nombreuses études mettent en évidence des incohérences entre la qualité du lixiviat et l'âge de dégradation du déchet (François *et al.*, 2006). Il est donc très difficile, voire impossible, d'associer une durée fixe et prédéfinie à une phase de dégradation. De plus, même si le lixiviat est représentatif de l'état microbiologique du système, les différentes zones d'un centre de stockage ne sont pas forcément toutes au même stade d'avancement.

#### IV.3.2. Matière organique

Présente dans les déchets au moment de leur enfouissement, la matière organique subit de multiples transformations au cours des différentes phases de dégradations : elle peut être éliminée par lixiviation, dégazage ou bien subsister à l'intérieur de la masse de déchet. Les caractéristiques très diversifiées des principales espèces organiques (lignine, cellulose et hémicellulose) sont à l'origine de la très lente évolution des déchets dans le temps. Lors de la percolation non uniforme et intermittente de l'eau à travers le massif de déchets, ces composés organiques initialement présents dans les déchets enfouis se retrouvent dans le lixiviat. Il a été établi depuis longtemps une bonne corrélation entre la matière organique du déchet et celle du lixiviat (Christensen *et al.*, 1994). Au cours du temps, ces composés organiques vont être dégradés chimiquement et biologiquement, minéralisés et même condensés en composés de haut poids moléculaire. Ces différentes transformations dépendent de nombreux paramètres tels que l'humidité, le type de prétraitement choisi ou encore la composition du déchet.

Cette matière organique est présente à tous les stades de dégradation des déchets sous des formes différentes. Toute matière organique est basée sur une architecture de C, H, O, N, S et P issus de l'activité métabolique des microorganismes. Le carbone est un élément chimique constitutif des composés organiques dont la quantité, la forme et l'évolution traduisent l'évolution de la matière. L'azote est une composante de la matière organique mais également de certaines molécules minérales. Sous la forme organique, l'azote est présent dans les protéines, acides aminés... Le lixiviat est généralement caractérisé par sa teneur en carbone organique dissous (COD) correspondant à un mélange hétérogène constitué de composés organiques non volatils (COV) et de substrats à base de protéines, de lignine, de cellulose, d'hémicellulose, de polysaccharides et de lipides (Pichler et Kögel-Knabner, 2000 ; Nanny et Ratasuk, 2002).

Au cours de l'enfouissement, en présence puis en absence d'oxygène, la matière organique subit une lente métabolisation la conduisant à la formation de molécules plus complexes de type Substances Humiques (SH\*). Elles se caractérisent par la complexité et la variété des polymères

organiques qui la constituent. De plus, elles ne présentent pas un modèle défini de structure mais sont généralement formées de noyaux polycycliques sur lesquels sont fixés des chaînes latérales composées de groupement carboxyliques, d'acides phénoliques, de polypeptides et d'hydrates de carbone. La variété de ces groupements ainsi que l'existence de nombreuses réactions avec d'autres composés minéraux et organiques ne permettent pas de définir une structure complète aux substances de type humique (Hänninen *et al.*, 1987). Ainsi, les substances de type humique ne constituent pas des composés bien spécifiques mais correspondent à un ensemble de composés possédant des propriétés chimiques identiques.

Le processus dit d'humification est très largement étudié dans la littérature et la plupart des informations sur cette étape ont été déduites d'observations faites sur différents milieux : tourbe, sol, compost... puis transférées au déchet (Piccolo *et al.*, 1996 ; Lichtfouse *et al.*, 1998 ; Conte et Piccolo, 1999 ; Bozkurt *et al.*, 2000 ; Coates *et al.*, 2002 ; Weber et Huang, 2003 ; Labanowski et Feuillade, 2009). Tout comme dans les milieux naturels, les phénomènes conduisant à la formation des substances humiques dans un massif de déchet sont donc difficiles à déterminer (Berthe, 2006) et dépendent des conditions du milieu (Koivula et Hänninen, 2001). De manière générale, les substances de type humique sont des macromolécules hydrophobes, de nature très complexe qui ne sont pas définies par leur structure ou par leurs fonctions chimiques mais selon leur mode d'extraction. Des techniques d'extractions séquentielles sont généralement employées et distinguent trois fractions selon leur solubilité en milieu acide ou alcalin (Inbar *et al.*, 1992 ; Chen *et al.*, 2002 ; Labanowski et Feuillade, 2009) :

- les humines (insolubles à tout pH)
- les Acides de type Humique (insolubles à pH < 2) notés AH\*
- les Acides de type Fulvique (soluble à tout pH) notés AF\*

Les acides de type fulvique peuvent être quant à eux classés en trois fractions distinctes selon leur caractère hydrophobe (Malcolm et MacCarthy, 1992) : les substances de type hydrophobe (HPO\*), les substances de type transphilique (TPH\*) et les substances de type hydrophile (HPI\*).

Un profond intérêt est témoigné à la matière organique et notamment aux substances humiques dans les lixiviats du fait de la stabilité de leur structure moléculaire, de leur prédominance en fin de procédé et surtout pour les informations qu'elles apportent sur les processus de dégradation des déchets. En effet, le type de composés organiques présents dans le lixiviat évolue au fur et à mesure de la dégradation des déchets (Berthe *et al.*, 2008). Ainsi, la dégradation de la matière organique s'accompagne d'une augmentation de l'aromaticité des molécules et d'une disparition des composés à courtes chaînes aliphatiques, des polysaccharides et des alcools facilement biodégradables (Chen, 2003).

En outre, l'étude de l'état d'humification des molécules organiques permet de déterminer trois grandes phases de dégradation dont les principales caractéristiques sont présentées dans le Tableau XII. Cet état d'humification peut être évalué par la classification des molécules organiques du lixiviat selon leur caractère hydrophobe (Labanowski et Feuillade, 2009) ou selon leur poids moléculaire apparent (Berthe *et al.*, 2008).

L'indice SUVA correspond au rapport entre absorbance UV à 254nm et concentration en carbone organique dissous dans le lixiviat. Il est considéré comme très pertinent dans la caractérisation des molécules organiques du lixiviat car il traduit la présence de molécules aromatiques (François *et al.*, 2006). Son évolution est également fonction des différentes phases de dégradation (Berthe *et al.*, 2008).

Tableau XII : Caractéristiques de la matière organique issue des lixiviats au cours des 3 phases de dégradation (Berthe *et al.*, 2008 ; Feuillade *et al.*, 2009).

Caractéristiques	Phase I	Phase II	Phase III
Substances de type Humique	AH* > 10% HPI* > 50%	AH* < 10% HPI* ≤ 50%	AH* > 30% HPI* < 20%
Rapport AH*/AF*	0,1 à 0,5	< 0,5	> 0,5
Stabilité des molécules	très faible	faible	élevée
Indice SUVA (L/cm/g)	< 10	10 - 30	> 30

La **phase I** correspond à une phase de lessivage où des molécules très peu stables sont libérées dans le lixiviat. Il s'agit de molécules de type fulvique (HPI\* > 50 %) dont le poids moléculaire apparent (PMA) est relativement faible et peut être inférieurs à 0,5-1 kDa (Calace *et al.*, 2001). Le rapport AH\*/AF\* est alors élevé durant cette première phase tout comme les pourcentages en AH\* et en HPO\* qui diminuent ensuite progressivement. La faible valeur de l'indice SUVA indique également la présence de molécules peu aromatiques. Ces molécules prédominent dans un lixiviat jeune et vont subir des décompositions jusqu'à disparaître. En effet, les acides de type fulvique se forment en premier puis sont transformés en acides de type humique au cours de l'enfouissement.

Ainsi, au cours de la **phase II**, des macromolécules plus stables apparaissent. Elles sont caractérisées par un pourcentage en HPI\* supérieur ou égal à 50 %, un pourcentage en TPH\* supérieur au pourcentage en HPO\* et un pourcentage en AH\* qui augmente progressivement tout en restant inférieur à 10 %. La diminution du rapport AH\*/AF\* et l'augmentation de l'indice SUVA indiquent une stabilisation du système liée à un ralentissement des processus de transformation ou à un changement du type de microorganismes responsables des biotransformations.

Lors de la dernière phase de dégradation (**phase III**), des composés organiques très stables et de haut poids moléculaire sont prédominant. Cette phase dite d'humification est caractérisée par une augmentation significative de la proportion d'acides de type humique (AH\* > 30 %), un pourcentage en HPO\* supérieur au pourcentage en TPH\* et un pourcentage en HPI\* qui est inférieur à 20 %. Le rapport AH\*/AF\* et l'indice SUVA augmentent tout au long de cette phase pouvant atteindre des valeurs respectivement de 2,5 et 60 L/cm/g. A ce stade de l'évolution des déchets, près de 80 % du COD d'un lixiviat est constitué de macromolécules de type humique (Lagier, 2000). La présence des macromolécules organiques augmente donc avec la durée d'enfouissement (Kang *et al.*, 2002). Plus le déchet enfoui a atteint un degré de transformation avancé, et plus le nombre de composés organiques hydrophobes et d'acides de type humique au sein du lixiviat est important (Labanowski *et al.*, 2003).

Ces différentes évolutions dans la structure des molécules organiques peuvent être corrélées aux phases caractéristiques de la dégradation des déchets (Figure 16).

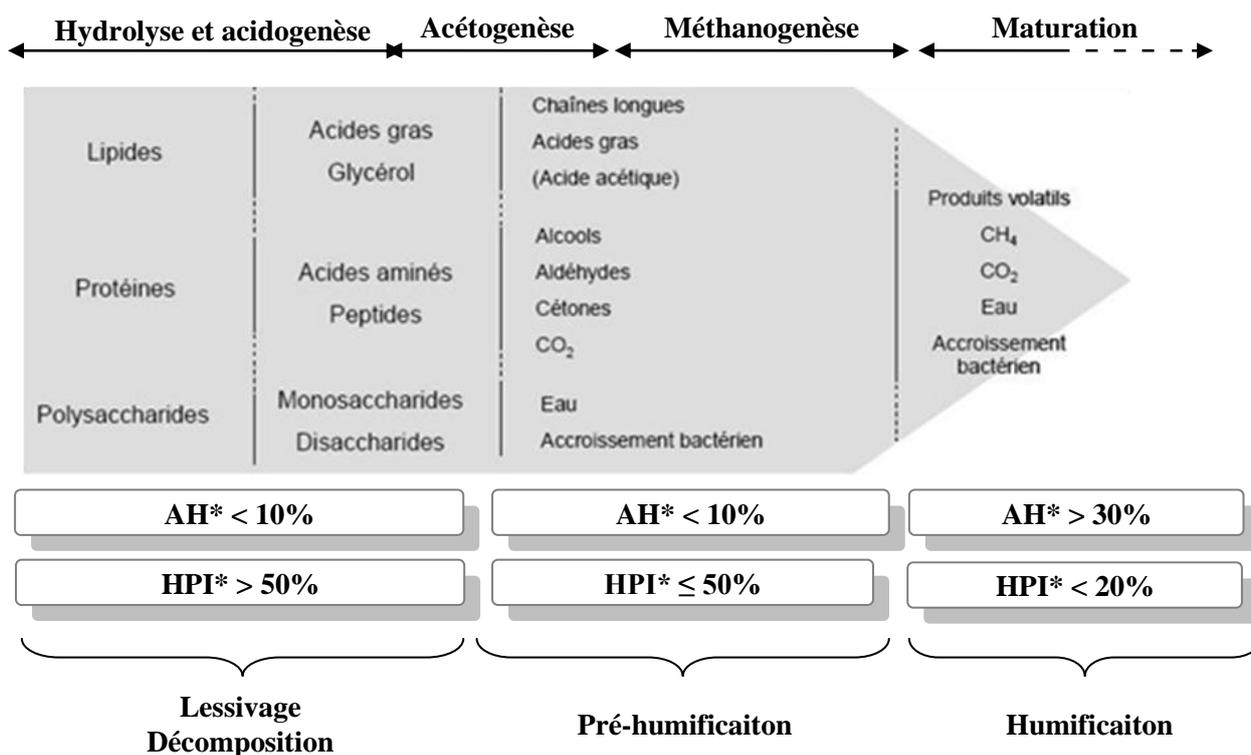


Figure 16 : Corrélation entre phases de dégradation et évolution des substances humiques.

Ainsi, il existe une relation entre le degré d'humification de la matière organique et l'état d'avancement de la dégradation des déchets : plus les molécules sont complexes, hydrophobes, aromatiques et de haut poids moléculaire et plus la dégradation est avancée. A l'inverse, les molécules simples et hydrophiles sont encore dégradables. Une stabilisation du système est alors atteinte lors de l'arrêt de l'activité biologique de dégradation et d'humification.

#### IV.3.3. Métaux

La mobilité des métaux est la résultante de différents processus tendant les uns à augmenter leur solubilité (complexation, désorption, acidification, oxydation...) et les autres à la diminuer (précipitation, adsorption...) (Mårtensson *et al.*, 1999).

Les métaux sont cependant considérés comme très peu mobiles une fois les premières phases de dégradation achevées (hydrolyse et acidogénèse). Il est estimé que plus de 97 % du stock de métaux lourds présent dans le déchet y est encore piégé au bout de 30 ans (Baccini *et al.*, 1987 ; François *et al.*, 2003). Les teneurs en éléments métalliques contenus dans les lixiviats issus de centre conventionnels de stockage des déchets diffèrent selon les auteurs.

Le Tableau XIII mentionne les valeurs moyennes rencontrées dans les lixiviats au cours du temps par différents auteurs ; ces gammes de concentrations ne tiennent cependant pas compte des conditions opératoires d'exploitation.

Les métaux majoritairement présents dans les lixiviats d'ordures ménagères sont : le cadmium, le chrome, le cuivre, le fer, le nickel, le plomb et le zinc (Öman et Junestedt, 2008).

Tableau XIII : Teneurs moyennes en éléments métalliques dans les lixiviats ( $\mu\text{g},\text{L}^{-1}$ ).

Métal	Kulikowska et Klimiuk, 2008	Öman et Junestedt, 2008	Ehrig, 1983
	<i>0 à 10 ans d'enfouissement</i>	<i>0 à 50 ans d'enfouissement</i>	<i>phase méthanogène moyenne 20 centres</i>
<b>Al</b>	-	26 - 579	-
<b>As</b>	-	0 - 34	-
<b>Cd</b>	22 - 130	0 - 3	5
<b>Co</b>	-	1,7 - 21	-
<b>Cr</b>	50 - 80	1,4 - 45	275
<b>Cu</b>	10 - 90	5,8 - 80	65
<b>Fe</b>		160 - 42700	-
<b>Hg</b>	0 - 17	0 - 0,1	-
<b>Mn</b>	-	165 - 5200	-
<b>Ni</b>	0 - 70	9,8 - 91	166
<b>Pb</b>	0 - 1840	0 - 15,4	87
<b>Zn</b>	220 - 440	13 - 342	840

#### IV.3.3.1 Facteurs influençant la solubilité des métaux

La solubilité des éléments métalliques est principalement dépendante de certains paramètres physiques et chimiques tels que le pH, le potentiel redox et la présence d'électrons donneurs ou accepteurs. Le pH est un facteur essentiel de la spéciation des éléments en solution qui détermine la solubilité des phases minérales telles que les oxydes et hydroxydes métalliques. La modification du pH entraîne des changements de spéciation des espèces chimiques présentes dans le milieu, essentiellement par oxydation : en milieu acide les métaux sont très solubles. Le potentiel d'oxydoréduction (redox) influence directement la spéciation et la solubilité des éléments possédant plusieurs degrés d'oxydation. Il peut également jouer un rôle indirect en modifiant la spéciation des ions susceptibles de complexer l'élément métallique. Les principaux éléments susceptibles de contrôler le potentiel redox dans les systèmes géochimiques de surface sont l'oxygène (une augmentation de l'oxygène dissous augmente le potentiel redox), l'hydrogène (une augmentation entraîne une chute du potentiel), le fer et le soufre.

La mobilité, la réactivité et la disponibilité des éléments métalliques dépendent de leur spéciation. En effet, les espèces métalliques présentent des comportements différents en fonction de la forme chimique sous laquelle elles se trouvent. La littérature fournit assez peu de données relatives à la spéciation des métaux dans les lixiviats et les teneurs en métaux mesurées correspondent généralement aux teneurs totales en éléments dissous présents dans la fraction supérieure à  $0,45\mu\text{m}$ . La spéciation des espèces métalliques dépend des propriétés de l'élément considéré et de divers paramètres tels que le pH, le potentiel redox, la concentration en ions compétiteurs ainsi que la nature et la quantité de matière organique et colloïdale du milieu dans lequel il évolue. Pour certains auteurs, les éléments métalliques sont majoritairement présents dans la phase colloïdale des lixiviats (fraction comprise entre  $1\mu\text{m}$  et  $1\text{nm}$ ) et sous forme de complexes organiques et inorganiques (Jensen *et al.*, 1999 ; Baun et Christensen, 2004). Une étude de la distribution et de la spéciation des éléments métalliques dans les lixiviats a montré que le Cd, Zn, Cu, Al et Pb sont principalement présents dans la fraction  $> 0,45\mu\text{m}$  (matière particulaire et colloïdale) alors que le Cr, Co et Ni sont présents dans la fraction  $< 0,45\mu\text{m}$  (complexes non labiles) (Øygaard *et al.*, 2007). D'autres auteurs mettent en évidence des grandes tendances, comme une évolution vers des formes de plus en plus

stables (matière organique, sulfures) pour des déchets stabilisés et à l'inverse, des espèces métalliques plus facilement échangeables dans des déchets frais (François *et al.*, 2003).

#### IV.3.3.2 Complexation des métaux avec la matière organique

Les phénomènes de complexation avec des molécules organiques ou minérales jouent un rôle prépondérant dans le transport des éléments métalliques et peuvent en augmenter significativement la solubilité. La matière organique soluble, colloïdale ou non et surtout les macromolécules de types humique ou fulvique ont un rôle prédominant dans la mobilité, la toxicité et la biodisponibilité des éléments métalliques (Laborda *et al.*, 2008). La quantité d'éléments métalliques lixiviés augmente avec la charge organique du lixiviat traduisant une augmentation de leur mobilité par complexation avec la matière organique (Lagier *et al.*, 2001). Les propriétés complexantes des macromolécules vis-à-vis du nickel, du cadmium ou encore du zinc ont déjà été mises en avant dans la littérature (Christensen *et al.*, 1996). En effet, le comportement des espèces métalliques diffère selon le métal considéré. Il est possible de hiérarchiser la solubilité des métaux en fonction de leur aptitude à être mobilisés soit :  $S \gg Ni > Zn, Cu, Mn, Cr > Pb, Fe, Cd$  (Flyhammar et Håkansson, 1999). Le plomb, le cuivre et le cadmium sont principalement complexés à la matière organique du lixiviat alors que le zinc et le nickel sont plutôt sous forme de complexes inorganiques (Legret *et al.*, 1987). Le phénomène de complexation des éléments métalliques avec la matière organique du lixiviat est principalement dû à des composés de forte masse moléculaire comme les acides humiques et fulviques (Christensen *et al.*, 1998) par le biais de fonctions carboxyliques qui semblent favoriser la complexation des éléments métalliques (Businelli *et al.*, 1999 ; Madrid *et al.*, 2007). Les acides fulviques ont une proportion de fonctions carboxyliques plus importante que les acides humiques et semblent donc avoir des propriétés complexantes plus importantes (Bozkurt *et al.*, 1999 ; Lagier, 2000). Les substances humiques peuvent donc être définies comme le facteur le plus important dans la remobilisation des éléments métalliques dans les lixiviats (Bozkurt *et al.*, 1999). Certaines caractéristiques de ces macromolécules (poids moléculaire, aromaticité et polarité) influencent la solubilité des éléments métalliques présents dans le déchet. En général, les molécules de haut poids moléculaire ont une plus grande aptitude à la complexation mais sont souvent plus facilement adsorbées sur les phases solides, ce qui réduit leur mobilité (Zhou *et al.*, 2005).

Les interactions avec la matière organique peuvent donc augmenter mais également diminuer la capacité de relargage des polluants métalliques, tout dépend de la mobilité de ces composés organiques, de leur poids moléculaire apparent, de leur polarité et de leur aromaticité. De plus, sachant que les substances organiques ont une influence sur la biodisponibilité des métaux, elles peuvent donc jouer un rôle important sur le caractère écotoxique du lixiviat.

Le relargage des éléments métalliques est donc en partie conditionné par les caractéristiques des molécules organiques mais également par les conditions du milieu. En effet, la capacité de complexation des substances humiques varie selon la température, l'alcalinité, la force ionique ou encore le pH. Ces paramètres peuvent modifier la conformation des substances humiques et donc la disponibilité des sites complexants (Schnitzer, 1991). Au niveau du pH, une augmentation importante de la solubilité est observée pour des pH faibles dans les milieux riches en matière organique (He *et al.*, 2006). Les réactions de complexation sont moins dépendantes des conditions de pH dans les milieux soufrés et riches en matière organique (Flyhammar et Håkansson, 1999).

#### IV.3.4. Impacts du mode de gestion sur la composition du lixiviat

L'évolution théorique de la composition des lixiviat se trouve modifiée dès la mise en place de prétraitements ou d'une gestion en mode bioréacteur. Ainsi, elle dépend à la fois du mode de gestion et de la durée d'enfouissement (Kulikowska et Klimiuk, 2008). Les vitesses de dégradation varient selon le type de déchet et les caractéristiques du centre de stockage.

La recirculation du lixiviat permet ainsi d'atteindre plus rapidement un état stabilisé du système notamment grâce à une très nette diminution de la durée des premières phases de dégradation (François *et al.*, 2007). Le pouvoir tampon des lixiviats recirculés peut permettre d'atteindre des gammes de pH favorables au développement des bactéries méthanogènes (Şan et Onay, 2001). Au cours des premières années de recirculation, la charge organique du lixiviat est plus forte que celle d'un lixiviat issu d'un centre de stockage conventionnel. Par la suite, elle est rapidement réduite (Reinhart *et al.*, 2002), atteignant un niveau similaire à celui d'une gestion conventionnelle à l'exception de certaines espèces conservatives comme les chlorures ou les ions ammonium qui tendent à être plus fortement présents (François *et al.*, 2007). Le relargage des métaux est beaucoup plus dépendant des phases de dégradation lors d'une gestion en mode bioréacteur du fait des variations de pH engendrées par la recirculation du lixiviat. Le lixiviat produit au cours de la phase acidogène présente donc une plus forte teneur en éléments métalliques (Berthe, 2006). Dans le cas d'un déchet frais, l'injection de lixiviat peut également créer un lessivage défavorable à une inhibition de la méthanogenèse liée à la présence en quantité trop importante d'acides gras volatils ou à une accumulation d'azote ammoniacal (Price *et al.*, 2003; Vigneron *et al.*, 2007).

L'application d'un prétraitement mécanique et biologique avant enfouissement met en avant une réduction de la charge polluante du lixiviat produit lors de l'enfouissement du fait de la stabilisation aérobie préalable des déchets (Soyez et Plickert, 2002 ; Berthe *et al.*, 2008). Cette réduction de la charge organique est liée à l'absence des phases préliminaires de dégradation notamment la phase dite d'acidogenèse (Leikam et Stegmann, 1999) ; phase caractérisée par un lixiviat acide et très chargé en matière organique. La cinétique de dégradation des composés organiques facilement biodégradables est accélérée lors des premières phases par rapport à un enfouissement conventionnel (Berthe *et al.*, 2008). Les lixiviats produits ont donc des caractéristiques comparables à celles de lixiviats plus âgés ou résultant d'une phase méthanogène. Le prétraitement a permis un lessivage important de la pollution carbonée facilement biodégradable. Les teneurs en DCO et en NTK peuvent être respectivement 25 et 5 fois plus faibles que dans le cas de déchets non traités (Robinson *et al.*, 2005). Ces auteurs soulignent tout de même que des composés organiques difficilement biodégradables (acides fulviques et humiques) sont relargués sur le long terme. Au niveau de la charge métallique, une perte importante de métaux a lieu lors de l'étape mécanique (Münnich *et al.*, 2006) mais également lors de la stabilisation biologique (Bolea *et al.*, 2006).

Le co-enfouissement de mâchefers avec les déchets ménagers crée également d'importants changements notamment au niveau de la cinétique de dégradation et de la composition du lixiviat en éléments métalliques. Ainsi, l'alcalinité des mâchefers liée à leur pH basique (12-13) contrebalance l'acidité générée lors des premières phases de dégradation accélérant ainsi la totalité du processus de dégradation (Johnson et Furrer, 2002 ; Lo *et al.*, 2009 ; Wang *et al.*, 2009). Cet effet tampon peut s'avérer indispensable lorsqu'une trop grande quantité d'acides organiques est produite et inhibe le système. L'état de stabilisation du massif de déchet, représenté par la diminution du ratio DBO<sub>5</sub>/DCO, est également plus rapide (Cossu *et al.*, 2003). La co-digestion de déchets ménagers avec des boues de STEP provoque également cette diminution de la

biodégradabilité (ratio DBO<sub>5</sub>/DCO) du lixiviat (Agdag et Sponza, 2007). En outre, certains auteurs notent à long terme une augmentation de la teneur en éléments métalliques dans le lixiviat du fait de l'ajout de mâchefers ou de cendres (Lo, 2005 ; Inanc *et al.*, 2007). Cette forte teneur en métaux peut inhiber la digestion anaérobie des substances organiques (Chen *et al.*, 2008 ; Altas, 2009). Le relargage des métaux dans le lixiviat est lié à la complexation des métaux initialement présents avec des ligands organiques et inorganiques solubles comme la cellulose, l'hémicellulose ou la lignine (Backer et Peiffer, 1997 ; Wu *et al.*, 2001).

L'ensemble des résultats observés au niveau des impacts des prétraitements sur la composition du lixiviat sont souvent corrélables aux variations de quantité et de composition du biogaz produit.

*Malgré sa grande variabilité de composition, le lixiviat reste un fluide de choix pour suivre l'avancement de la dégradation des déchets enfouis. L'état de dégradation du déchet peut en effet être mis en évidence par une caractérisation chimique du lixiviat produit. Ainsi, l'étude du devenir à long terme de la matière organique permet d'évaluer l'état de stabilité dans lequel le système se trouve. En outre, la compréhension des mécanismes liés à l'humification de la matière est essentielle afin d'appréhender les risques potentiels de remobilisation de polluants piégés au sein du massif de déchets. L'impact de la mise en place d'un prétraitement du déchet avant enfouissement ou de la gestion non conventionnelle type bioréacteur du centre de stockage est également perceptible au travers de la composition du lixiviat produit.*

## **V. Evaluation de l'impact d'un prétraitement**

Lorsqu'il s'agit d'ordures ménagères, l'hétérogénéité du déchet ainsi que son importante diversité de granulométrie rendent difficile les études en conditions simulées de stockage. La taille des installations expérimentales, c'est à dire la quantité de déchet, devient le principal garant de la représentativité des résultats. A titre d'exemple, la procédure de caractérisation des déchets MODECOM nécessite de trier au moins 500 kg de déchet pour avoir une vision représentative de sa composition.

L'impact des modalités de prétraitement sur la stabilisation des déchets enfouis en centre de stockage est étudié par de nombreux auteurs par le biais de suivis à l'échelle du laboratoire (batch, pilote) mais également sur sites. Toutefois, la grande majorité des essais sont réalisés à l'échelle du laboratoire car la mise en œuvre importante, difficile et coûteuse d'une étude sur site limite le nombre d'expérimentations à grande échelle.

### **V.1. Essais en batch sur solide**

L'étude des modalités de prétraitement des déchets s'effectue généralement à petite échelle (en batch) dans un premier temps. En effet, cette échelle présente l'avantage d'être simple à mettre en œuvre et reste relativement peu coûteuse. Les essais en batch comprennent des tests de biodégradabilité (test respirométrique, test BMP...) et des tests de lixiviation.

#### **V.1.1. Tests de biodégradabilité du déchet**

L'estimation de la biodégradabilité permet entre autre d'appréhender l'état de dégradation des déchets (Adani *et al.*, 2004 ; Tremmier *et al.*, 2005). En effet, la biodégradabilité diminue avec l'état de dégradation dans la mesure où la matière organique biodégradable est progressivement assimilée par les micro-organismes lors de la dégradation. Les tests de biodégradabilité peuvent également être utilisés afin d'évaluer l'efficacité d'un procédé de prétraitement (Gomez *et al.*, 2006). Le test appliqué doit être relativement simple afin de permettre l'optimisation rapide du procédé.

La biodégradabilité est généralement estimée grâce à la capacité du déchet à générer du biogaz, déterminée de manière purement théorique ou expérimentale. Une approche stœchiométrique, basée sur la composition brute des déchets, est utilisée afin de quantifier de manière théorique la production de biogaz d'un déchet. Cette approche suppose une décomposition totale des constituants (bien loin de la réalité) donnant lieu à une surestimation par rapport à la mesure expérimentale de la biodégradabilité. Cette méthode n'est donc que très rarement employée contrairement aux techniques appliquées en laboratoire. En effet, les tests en laboratoire réalisés dans des conditions optimales donnent des résultats plus représentatifs quant au potentiel de production de biogaz c'est-à-dire sur la biodégradabilité de la matrice.

Ainsi, l'évaluation du potentiel de biodégradabilité d'un déchet peut s'effectuer en conditions aérobies (consommation d'O<sub>2</sub> et production de CO<sub>2</sub>) ou en conditions anaérobies (production de biogaz méthanogène). Les tests anaérobies ont été développés afin de déterminer le potentiel de production de biogaz des déchets et d'évaluer leur comportement, leur réactivité et leur stabilité dans des conditions similaires à celles de l'enfouissement (Wagland *et al.*, 2009). Même si les conditions d'application sont plus éloignées des conditions réelles, certains auteurs préfèrent appliquer des tests aérobies car ils nécessitent des durées d'incubations plus courtes.

Une multitude de méthodes ont émergé ces dernières années du fait de l'intérêt croissant pour les études de biodégradabilité notamment des matrices organiques. Ces méthodes sont adaptées aux besoins pratiques des études dans lesquelles elles s'intègrent ; chaque test a été développé dans un but précis. En outre, la majorité de ces tests a été initialement mis en place pour les composts. Les différentes méthodes varient donc selon le type d'échantillon et la quantité utilisée, la durée des essais mais également selon les conditions opératoire (humidité, inoculum, techniques analytiques...). De manière générale, ces tests s'effectuent directement sur un échantillon solide ou sur un échantillon immergé dans un liquide, en milieu aérobie ou anaérobie. Les principaux tests mentionnés dans la littérature sont repris dans le Tableau XIV (Wagland *et al.*, 2009).

Les tests de biodégradabilité **anaérobie** consistent à mettre en contact une masse de déchet broyée avec un inoculum de bactéries anaérobies dans un réacteur de température contrôlée où est injectée une solution contenant des nutriments et assurant une humidité suffisante pour le développement des micro-organismes. Les conditions opératoires de type anaérobie sont proches de celles d'un centre de stockage. Le suivi de la quantité et de la composition du biogaz produit est réalisé jusqu'à stabilisation de la production de biogaz (1 - 2 mois) afin d'évaluer la biodégradabilité ultime.

Le test BMP (Biochemical Methanogene Potential) est le plus couramment utilisé et le plus fréquemment cité dans la littérature (Bogner, 1990 ; Gachet, 2005 ; Angelidaki *et al.*, 2009 ; Bayard *et al.*, 2010). Le potentiel méthanogène d'un déchet ménager est généralement compris entre 77 et 107 LCH<sub>4</sub>/kgMS (Barlaz *et al.*, 1990). Pour un déchet similaire, des valeurs de 95 LCH<sub>4</sub>/kgMS (Lanini *et al.*, 2001) et 170 LCH<sub>4</sub>/kgMS (François *et al.*, 2006) sont également mentionnées dans la littérature. En outre, le potentiel méthanogène décroît exponentiellement avec l'âge du déchet (Kelly, 2002). D'autres types de tests de biodégradabilité anaérobie sont décrits dans la littérature (Hansen *et al.*, 2004 ; Kelly *et al.*, 2006 ; Zhang *et al.*, 2007).

Tableau XIV : Principaux tests de biodégradabilité d'un déchet.

Type de test		Objectifs	Durée	Références
ANAEROBIE	Potentiel bio-méthanogène	BMP	Evaluation de la biodégradabilité ultime	fin production CH <sub>4</sub> Angelidaki <i>et al.</i> , 2009 Bayard <i>et al.</i> , 2010
	Test d'incubation	GS <sub>90</sub>		90 jours Binner et Zach, 1999
	Test de fermentation	GB <sub>21</sub> GB <sub>28</sub>		21 jours 28 jours Cossu et Raga, 2008 Wagland <i>et al.</i> , 2009
	Test d'incubation	BM <sub>100</sub>		100 jours Ponsá <i>et al.</i> , 2008
AEROBIE	Activité respiratoire	AT <sub>4</sub> AT <sub>7</sub>	Evaluation de l'activité aérobie	4 jours 7 jours Binner et Zach, 1999
		DR4		4 jours Wagland <i>et al.</i> , 2009
	Spefific Oxygen Uptake Rate	SOUR	Détermination du taux de consommation en oxygène	5 - 6 heures Vorkamp <i>et al.</i> , 2001 Scaglia <i>et al.</i> , 2007
	Dynamic Respiration Index	DRI	Détermination d'un indice de biodégradation	24 heures Adani <i>et al.</i> , 2004
	Static Respiration Index	SRI		24 heures Bertanza <i>et al.</i> , 2001
	Respiration Index	RI <sub>T</sub> RI <sub>37</sub>		4h + 90min 18h + 90min Gómez <i>et al.</i> , 2005
	Test commercial Solvita®			Evaluation de la maturité

La biodégradabilité peut également être estimée à l'aide de tests **aérobies** de type dynamique ou statique. Dans le cas des méthodes dynamiques, l'échantillon est aéré tout au long du test de manière à minimiser les problèmes liés aux limites de diffusion de l'oxygène (Gomez *et al.*, 2006) contrairement aux méthodes statiques où les échantillons ne sont pas aérés. Le transfert d'oxygène étant souvent considéré comme un facteur limitant dans un système biologique les méthodes statiques présentent donc un inconvénient majeur. Les différents tests sont basés sur la mesure de la consommation d'O<sub>2</sub> ou de la production de CO<sub>2</sub> grâce à une instrumentation spécifique. Malgré les avantages et les inconvénients de ces deux techniques, la mesure d'O<sub>2</sub> est souvent favorisée car l'oxygène est directement responsable de l'oxydation de la matière organique (Gómez *et al.*, 2005) même si les mesures de CO<sub>2</sub> sont décrites comme peu coûteuses (Adani *et al.*, 2001) et moins sophistiquées (Gómez *et al.*, 2005).

Le test respirométrique AT4 est le plus employé. Il consiste à évaluer la consommation d'O<sub>2</sub> par les micro-organismes en conditions aérobies pendant 4 jours (Binner et Zach, 1999). Un déchet brut donne des valeurs d'AT4 comprises entre 30 et 50 mgO<sub>2</sub>/L tandis que pour un déchet pré-traité de façon mécanique et biologique, ces valeurs sont inférieures à 5 mgO<sub>2</sub>/L (Soyez et Plickert, 2002).

En outre, la valeur de l'AT4 diminue avec la durée du prétraitement mécanique et biologique passant de 83 mgO<sub>2</sub>/gMS pour un déchet ménager à 29 mgO<sub>2</sub>/gMS et 16 mgO<sub>2</sub>/gMS pour un déchet prétraité pendant respectivement 12 et 25 semaines (Berthe *et al.*, 2008). Même s'il n'est pas encore très employé en France, ce test est couramment utilisé en Allemagne car il fait partie des critères d'admissibilité des déchets ayant subi un prétraitement mécanique et biologique. Toutefois, de part leur facilité de mise en œuvre, ce type de test est de plus en plus employé car les résultats obtenus en seulement 4 jours sont relativement précis et comparables. En outre, les valeurs d'AT4 sont corrélables à la teneur en carbone organique total du lixiviat correspondant au déchet.

Outre les méthodes respirométriques, les tests d'auto-échauffement permettent d'évaluer l'activité biologique d'une matrice solide (Koenig et Bari, 2000 ; Leifeld *et al.*, 2001) mais également sa maturité (Weppen, 2002). Ils consistent à mesurer la chaleur produite par l'échantillon dans des conditions aérobies plutôt que les gaz consommés ou produits.

*La mise en place de test de biodégradabilité s'avère donc être une opportunité intéressante afin d'évaluer et de quantifier le potentiel d'une matrice solide prétraitée en terme de prédisposition à la dégradation et à la production de biogaz (Barrena *et al.*, 2009) mais également en terme de stabilisation. Cependant, une grande variabilité dans les résultats obtenus est observée selon les différents auteurs en fonction de la nature et des quantités de déchets utilisés ou du type d'inoculum. Ces tests sont donc souvent répétés pour avoir une valeur représentative. En outre, la multitude de méthodes actuellement utilisées ainsi que leurs limites induisent la mise en place de test de biodégradabilité utilisable sur toute sorte de matrice solide afin de faciliter la comparaison des données.*

### V.1.2. Test de Lixiviation du déchet

La caractérisation de l'état de dégradation d'un déchet peut également s'effectuer par le biais d'un test de lixiviation (TL) dont le principal objectif est d'estimer les capacités de relargage d'une matrice donnée. Ce type de test permet notamment de connaître le type et la quantité totale de charge polluante susceptible d'être relarguée en un temps donné. En effet, la lixiviation correspond à une extraction liquide/solide d'un déchet par une solution aqueuse. La quantité de matière lessivable représente donc la fraction soluble des déchets susceptible d'être entraînée par les eaux en contact avec le déchet. L'impact de cette lixiviation s'effectue par le biais d'analyses sur la phase liquide obtenue ou sur le solide recueilli.

Différents tests de lixiviation dont les conditions opératoires sont supposées reproduire les phénomènes se produisant sur site ont été développés à l'échelle du laboratoire (Kosson *et al.*, 2002). Les caractéristiques de ces principaux tests sont présentées dans le Tableau XV.

Tableau XV : Caractéristiques des différents types de test de lixiviation (François, 2004).

Type de test	Caractéristiques
Tests à l'équilibre	<ul style="list-style-type: none"> <li>- système agité</li> <li>- solubilisation importante des particules</li> </ul>
Tests dynamique	<ul style="list-style-type: none"> <li>- matrice mise en suspension</li> <li>- plusieurs extractions successives</li> </ul>
Tests statique	<ul style="list-style-type: none"> <li>- sur bloc massif granulaire compacté</li> <li>- transferts par diffusion et mouvement brownien</li> </ul>
Tests en colonnes	<ul style="list-style-type: none"> <li>- liquide percole à travers un massif de déchets</li> <li>- transferts principalement convectifs et dispersifs</li> </ul>

Le choix de la méthode de lixiviation dépend essentiellement de l'objectif visé, du degré et du type d'informations requises. Les tests de lixiviation par extraction (en batch) sont plus optimisés, répétables et rapides à mettre en place que les tests en colonne qui sont toutefois plus représentatifs des conditions réelles d'un centre de stockage (Lewin, 1996). En effet, la prédiction du relargage de polluants d'un déchet est plus représentative du cas réel lorsqu'il est estimé sur colonnes ; les conditions recréées de percolation sont plus proches du site (Mahmoudkhani *et al.*, 2008). Plusieurs études mentionnent toutefois l'utilisation de tests en batch afin de déterminer la quantité de polluants, notamment de type inorganiques, susceptibles d'être lessivés à partir d'un déchet stabilisé (Belevi et Baccini, 1989 ; Kalbe *et al.*, 2008). En outre, même si les tests de percolation génèrent généralement des informations plus identifiables aux conditions réelles, les tests en batch représentent une alternative relativement moins coûteuse que les essais en colonne (Hage et Mulder, 2004).

En France, la lixiviation des déchets est régie par le protocole normalisé EN 12457/1-4 constitué de 4 modes opératoires différents basés sur différents ratios liquide/solide et différentes granulométries de déchets (Hage et Mulder, 2004). Cette procédure pourtant couramment utilisé pour les déchets ménagers a souvent été critiquée quant à sa fiabilité et sa capacité à reproduire les conditions in-situ. En effet, elle a été développée pour étudier les constituants inorganiques des déchets et ne prend pas en compte les caractéristiques particulières des constituants organiques ni les conséquences de l'évolution microbiologique des déchets organiques dégradables (Brunori *et al.*, 2001 ; François, 2004).

De nombreux facteurs spécifiques liés au protocole, aux polluants et aux conditions du milieu peuvent influencer les résultats en terme de quantité de polluant et type de molécules relarguées (Heasman, 1997). Les principaux paramètres pouvant influencer sur la lixiviation ainsi que leurs impacts sont regroupés dans le Tableau XVI.

Le relargage des polluants au cours du test de lixiviation peut donc être lié à des paramètres différents mais interdépendants tels que la nature du solvant utilisé, le rapport liquide/solide, les conditions du milieu (température, pH, potentiel redox), la durée de lixiviation et le type d'agitation (Fällman et Aurell, 1996). Des paramètres physiques plus spécifiques au déchet (homogénéité, taille des particules, porosité, perméabilité...) peuvent également influencer l'extraction des polluants en condition de lixiviation (Kalbe *et al.*, 2008).

Tableau XVI : Paramètres influençant le relargage de polluants en conditions de lixiviation.

Paramètres	Valeurs relevées	Impact sur la lixiviation
granulométrie du déchet	- < 4 mm - < 10 mm - < 20 mm	surface d'échange
nature de la solution d'élution	- eau (deminéralisée ou ultra pure) - solution acide tamponnée - solution organique	type de polluants extraits
rapport liquide/solide (L/S)	- 1/1 - 10/1 - lixiviations successives	quantité de polluants extraits
pH	neutre ( $\approx 7$ )	type de polluants extraits
durée de lixiviation	2 minutes à 48 heures	quantité de polluants extraits
agitation	30 à 250 tours/minutes	homogénéisation du système
température	20°C	échanges liquide / solide

La nature de la solution d'élution est un paramètre clé de la lixiviation. En effet, la quantité de charge polluante relargable par un déchet est fonction de la composition de la phase liquide en contact avec celui-ci (François, 2004). L'utilisation d'une solution acide tamponnée permet d'extraire certaines fractions de polluants solubilisables en milieu acide comme les métaux alors qu'une solution de type organique solubilise des polluants plus hydrophobes. L'eau distillée est la solution la plus couramment utilisée car l'analyse en est simplifiée par la suite. Dans une alvéole, seuls les déchets de surface sont en contact avec de l'eau d'infiltration, les déchets des couches inférieures ne seront en contact qu'avec une eau déjà chargée et ceci jusqu'à ce que les couches supérieures soient totalement lessivées. L'utilisation d'eau favorise tout de même l'échange de polluants vers la phase liquide ; les composés extraits correspondent alors à la fraction hydrosoluble.

Le rapport liquide / solide (L/S) influe quant à lui la quantité de polluants extraits du fait de la possible saturation de la solution avec un rapport trop faible. De l'ordre de 10/1, il permet d'extraire le maximum de composés. Les faibles rapports sont toutefois utilisés de manière à concentrer les composés extraits notamment dans le cadre d'étude portant sur la toxicité. Des lixiviations successives avec renouvellement des solutions peuvent également être réalisées et donnent accès à la capacité maximale de relargage.

Quelque soit la nature de la solution d'élution et le rapport L/S appliqué, la quantité de composés extraits est conditionnée par la durée de lixiviation qui est généralement fixée à 24 heures pour les déchets ménagers (EN 12457/1-4). Toutefois, selon plusieurs auteurs, une période de 24 heures est trop courte car elle ne permet pas d'extraire une quantité suffisante et représentative de composés initialement présents dans les déchets (Fällman, 1997 ; Kalbe *et al.*, 2008). La durée de lixiviation doit être suffisamment longue pour permettre à un équilibre chimique de s'établir ; l'influence de la cinétique de la réaction n'est pas correctement appréhendée en seulement 24 heures de contact (Kalbe *et al.*, 2008). En outre, la durée de lixiviation ne doit pas être trop longue pour que les échanges chimiques en liquide et solide ne soient pas influencés par la présence de processus biologiques (Parodi *et al.*, 2009). En effet, les principaux mécanismes mis en jeu au cours de la lixiviation sont de type physico-chimique et dépendent notamment de la disponibilité, de

l'extractibilité de la mobilité des composants du déchet. Ces différents mécanismes dépendant des conditions de lixiviation.

D'autres facteurs plus spécifiques à la chimie du milieu tels que le pH ou les conditions d'oxydoréduction vont influencer les mécanismes mis en jeu au cours de la lixiviation (complexation avec des composés inorganiques et organiques, processus de précipitation ou de sorption...) et donc le relargage des polluants (Kalbe *et al.*, 2008). Ces facteurs sont imposés par le type de solide ou par la nature de la solution de lixiviation ; plus le rapport liquide/solide est élevé et plus le pH est dépendant de celui de la solution utilisée et inversement. A titre d'exemple, la solubilisation par complexation des espèces métalliques avec des composés minéraux ou organiques présents dans la solution dépendra des conditions du pH du milieu ; un pH faible entraîne leur remobilisation alors qu'un pH fort peut les faire reprécipiter (Lagier *et al.*, 2001).

Les échanges entre liquide et solide sont également facilités par une température élevée et une agitation suffisante à l'homogénéisation du système. La température est toutefois rarement prise en compte dans les protocoles de lixiviation. De plus, en conditions aérobies, l'agitation du milieu permet de garantir une répartition homogène de l'oxygène dans le milieu.

*Le nombre important de facteurs influençant la lixiviation ainsi que la diversification des protocoles de lixiviation suscite des difficultés dans l'interprétation et la comparaison des résultats (Mahmoudkhani et al., 2008). Ainsi, malgré l'utilisation fréquente des tests de lixiviation en laboratoire, la transposition des résultats obtenus à la réalité du site reste difficile compte tenu de leurs conditions opératoires. En effet, les tests en batch sont réalisés dans des conditions optimales qui ne reproduisent pas les conditions du site et ne tiennent pas compte des processus biologiques sur le relargage des polluants (Kylefors et al., 2003). Une harmonisation des protocoles de lixiviation voire même la mise en place d'un test de référence permettrait de s'affranchir de ces problèmes (Quevauviller et al., 1996 ; Esser et al., 2001). Les tests à considérer doivent donc être un compromis entre simulation de la réalité d'une part et simplicité et répétabilité d'autre part (Hage et Mulder, 2004).*

*Les tests de biodégradabilité et les tests de lixiviation sont généralement utilisés de façon distincte ; rares sont les études qui mentionnent un couplage entre ces différentes techniques. Les informations qu'ils apportent s'avèrent toutefois complémentaires et il pourrait être pertinent d'associer ces techniques afin de caractériser au mieux la matrice déchet au vue de sa capacité à remobiliser des espèces indicatrices et de sa capacité à produire du biogaz. Cependant, compte tenue des conditions opératoires de ces différents tests notamment au niveau de la quantité de déchets utilisée, un problème de représentativité peut être soulevé quant aux résultats obtenus. Les tests à l'échelle du laboratoire sont donc plus souvent appliqués de manière à cibler les effets avant de passer à une échelle plus importante (pilote ou site).*

## V.2. Essais pilotes

Les essais en pilotes ou encore essais en colonne sont basés sur le même principe que les tests de percolation. Ils sont utilisés dans le but de simuler les mécanismes bio-physicochimiques impliqués dans la dégradation des déchets en conditions de stockage (Otieno, 1994 ; Youcai *et al.*, 2002). Ainsi, ils permettent d'expliquer les phénomènes entrant en jeu dans la dégradation et d'identifier les facteurs l'influencent (Kylefors *et al.*, 2003). En effet, ces essais permettent de faire varier différents paramètres pouvant influencer la dégradation et qui sont généralement difficilement maîtrisables sur site tels que la composition du déchet, l'inoculation des déchets, l'humidité, la température ou encore la teneur en oxygène. Les études en pilotes peuvent être utilisées afin de

déterminer l'impact des modalités de prétraitement sur la dégradation des déchets vis-à-vis de la production de biogaz et de la stabilisation des déchets.

Les dispositifs utilisés (colonnes, pilotes, lysimètres, casiers...) sont de taille variable et contiennent de quelques kilogrammes à plusieurs tonnes de déchets. Le Tableau XVII fait une synthèse du type de dispositifs mentionnés dans la littérature.

Tableau XVII : Essais pilotes mentionnés dans la littérature.

Objectifs	Nature du déchet	Conditions opératoires	Références
Impact de la recirculation du lixiviat	Déchet ménager 13 kg 90 % fermentescibles Broyé et compacté	Colonne PVC Ø : 35 cm H : 1 m	Šan et Onay, 2001
Impact du broyage	Déchet de collectivité broyé < 1 cm	Colonne acier inoxydable Ø : 10 cm H : 30 cm	Sponza et Agdag, 2005
Impact de la recirculation du lixiviat	Déchet ménager broyé ≈ 1cm	Colonne verre / plexiglas Ø : 0,2 m / 0,3 m H : 1 m / 3 m	Wang et al., 2006
Impact de la recirculation du lixiviat	Déchet ménager Broyé et compacté 4-5 cm	Colonne PVC Ø : 0,38 m H : 1,5 m	François <i>et al.</i> , 2007
Impact ajout mâchefers	Déchet ménager broyé < 10 cm Mâchefers (55 %)	forme pyramidale en bas : 7,5 m × 7,5 m en haut : 17 m x 17 m	Inanc <i>et al.</i> , 2007
Impact de 2 modes de gestion (PTMB et bioréacteur)	Déchets ménagers humides 11 T	Colonne acier Ø : 2,25 m H : 4 m	Berthe <i>et al.</i> , 2008
Modélisation de la production de biogaz	Déchet ménager (22 L) Boues de STEP (12 L) Mâchefers (100 g/L)	Colonne Ø : 0,2 m H : 1,2 m	Lo <i>et al.</i> , 2010

De manière générale, ces dispositifs se composent d'un système d'évacuation et de récupération du biogaz, d'un système de collecte du lixiviat, d'un système d'injection d'eau et parfois d'un système de chauffage permettant de maintenir une température optimale de dégradation. Les paramètres de suivi (composition du lixiviat et du biogaz, tassement...) sont toutefois différents d'une étude à l'autre selon l'objectif visé. La majorité des études mentionnées dans la littérature sont réalisés dans des pilotes de forme cylindrique assimilables à des colonnes dont la hauteur varie de 30 cm (Sponza et Agdag, 2005) à 4 m (Berthe *et al.*, 2008). L'échelle du milieu réactionnel est un facteur très important voire limitant pour la représentativité des résultats obtenus en terme de cinétique de biodégradation par rapport à un site réel. Les résultats obtenus à ces échelles mettent en évidence des évolutions similaires à celles obtenues sur site avec cependant une accélération des phénomènes observés (Youcai *et al.*, 2002) ; plus l'échelle est petite et plus les cinétiques de dégradation sont importantes. En outre, compte tenu de la configuration des colonnes, les phénomènes de chemins préférentiels sont minimisés par rapport à ce qui se passe sur site. Ainsi, l'utilisation de pilotes pour simuler l'évolution des déchets à l'échelle du site nécessite une infrastructure suffisamment grande et une quantité de déchet de minimum quelques centaines de kilogrammes (Youcai *et al.*, 2002).

L'utilisation de pilotes de taille plus petite pose le problème du transfert d'échelle qu'il est difficile d'évaluer et pour lequel la littérature ne fait pas état d'un grand nombre de données.

La taille semi industrielle permet de limiter ces problèmes de représentativité et ainsi de pouvoir optimiser les modes de gestion pour des essais à des dimensions beaucoup plus importantes.

Les essais pilotes même de type semi-industriel ne reproduisent cependant pas suffisamment bien la complexité du massif de déchet du fait des masses de déchets utilisées encore relativement faibles pour prendre en compte l'hétérogénéité des déchets enfouis. De même, les conditions climatiques dont l'impact notamment sur la température et les infiltrations d'eau ne sont pas ou peu prises en compte lors des essais pilotes (Tränkler *et al.*, 2005). De plus, ces conditions sont propres à chaque site voire même à chaque casier. La négligence de certaines de ces conditions lors d'étude pilote peut engendrer des interpolations erronées sur site. En effet, l'effet d'un paramètre observé en pilote peut ne pas être observé sur site s'il est neutralisé ou masqué par l'influence d'autres paramètres. Les résultats obtenus grâce aux études pilotes demandent donc à être validés et confirmés par le biais d'essais sur site. En effet, la dégradation des déchets sur site se fait dans des conditions beaucoup moins optimisées et maîtrisées que dans le cas des études pilotes (Kylefors *et al.*, 2003).

### V.3. Essais sur site

L'évaluation de l'impact d'une modalité de prétraitement sur site est encore peu pratiquée en raison du cout engendré par de tels projets ainsi que de l'importance du facteur temps. En effet, du fait de la taille de l'installation, les résultats d'une étude sur site sont beaucoup plus longs à obtenir. Certains prétraitements comme les prétraitements mécaniques et biologiques sont néanmoins plus souvent étudiés sur site de part la facilité de leur mise en place.

De manière générale, les projets réalisés à grande échelle permettent d'une part d'évaluer la faisabilité d'un prétraitement et d'autre part d'identifier les bénéfices apportés par le mode de gestion testé. La mise en évidence de problèmes liés à la gestion et à la conception des sites est également un point important d'une étude sur site. Les conditions de fonctionnement peuvent donc être optimisées notamment au niveau du dimensionnement des structures (système de captage du biogaz et du lixiviat). Les différents projets, achevés ou actuellement en cours, peuvent servir de référence pour les futurs projets. Cependant, la comparaison des différentes études reste difficile étant donné les différences de géométrie des sites, de nature des déchets enfouis et de modes de gestion (bioréacteur...). En outre, toutes les études réalisées ne se focalisent pas sur les mêmes paramètres caractéristiques de l'évolution et de la stabilisation des déchets en centre de stockage ; chaque projet se focalise sur un paramètre donné. Toutefois, la composition des lixiviats est considérée dans de nombreuses études comme un indicateur pertinent de la dégradation des déchets (Reinhart et Al-Yousfi, 1996).

Ces difficultés liées à la comparaison des études sur site entre elles relancent l'intérêt relatif aux essais pilotes qui sont généralement soumis à une plus grande rigueur dans la caractérisation et le contrôle des différents paramètres clés (composition du déchet, humidité initiale, composition des lixiviats et du biogaz...). La mise en place sur site, dernier maillon dans l'étude de l'impact d'un prétraitement, bien que techniquement lourde, présente toutefois l'avantage de représenter la faisabilité industrielle d'un procédé.

*Les études réalisées sur site, en pilote ou en batch sont donc complémentaires. Le facteur limitant de ce type d'étude étant toutefois lié au transfert des phénomènes observés en laboratoire où les conditions sont fortement contrôlées à l'échelle d'un site où les conditions climatiques influent. La difficulté du transfert d'échelle réside dans l'antagonisme qui existe entre la représentativité des phénomènes, qui croît avec la taille des expérimentations, et leur observabilité spatiale et temporelle, qui diminue lorsque la taille du système est importante. En outre, les différentes études ne sont exploitables et comparables que si elles sont accompagnées de données contextuelles liées à la matrice et aux conditions opératoires (Parker *et al.*, 2003). La composition, l'âge et les données physiques (température, humidité, densité...) du déchet ainsi qu'une description des procédés et*

*conditions expérimentales est indispensable. L'impact d'une modalité de prétraitement s'effectue grâce à une caractérisation bio-physico-chimique du déchet puis par le suivi approfondi du lixiviat généré et du biogaz produit.*

#### V.4. Caractérisation des déchets et des lixiviats

Pour prévoir, suivre et améliorer la gestion des centres de stockage, il est indispensable de connaître ses principaux acteurs. La matière organique est un constituant majeur des déchets ménagers dont l'évolution au sein du massif de déchet traduit le fonctionnement du centre de stockage. Ainsi, la composition de cette matière organique joue un rôle déterminant dans les réactions de biodégradation. Cette partie est donc consacrée aux différentes voies de caractérisation des déchets et des lixiviats notamment par le biais de la matière organique qu'ils contiennent.

##### V.4.1. Caractérisation physicochimique des déchets

La caractérisation du déchet est indispensable en amont de tout procédé de traitement afin d'optimiser au mieux le type de traitement à appliquer et permet également d'évaluer l'incidence des prétraitements mis en œuvre pour stabiliser le déchet.

Les méthodes de caractérisation des déchets sont très vastes selon les auteurs consultés. En effet, il n'y a pas de méthode de référence préconisée et la plupart des méthodes appliquées au déchet sont issues de celles mises en place pour le compost. D'une manière générale, cette caractérisation s'effectue en utilisant plusieurs méthodes complémentaires de type physicochimique. Le Tableau XVIII liste les techniques principalement employées.

Avant toute caractérisation du déchet, la mise en place d'une procédure d'échantillonnage garantissant l'obtention d'un échantillon représentatif est indispensable. L'hétérogénéité et la variabilité de composition de la matrice déchet mais également leur instabilité (évolution de leurs propriétés physico-chimiques au cours du temps) sont les principales difficultés dans la réalisation d'un échantillon représentatif. Ainsi, ces dernières années, des techniques spécifiques d'échantillonnage se sont développées comme la procédure MODECOM (1993) ou la norme AFNOR XP X30-411.

La caractérisation physique (composition, granulométrie, répartition...), l'hétérogénéité du déchet ainsi que le manque d'harmonisation dans le type de protocoles appliqués ne permettent pas de mettre en avant la pertinence d'indicateurs pour la dégradation des déchets. Elles sont souvent considérées comme moins pertinentes dans le suivi de la dégradation des déchets du fait de leur manque de fiabilité (François *et al.*, 2006). La connaissance de la composition physique initiale des déchets constitue toutefois un facteur déterminant dans la compréhension des caractéristiques chimiques des déchets enfouis ; les teneurs en certains composés sont directement dépendantes de la composition du déchet. En outre, lors de la mise en place d'un prétraitement, les variations de propriétés mécaniques des déchets prétraités doivent être prises en considération en vue du stockage ultime.

Tableau XVIII : Techniques de caractérisation physicochimiques du déchet.

<b>Techniques / Paramètres</b>	<b>Objectifs</b>	<b>Références</b>
Analyse élémentaire (C, N, H, O, P, S)	- Estimation de la qualité du déchet	He et al. 2006
Analyse thermique	- Caractérisation de la matière organique	Smidt et Meissl, 2007
Analyse par Infrarouge	- Caractérisation des principaux groupements fonctionnels - Indicateur de dégradation et/ou de stabilité	Castaldi <i>et al.</i> , 2005 Huang <i>et al.</i> , 2006
Composition	- Classement en famille de composés	ADEME, 1993 Morvan, 2000
Densité (test Proctor)	- Evaluation de la réduction de volume	Aragón <i>et al.</i> , 2000
Diffraction rayons X	- Caractérisation de la fraction minéralogique	Chaspoul <i>et al.</i> , 2008
Extraction des acides humiques	- Détermination des indices de stabilité de la MO	Francou <i>et al.</i> , 2008
Extraction séquentielle	- Détermination des formes des éléments trace - Estimation de la biodisponibilité	Huang <i>et al.</i> , 2007 Tessier <i>et al.</i> , 1979
Fraction soluble (FS)	- Détermination de la matière lessivable	AFNOR X 31-210
Fractionnement de Van Soest	- Quantification des composés hydrogénocarbonés (cellulose, lignine et hémicellulose)	Van Soest et Mertens, 1974
Granulométrie	- Séparation en fractions spécifiques (fins, moyens et gros)	ADEME, 1993
Indice lipidique	- Information sur la biodégradation	Ait Baddi <i>et al.</i> , 2004
Matière Organique Oxydable	- Estimation de la matière organique d'origine naturelle	AFNOR XP U44-164

Techniques / Paramètres	Objectifs	Références
Matière Organique (Perte au feu)	- Indications sur la charge organique - Détermination du carbone résiduel	Chiampo <i>et al.</i> , 1996
Matière Sèche	- Mesure de l'humidité	Pichler et Kögel-Knabner, 2000
Matière Soluble	- Détermination de la matière entraînée par l'eau	Kosson <i>et al.</i> , 2002
Méthode de Wakley-Black	- Détermination de la matière organique	Walkley et Black, 1934
Microscopie électronique	- Etude de la morphologie des phases minérales	Huang <i>et al.</i> , 2007
Paramètres agronomiques (COT, NTK, rapport C/N...)	- Evaluation de la maturité - Détermination des caractéristiques intrinsèques du déchet	François <i>et al.</i> , 2006
Py – CG / MS	- Informations sur les origines et la formation de la MO - Identification au niveau structural	Chen, 2003 Dignac <i>et al.</i> , 2005 Piccolo <i>et al.</i> , 2002
Rapport lignine / (cellulose + hémicellulose)	- Indication sur l'état de décomposition	Peres <i>et al.</i> , 1992
Résonance magnétique nucléaire (RMN)	- Informations sur la structure, les propriétés chimiques et fonctionnelles des molécules	Conte <i>et al.</i> , 2004 Kögel-Knabner, 2002
Spectroscopie Infra-Rouge	- Caractérise les principaux groupes fonctionnels de matrices complexes	Chen, 2003 Smidt et Meissl, 2007
Tassement des déchets	- Informations sur la désagrégation de la structure	Warith <i>et al.</i> , 2001
Thermo-Gravimétrie (TG)	- Mise en évidence de pics spécifiques de la matière organique	Fernandes, 2007 Savary, 2008
Test de lixiviation	- Evaluation de la capacité de relargage du déchet	Parodi <i>et al.</i> , 2009

L'analyse de paramètres caractérisant la composition chimique du déchet demeure quant à elle essentielle pour appréhender le type de pollution générée lors du stockage. Les mesures entrant dans la caractérisation chimique du déchet sont réalisées sur un échantillon homogène et représentatif généralement obtenu après séchage et broyage. Cette étape de préparation du déchet avant analyse s'avère d'autant plus importante et difficile à obtenir compte tenu de l'hétérogénéité du déchet et des faibles quantités de déchets souvent requises pour ces analyses. Les analyses portant sur la matière organique doivent fournir des informations sur sa réactivité chimique et biologique ainsi que sur les conditions de sa dégradation et transformation en composés plus stables. Ainsi, la teneur en carbone organique est fonction de l'âge et de l'état de dégradation du déchet (Kelly, 2002). La teneur en composés hydrogénéocarbonés quant à elle est étroitement corrélée à la capacité du déchet à produire du biogaz notamment au cours des dernières étapes de la dégradation (Wang *et al.*, 1994) ; elle peut représenter jusqu'à 91 % du potentiel méthanogène (Barlaz *et al.* 1990).

La caractérisation physicochimique du déchet peut également être reliée aux tests de biodégradabilité réalisés sur cette même matrice. La teneur en matière organique et en solides volatils peut ainsi être corrélée au potentiel méthanogène (Kelly, 2002) tout comme la teneur en cellulose (Stinson et Ham, 1995).

*Les renseignements apportés par la plupart de ces techniques de caractérisation renseignent sur l'état de dégradation du déchet, or cette information n'est pertinente qu'une fois le déchet enfoui, son accès étant alors très difficile. L'accès à l'état de dégradation des déchets doit donc s'effectuer par l'utilisation d'une autre matrice : le lixiviat.*

#### V.4.2. Suivi analytique et caractérisation des lixiviats

Les lixiviats issus de centres de stockage des déchets ultimes sont analysés tout au long de l'exploitation puis sur une durée de 30 ans après fermeture du site. Au cours de la phase d'exploitation, les réglementations européenne (Directive 1999/31/CE du 26 avril 1999) et française (Arrêté ministériel du 9 septembre 1997) imposent une fréquence trimestrielle de suivi de la composition du lixiviat. Les analyses réalisées sur les lixiviats (DCO, COT, DBO<sub>5</sub>, pH, azote total, métaux, etc...) permettent de suivre leurs évolutions et de mettre en place les procédés adaptés à leurs traitements qui dépendent de la nature des lixiviats.

Généralement, les analyses imposées par les différents textes de loi ne sont pas suffisantes afin de caractériser au mieux le lixiviat car elles reposent sur des mesures de paramètres très globaux. Elles permettent simplement d'appréhender l'état de dégradation et non de stabilisation du déchet. En outre, l'arrêt de la production de biogaz ne signifiant pas la stabilisation du massif de déchets, il est donc nécessaire d'utiliser d'autres indicateurs pour accéder à la connaissance de l'état de transformation des espèces au cœur du système.

Des paramètres plus spécifiques tels que l'étude approfondie de la matière organique qui constitue un bon indicateur sont alors nécessaires afin d'avoir de meilleures indications du degré d'évolution du système (François *et al.*, 2006).

La matière organique regroupant un vaste ensemble de composés, il n'existe pas de méthode analytique unique permettant de la définir. Il s'agit d'une matrice particulièrement difficile à étudier et surtout à identifier. Ainsi, selon les auteurs, de nombreuses techniques sont appliquées en fonction de l'objectif recherché. Le Tableau XIX dresse une liste non exhaustive de ces techniques et de l'objectif visé.

Tableau XIX : Méthodes de caractérisation des lixiviats : techniques et objectifs.

Techniques / Paramètres	Objectifs	Références
Absorbance UV	Informe sur la présence de composés organiques aromatiques	Bolea <i>et al.</i> , 2006
Acides Gras Volatils (AGV)	Mise en évidence de composés organiques à faible chaîne	Bhattacharyya <i>et al.</i> , 2008
Alcalinité (TA / TAC)	Détermination du Carbone Inorganique lessivé (hydroxydes, carbonates, et bicarbonates)	Bilgili <i>et al.</i> , 2007
Analyse élémentaire (C, N, H, O, P, S)	Estimation de la qualité du déchet	He <i>et al.</i> , 2006
Carbone Organique Total et Dissous (COT et COD)	Evaluation de la matière organique	Rendek <i>et al.</i> , 2007
Chromatographie à perméation de gel	Etude du poids moléculaire apparent	Seo <i>et al.</i> , 2007
Chromatographie d'Exclusion Stérique Haute Performance (HPSEC)	Détermination des masses moléculaires moyennes (Mn et Mw)	Zhou <i>et al.</i> , 2000 Bolea <i>et al.</i> , 2006
Chromatographie Liquide Haute Performance (HPLC)	- Séparation des différentes classes de matière organique dissoute - Séparation des substances humiques en fonction de leur polarité	Parlanti <i>et al.</i> , 2002
Conductivité	Teneurs en sels dissous (salinité)	Norme NF EN 27888
Demande Biologique en Oxygène (DBO <sub>5</sub> ou DBO <sub>u</sub> )	Estimation de la biodégradabilité (utilisation de la matière organique par les microorganismes)	Agdag et Sponza, 2007
Demande Chimique en Oxygène (DCO)	- Détermination la quantité de matière oxydable - Estimation de la matière organique	Bhattacharyya <i>et al.</i> , 2008
Dosage des fonctions acido-basiques	- Informations sur les capacités complexantes des acides humiques et fulviques - Compréhension et modélisation les interactions avec les métaux	Lo et Liao, 2007
Electrophorèse Capillaire (EC)	Caractérisation des substances humiques	Parlanti <i>et al.</i> , 2002
Fluorescence	- Informations sur la structure moléculaire de la matière organique dissoute et des SH* - Informations sur la réactivité avec les métaux	Goslan <i>et al.</i> , 2004
Fractionnement selon le caractère hydrophobe	Quantification et identification des AH, des AF et du carbone organique hydrophile	Nanny et Ratasuk, 2002 Arickx <i>et al.</i> , 2007

Techniques / Paramètres	Objectifs	Références
Hydrometer method - Granulométrie	Estimation de la taille des particules	Madrid <i>et al.</i> , 2007
Infrarouge à Transformée de Fourier (FTIR)	Etude des groupements fonctionnels de la matière organique	Wei <i>et al.</i> , 2007
pH	Indicateur des phases de l'activité biologique	Norme NF T 90 008
Potentiel Redox (Eh)	Détermine le mécanisme de dégradation	Bilgili <i>et al.</i> , 2007
Pyrolyse CG / MS	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Information sur les origines et la formation de la matière organique.</li> <li>- Identification au niveau structural</li> </ul>	Franke <i>et al.</i> , 2007
Quenching de Fluorescence	Interactions matière organique / polluant	Cao <i>et al.</i> , 2004
Résonance Magnétique Nucléaire (RMN)	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Etude de la matière organique (AH et AF)</li> <li>- Informations qualitatives sur les différents groupements carbonés</li> <li>- Distinction les carbones aromatiques et aliphatiques</li> </ul>	Conte <i>et al.</i> , 2007
Spectrométrie de masse	Caractérisation de la structure chimique des molécules en les fragmentant	Franke <i>et al.</i> , 2007
Spectroscopie d'absorption aux rayons X	<ul style="list-style-type: none"> <li>- Analyse de spéciation</li> <li>- Détermination de la nature des liaisons chimiques</li> </ul>	Mercier <i>et al.</i> , 2002 Li <i>et al.</i> , 2007
Spectroscopie Infra-Rouge	Caractérisation des principaux groupes fonctionnels de matrices complexes	Seo <i>et al.</i> , 2007
Spectroscopie UV- visible (200-800nm)	Identification quantitative des composés organiques.	Wei <i>et al.</i> , 2007
Teneur en cellulose et lignine	Suivi de l'évolution de la part papiers - cartons	Svensson <i>et al.</i> , 2007
Thermochemolyse GC-MS	Composition moléculaire et état de dégradation de la lignine, des Acides Gras et des SH*.	Nanny et Ratasuk, 2002
Thermo-Gravimétrie et Differential (TG) Scanning Calorimetry (DSC)	Mise en évidence de pics spécifiques de la matière organique	Rendek <i>et al.</i> , 2007
Titration potentiométrique	Caractérisation des constantes d'acidité intrinsèques des sites de complexation et de leurs concentrations	Zhou <i>et al.</i> , 2005
Ultrafiltration (UF)	Fractionnement selon le poids moléculaire apparent	Bolea <i>et al.</i> , 2006

Le pH est le paramètre le plus souvent mesuré dans le suivi des lixiviats issus de centre de stockage des déchets ménagers et assimilés. L'exploitation des informations qu'il apporte doit se faire en les corrélant à d'autres paramètres comme la concentration en acides gras volatiles (AGV). En effet, la stabilité du pH résultant d'un équilibre entre plusieurs familles de composés peut masquer certains dysfonctionnements dans le processus de digestion. La teneur en AGV permet de suivre l'état général du digesteur en faisant apparaître de possibles inhibitions. En outre, les différents AGV sont plus ou moins inhibiteurs, la composition détaillée de la teneur en AGV permet donc d'évaluer avec plus de précision quelle étape de dégradation est limitante. L'acide propionique est plus toxique que l'acide acétique ou l'acide butyrique.

Le calcul du rapport AGV/TAC est également un paramètre important à suivre car il informe sur la proportion d'ions de type bicarbonates ou phosphates capables de neutraliser les acides organiques et donc engendrer une réponse erronée du paramètre pH.

Au niveau de la caractérisation de la matière organique, les informations apportées par toutes ces méthodes sont très différentes en restant toutefois très complémentaires. En outre, la majorité de ces techniques demandent un investissement important et restent relativement coûteuses ; une sélection doit donc être effectuée en amont en fonction du type de déchet et de l'objectif visé.

Une attention particulière est portée au fractionnement de la matière organique selon le caractère hydrophobe (Nanny et Ratasuk, 2002 ; Arickx *et al.*, 2007).

De nombreuses études se sont portées sur l'évolution du caractère hydrophobe des molécules organiques au cours de la dégradation des déchets (François, 2004 ; Labanowski, 2004 ; Rodríguez *et al.*, 2004 ; Berthe *et al.*, 2008). L'objectif de ces fractionnements est d'obtenir des groupes de molécules ayant des propriétés physico-chimiques homogènes tout en évitant de modifier la structure et les propriétés des composés organiques. Les protocoles appliqués à la matière organique contenue dans les lixiviats sont similaires à ceux utilisés sur des eaux naturelles (Thurman et Malcolm, 1981 ; Croue *et al.*, 2003). Néanmoins, dès que le milieu est concentré, une plus forte probabilité d'occupation des sites et un phénomène de saturation est à attendre. Il faut donc ajuster le protocole et définir les conditions les plus adaptées à la spécificité du lixiviat (Labanowski, 2004).

Le protocole le plus employé repose sur l'utilisation de résines non ioniques de type XAD et DAX permettant d'extraire, de séparer et de concentrer les différentes fractions de la matière organique. Ainsi, des résines macroporeuses fractionnent les composés organiques sans modifier leurs caractéristiques et permettent la distinction de différentes classes de composés plus ou moins hydrophobes. L'association en série de résines DAX-8 et XAD-4 sépare la matière organique en trois fractions distinctes (Malcolm et MacCarthy, 1992) selon leur affinité avec les résines :

- les substances de type hydrophobe (HPO\*), essentiellement des substances humiques de type fulviques, adsorbées à pH acide sur la résine DAX-8,
- les substances de type transphilique (TPH\*), molécules ayant une polarité intermédiaire entre les molécules hydrophobes et les molécules hydrophiles : cette fraction est retenue sur la résine XAD-4,
- les substances de type hydrophile (HPI\*) non adsorbées sur les résines.

La rétention de la matière organique sur ces résines repose sur un équilibre soluté / résine contrôlé par des phénomènes physiques (forces de Van der Waals). Ce protocole appliqué aux lixiviats a fait l'objet de nombreux travaux (Lagier, 2000 ; Rodríguez *et al.*, 2004 ; Berthe *et al.*, 2008 ; Labanowski et Feuillade, 2009). Il est basé sur la solubilité des composés organiques dans l'eau, elle-même fonction de la polarité et de la masse molaire et a la propriété d'être non destructif.

A l'ensemble de ces paramètres peut être associé un certain nombre de rapports visant à apporter des informations complémentaires au comportement de la matière organique (Tableau XX).

Tableau XX: Rapports caractéristiques de la matière organique.

Rapport	Objectifs	Références
UV 254nm / COD Indice SUVA	Caractéristique de la présence de matière organique aromatique Traduit le caractère hydrophobe des molécules organiques	François <i>et al.</i> , 2006
Rapport DBO <sub>5</sub> / DCO	Mesure la biodégradabilité de la matière organique par rapport à la proportion de carbone organique biodégradable	Millot, 1986 Agdag et Sponza, 2007
Rapport DCO / COT	Indicateur de la dégradation Représente la disponibilité du carbone organique	Lo, 1996
Rapport E4 /E6 (abs 465nm / abs 665nm)	Informations sur l'aromaticité, le PMA et le degré d'humification	Zbytniewski et Buszewski, 2005
Taux d'humification Corg AF /Corg AH	Avancement de la dégradation des déchets	Francou <i>et al.</i> , 2008

L'indice SUVA est, par de nombreux auteurs, préféré au rapport DBO<sub>5</sub>/DCO car plus représentatif de l'état de dégradation des déchets (Berthe, 2006). Sa corrélation avec la production de biogaz au cours du stockage a également été mise en avant (Feuillade *et al.*, 2009). Le rapport DBO<sub>5</sub>/DCO est néanmoins très utilisé même s'il a été démontré qu'il n'est pas toujours fiable.

La toxicité du lixiviat est également un paramètre important à prendre à compte dans le suivi des centres de stockage des déchets ménagers et assimilés. Différents tests ont été mis au point afin d'accéder au caractère écotoxique. Les différents tests existant sont réalisés avec des organismes de divers groupes taxonomiques et trophiques : test bactérien (p. ex. *Vibrio fischeri*), test sur crustacé (p. ex. *Daphnia magna*) ou test algal (p. ex. *Pseudokirchneriella subcapitata*). Ces tests présentant une certaine spécificité de réponse ainsi qu'une représentativité limitée, une étude écotoxicologique est généralement constituée de plusieurs tests afin d'évaluer au mieux le caractère dangereux d'une substance (Wilke *et al.*, 2008 ; Cho *et al.*, 2009). Les tests proposés doivent inclure un producteur, un consommateur primaire ou secondaire et un décomposeur (Sekkat *et al.*, 2001). Les différents types de toxicité (toxicité aiguë, chronique, génotoxicité) doivent également être pris en compte dans le choix d'un test. La toxicité aiguë correspond à une exposition unique d'une dose élevée pendant quelques minutes ou quelques heures alors que la toxicité chronique est liée à une longue exposition pour de faibles doses. Les études généralement menées donnent accès à la toxicité aiguë totale (Pivato et Gaspari, 2006). Pour l'estimation approfondie des risques, il est cependant essentiel d'appliquer et de connaître la toxicité aiguë et chronique (Chèvre *et al.*, 2005). La plupart des tests standardisés ont été développés pour les milieux aquatiques, l'eau étant considérée comme principal vecteur de contaminations (Wilke *et al.*, 2008), ils peuvent cependant être appliqués pour l'évaluation écotoxicologique de lixiviats.

Les tests d'écotoxicologie sont considérés comme complémentaires aux analyses chimiques car la présence de substances écotoxiques dangereuses pour l'environnement peut avoir échappé à l'analyse chimique. Certains produits toxiques peuvent être présents à des concentrations trop faibles pour être détectés par une analyse chimique (Pivato et Gaspari, 2006 ; Cho *et al.*, 2009). Les analyses chimiques ne permettent pas de garantir la mise en évidence de composés non recherchés (la nature et la quantité de polluants dans un site n'est souvent pas connue avec précision). En outre, ces tests prennent en compte les interférences synergiques et antagonistes des substances présentes.

*La mise en place de techniques analytiques bio-physico-chimiques adaptées est essentielle afin d'accéder à l'état de dégradation d'un déchet et ainsi déterminer son devenir environnemental. L'impact de prétraitement sur la dégradation peut également être déterminé grâce à des outils spécifiques traduisant correctement l'évolution de la matière organique.*

## V.5. Critères de stabilité

La digestion anaérobie des déchets ménagers et assimilés engendre une matière organique dite stable. Cependant la définition de cet état de stabilité reste cependant relativement abstraite même si cette notion a été étudiée et définie par de nombreux auteurs de façons différentes (Lasaridi et Stentiford, 1998 ; Kelly, 2002 ; Warith, 2002 ; Berthe, 2006 ; François *et al.*, 2006 ; Kelly *et al.*, 2006). La directive européenne 1999/31/CE donne également une définition de cet état. Selon eux, la notion de stabilité se définit par un état de la matière qui n'est plus susceptible d'évoluer physiquement, chimiquement et biologiquement dans les conditions du milieu considéré ; état atteint bien au-delà de la période réglementaire de suivi post-exploitation (Kelly, 2002).

La dégradation de la matière organique du déchet entraînant un transfert de la phase solide vers les phases liquide et gazeuse, une caractérisation bio-physico-chimique du déchet ou du lixiviat produit permet d'évaluer cette notion de stabilisation. En effet, le lixiviat est un effluent complexe dont les caractéristiques sont étroitement liées à la composition des déchets enfouis. Cette partie ne sera consacrée qu'aux critères de stabilité définis par rapport à la matrice solide et liquide.

Cet état de stabilité du déchet peut être mis en évidence par des indicateurs de stabilité de type physique, chimique ou biologique. Les principaux indicateurs liés à la caractérisation du déchet ou du lixiviat et retrouvés dans la littérature sont regroupés dans le Tableau XXI (Berthe, 2006 ; Gachet, 2005).

Les indicateurs issus de tests sur le déchet sont soit déterminés par caractérisation physico-chimique (MV, MO, rapport C/N...) soit biochimique (teneur en cellulose...) ou encore à partir de suivi du comportement en conditions d'incubation (BMP, AT4...). Le test BMP est toutefois considéré comme l'un des meilleurs indicateurs de la stabilité des déchets (Kelly *et al.*, 2006). Au niveau des indicateurs liés à la composition du lixiviat, il s'agit principalement d'indicateurs physico-chimiques très généraux qui sont souvent considérés comme insuffisant afin de définir l'état de stabilisation (François *et al.*, 2006).

*Chaque auteur développe une technique de mesure et des indicateurs correspondent à l'objectif qu'il s'est fixé. Une grande variété de techniques analytiques coexiste donc et fournit une multitude d'indicateurs physiques, biologiques et chimiques à l'état de dégradation des déchets. Même si plusieurs paramètres sont souvent nécessaires à la détermination de l'état de dégradation et/ou de stabilisation d'un déchet, il est très difficile de choisir celui auquel se référer. Ainsi, les indicateurs liés à l'étude des déchets, des lixiviats mais aussi des émissions gazeuses doivent être utilisés de façon complémentaire (Prantl *et al.*, 2006).*

Tableau XXI : Indicateurs de stabilité des déchets ménagers dégradés.

Matrice	Paramètres analysés	Valeurs	Référence
DECHETS	Pourcentage de fines	44 - 45 %	François <i>et al.</i> , 2006
	Pourcentages de composés dégradés	75 - 76 %	François <i>et al.</i> , 2006
	Matière volatile (MV)	18 - 19 %	François <i>et al.</i> , 2006
	Carbone organique	5 - 6 %	François <i>et al.</i> , 2006
	Matière organique	10 - 20 %	Kelly, 2002
	Rapport C/N	10 12	Gagnon <i>et al.</i> , 1997 Iannotti <i>et al.</i> , 1994
	% cellulose / % lignine	0,2	Kelly <i>et al.</i> , 2006
	Rapport Lignine / Cellulose+Hémicellulose	1,18	Francou <i>et al.</i> , 2008
	COT <sub>AH</sub> /COT <sub>AF</sub>	> 3 > 1,7	Francou <i>et al.</i> , 2008
	V méthane	0,9 - 1 m <sup>3</sup> /tMS	François <i>et al.</i> , 2006
	BMP	10 - 20 mg/gMS < 45 mg/gMS	Kelly, 2002 Bilgili <i>et al.</i> , 2009
	Taux de consommation en oxygène	1,77 - 4,85 mgO <sub>2</sub> /g/h	Michel <i>et al.</i> , 1993
	AT <sub>4</sub>	< 20 mg O <sub>2</sub> /g MS ≤ 5 mg O <sub>2</sub> /g MS	Bayard <i>et al.</i> , 2010 Scaglia <i>et al.</i> , 2010
	AT <sub>7</sub>	< 15 mg O <sub>2</sub> /g MS	Wagland <i>et al.</i> , 2009
GB <sub>21</sub>	≤ 20 N l/kg MS	Cossu et Raga, 2008	
LIQUIDE	DCO	141 – 155 mg O <sub>2</sub> /L < 1500 mg O <sub>2</sub> /kg MS < 1000 mg O <sub>2</sub> /L	François <i>et al.</i> , 2006 Heyer <i>et al.</i> , 2005 Reinhart <i>et al.</i> , 2002
	COD	45 – 49 mg C/L	François <i>et al.</i> , 2006
	DBO <sub>5</sub>	< 300 mg O <sub>2</sub> /kg MS	Reinhart <i>et al.</i> , 2002
	DBO <sub>5</sub> /DCO	< 0,1	Millot, 1986
	NH <sub>4</sub> -N	< 400 mg /kg MS < 200 mg/L	Reinhart <i>et al.</i> , 2002
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> /NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	1,4 – 7,8 > 1	Forster <i>et al.</i> , 1993 Sánchez-Monedero <i>et al.</i> , 2001
	Fractionnement selon le caractère hydrophobe	AH* > 10 % HPI* < 30 %	Berthe <i>et al.</i> , 2008

*Malgré la généralisation du recyclage, la production de déchets ménagers et assimilés en France et en Europe est toujours importante aujourd'hui. Le traitement de ces déchets encore majoritairement réalisé en Installation de Stockage des Déchets Ultimes (ISDND) tend à évoluer afin de répondre aux exigences environnementales et économiques actuelles. Ainsi, la directive européenne 99/31/CE fixe des objectifs de réduction de la quantité de déchets à enfouir notamment au travers de la réduction de leur charge organique. Ces enjeux imposent également de rechercher de nouveaux moyens permettant d'accélérer la biodégradation des déchets afin d'atteindre rapidement un état stabilisé où les flux de polluants émis sont faibles et n'engendrent plus un danger pour l'environnement (Warith, 2002).*

*Dans ce contexte, se sont développées des technologies alternatives de traitement des déchets : la préparation ou le prétraitement avant enfouissement du déchet. Il peut s'agir de modalités de nature mécanique, physique, thermique, chimique ou encore biologique. La définition d'une modalité de traitement s'appuie d'une part sur la composition du déchet et d'autre part sur les paramètres influençant le processus de biodégradation. En effet, les modalités de prétraitement sont principalement définies selon les phases de dégradation sur lesquelles elles agissent et donc selon les mécanismes réactionnels au sein desquels elles interfèrent.*

*L'impact des modalités testées s'effectue par le biais d'études à l'échelle du laboratoire (batch, pilote) mais également sur sites. Du fait de leur facilité de mise en œuvre et d'application, les tests à l'échelle du laboratoire (BMP, test de lixiviation...) sont généralement plus souvent utilisés de manière à cibler les effets avant de passer à une échelle plus importante. Toutefois, ces tests sont réalisés dans des conditions optimales qui ne reproduisent pas toujours les conditions réelles d'un site (Kylefors et al., 2003). Il est donc nécessaire d'adapter au mieux ces tests et de valider leurs performances sur des expérimentations à des échelles multiples pour disposer d'outils performants. Ces outils seront ensuite garants de l'utilisation de méthodes ou protocoles adaptés à la matrice déchet.*

*La détermination de cet impact repose également sur des données caractérisant les émissions de polluant (biogaz et lixiviat). L'arrêt de la production de biogaz ne signifiant pas la stabilisation du massif de déchets, d'autres indicateurs plus pertinents doivent être utilisés afin d'accéder à l'état de dégradation du système. L'étude approfondie de la matière organique apparaît être un bon indicateur du degré d'évolution du système (François et al., 2006 ; Berthe et al., 2008). En effet, la matière organique subit une lente métabolisation au cours de la dégradation la conduisant vers un état de plus en plus complexe. Ainsi, il existe une relation entre le degré « d'humification » de la matière organique et l'état d'avancement de la dégradation des déchets : plus les molécules sont complexes, hydrophobes et aromatiques et plus l'état de dégradation est avancé.*

*L'application quasi systématique de tests de lixiviation associés à un fractionnement des composés organiques devrait donc permettre de conclure sur les performances d'un procédé de traitement des déchets.*



## PARTIE II - MATERIELS ET METHODES

---

*Les processus actifs au sein d'un massif de déchets étant relativement complexes et multiphasiques, il est important de suivre l'évolution de nombreux paramètres tant dans la phase liquide (lixiviat) que dans la phase gazeuse (biogaz) et lorsque c'est possible, directement dans la matrice solide (déchet). Ce travail de thèse s'oriente principalement sur la caractérisation du déchet et sur le suivi des émissions liquides ; informations essentielles pour appréhender les phénomènes bio-physico-chimiques se déroulant au cœur du massif de déchets.*

*Ce chapitre a pour objectif de présenter les dispositifs expérimentaux utilisés dans le cadre de ce travail ainsi que de lister les différentes méthodes qui ont abouti aux résultats de la présente étude. Dans un premier temps, les deux principaux programmes de recherche (ELIA et BIOPTIME) à l'origine de ce travail seront présentés au travers de leurs objectifs et la démarche expérimentale appliquée. Ainsi, le choix des modalités de prétraitement les plus pertinentes dépendra de leur capacité à produire du biogaz et à générer une matière organique stable dans le lixiviat. Les techniques analytiques mises en œuvre seront également détaillées en s'attachant à mettre en évidence les avantages et inconvénients des différentes méthodes.*

*Enfin, une réflexion sur le développement d'un protocole de lixiviation optimisé des déchets sera développée. L'objectif d'un tel test étant d'accéder au potentiel de relargage des déchets en mobilisant des espèces indicatrices de stabilisation. Ce protocole servira également d'aide dans l'évaluation des performances d'un mode de gestion des déchets notamment dans le cas d'un prétraitement avant enfouissement. Les conditions opératoires définies permettront de se servir de ce test comme une référence en matière de lixiviation dans le cadre de ces deux projets mais également pour l'ensemble des utilisateurs de tests de lixiviation.*



## I. Schéma expérimental suivi

La démarche expérimentale développée au cours de cette thèse vise à apporter des éléments de comparaison sur différents modes de gestion des déchets ménagers et assimilés (DMA) dans le cadre de suivis multi-échelle ; elle est schématisée sur la Figure 17.

Ce travail de thèse s'articule autour de 2 projets de recherche industrielle complémentaires : le programme ELIA (Environmental Landfill Impact Assessment) et le projet BIOPTIME (Programme de recherche sur la préparation des déchets pour l'optimisation de la biodégradation par méthanisation des déchets ménagers et assimilés). La chronologie des deux programmes de recherche sera brièvement évoquée par la suite.

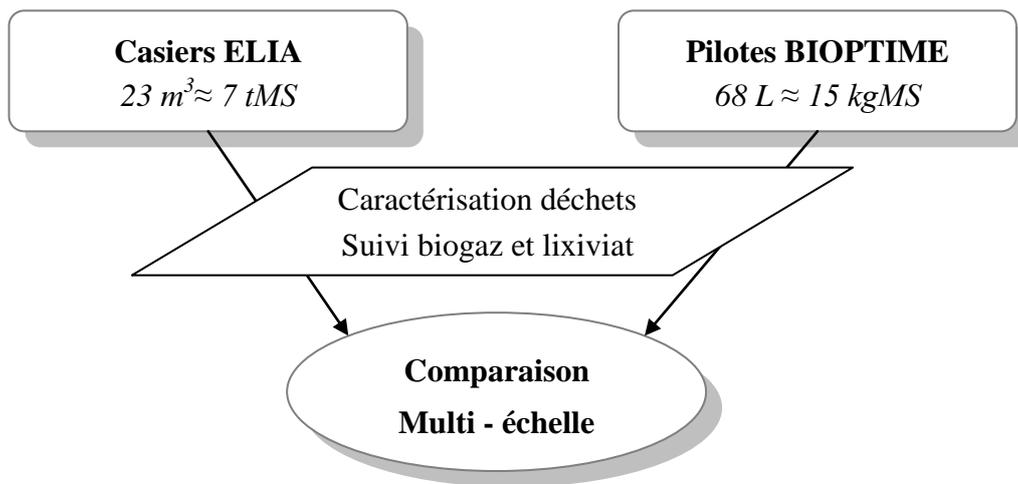


Figure 17 : Démarche expérimentale développée.

La stratégie expérimentale suivie est fondée sur des techniques analytiques similaires appliquées aux flux entrant (déchets) et sortant (principalement le lixiviat) afin de caractériser le fonctionnement des modes de gestion mis en place. Pour chacun de ces projets, le choix de paramètres et de caractéristiques garantissant la meilleure adéquation entre les contraintes expérimentales (liées à la gestion des pilotes) et les objectifs visés a été fait. Une attention particulière est portée sur le suivi et l'évolution de la matière organique. La matière organique sera tout au long de l'étude considérée comme indicateur de l'efficacité et du bon fonctionnement des systèmes.

### I.1. ELIA : bilan final d'une longue étude

Le programme de recherche ELIA a été initié par VERI (Veolia Environnement Recherche et Innovation) dès mars 2003 dans le but de comparer les avantages et les inconvénients de différents modes de gestion des déchets sur un plan technico-économique mais également d'un point de vue des impacts environnementaux liés à ces filières de gestion des déchets.

Cette thèse a pour principal objectif de réaliser un bilan complet de cette étude en terme d'efficacité des différents modes de gestion ; la méthodologie appliquée est représentée sur la Figure 18.

Les différents casiers ont été mis en place en octobre 2003 et suivis jusqu'en juin 2009. Le suivi expérimental mis en place passe tout d'abord par l'étude du déchet entrant sous forme d'une caractérisation physico-chimique complète (MO-MM, Ntot, BMP...).

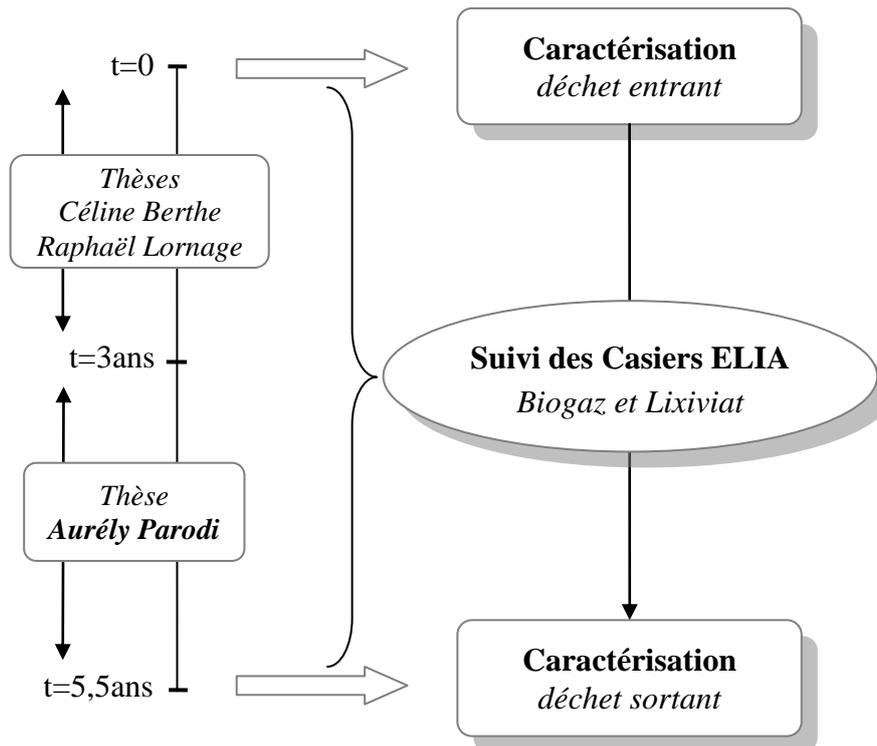


Figure 18 : Suivi expérimental du programme ELIA.

Tout au long des années d'exploitation des casiers expérimentaux, le biogaz ainsi que les lixiviats produits sont analysés. Le suivi du biogaz a été réalisé dans le cadre de la thèse de Raphaël Lornage jusqu'en 2006 puis par VERI jusqu'en 2009. Les lixiviats issus des quatre casiers expérimentaux ont été caractérisés mensuellement dans le cadre de la thèse de Céline Berthe de 2003 à 2006 puis au cours de cette thèse jusqu'à l'arrêt de l'étude et l'excavation des déchets. A la fin de l'exploitation, les déchets sont excavés afin de subir une caractérisation physico-chimique complète similaire à celle réalisée en amont de l'incorporation dans les casiers. Une détermination du potentiel de relargage des déchets par le biais de test de lixiviation est également réalisée.

## I.2. BIOPTIME : début d'une nouvelle étude

Le projet BIOPTIME est une étude multi-échelle visant à déterminer l'impact d'une étape de préparation et ou de prétraitement en amont de l'enfouissement des déchets et ainsi étudier et comprendre les mécanismes chimiques et biologiques associés à la méthanisation des déchets ménagers et assimilés en fonction du prétraitement mis en œuvre (Figure 19). La finalité du projet est l'identification des leviers d'action permettant d'optimiser les filières existantes de traitement des déchets ménagers et assimilés afin de limiter les risques environnementaux et d'utiliser la matrice déchets comme ressource énergétique renouvelable. Ainsi, la définition de plusieurs scénarii de préparation et/ou de prétraitement des déchets est possible dont les coûts, les impacts environnementaux et les aspects techniques auront été évalués.

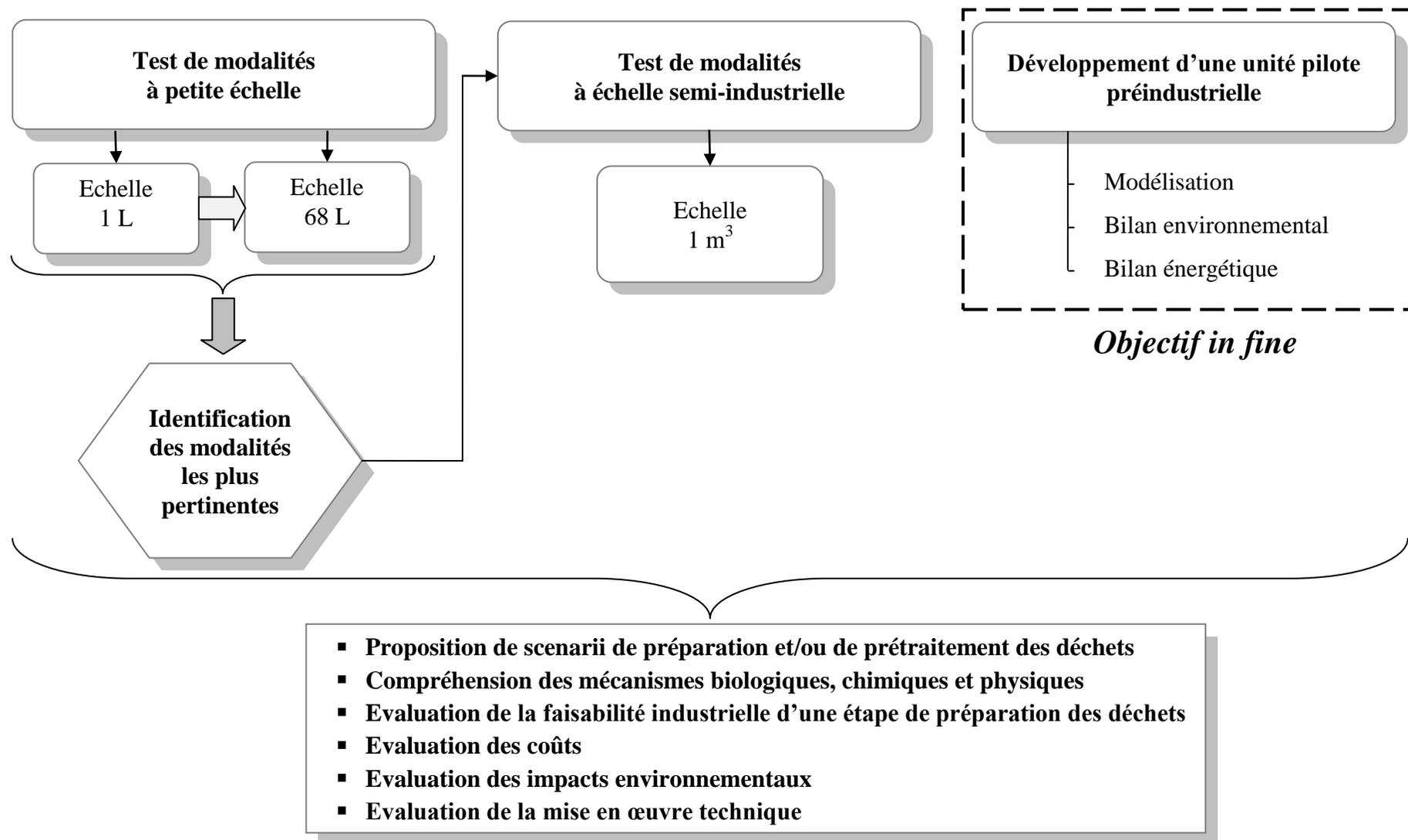


Figure 19 : Organisation du projet BIOPTIME.

Lancé en 2007 pour une durée de 4 ans, ce projet s'articule autour de 3 principaux axes liés les uns aux autres :

- différentes conditions optimales de prétraitement sont testées en milieu saturés (échelle 1 L) pour réaliser un screening et identifier les modalités les plus performantes,
- les modalités les plus pertinentes sont testées en milieu non saturé (échelle 68 L) dans des pilotes où sont mesurés les flux entrant et sortant (biogaz et lixiviat),
- certaines modalités sont mises en place à plus grande échelle (1 m<sup>3</sup>) afin de prendre en compte des aspects plus physiques et mécaniques tels que la pression et la perméabilité. Il s'agit de cellules spécifiquement équipées pour reproduire les conditions réelles de tassement, de flux et de température d'un déchet enfoui.

Un tel dispositif expérimental permet de faire une étude paramétrique en évaluant les cinétiques de dégradation et les flux de biogaz auxquels on peut s'attendre en fonction de la préparation du déchet. L'objectif in fine est de réaliser un transfert d'échelle des résultats obtenus vers une unité pilote préindustrielle correspondant à une installation de stockage des déchets non dangereux (ISDND).

Ce travail de thèse s'inscrit dans le projet BIOPTIME et plus particulièrement au niveau de la gestion des pilotes à l'échelle 68 L. L'évaluation de l'impact des modalités de préparation s'effectue par le biais d'une étude en pilote comprenant une caractérisation initiale et finale du déchet ainsi qu'un suivi rigoureux des flux de lixiviat sortant. La démarche expérimentale suivie est décrite sur la Figure 20.

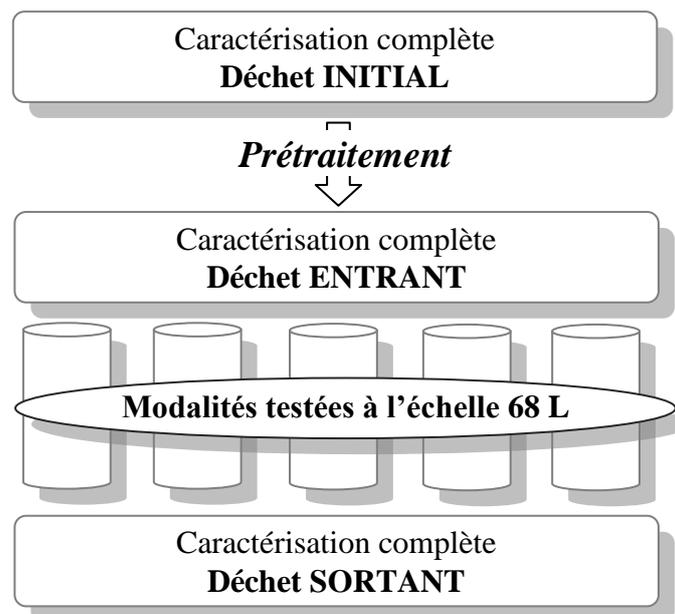


Figure 20 : Etude expérimentale des pilotes 68 L.

Les conditions expérimentales des pilotes sont strictement identiques et ils contiennent exactement la même matrice (différences liées à la modalité de prétraitement) dans des quantités proches (12,7 ± 1,8 kgMS). La caractérisation s'effectue selon deux approches complémentaires : une caractérisation physico-chimique standard et l'étude du comportement en test de lixiviation afin d'évaluer la part mobilisable en solution. Le suivi du lixiviat s'effectue selon une analyse physico-chimique englobant des paramètres très globaux et une quantification des métaux présents (Cu, Pb et Ni) mais également par le biais d'une caractérisation approfondie de la matière organique. Les données obtenues sont corrélées avec celles du suivi du biogaz réalisé par VERI. Le calendrier général des projets ELIA et BIOPTIME ainsi que l'implication relative à ces travaux de thèse sont présentés sur la Figure 21.

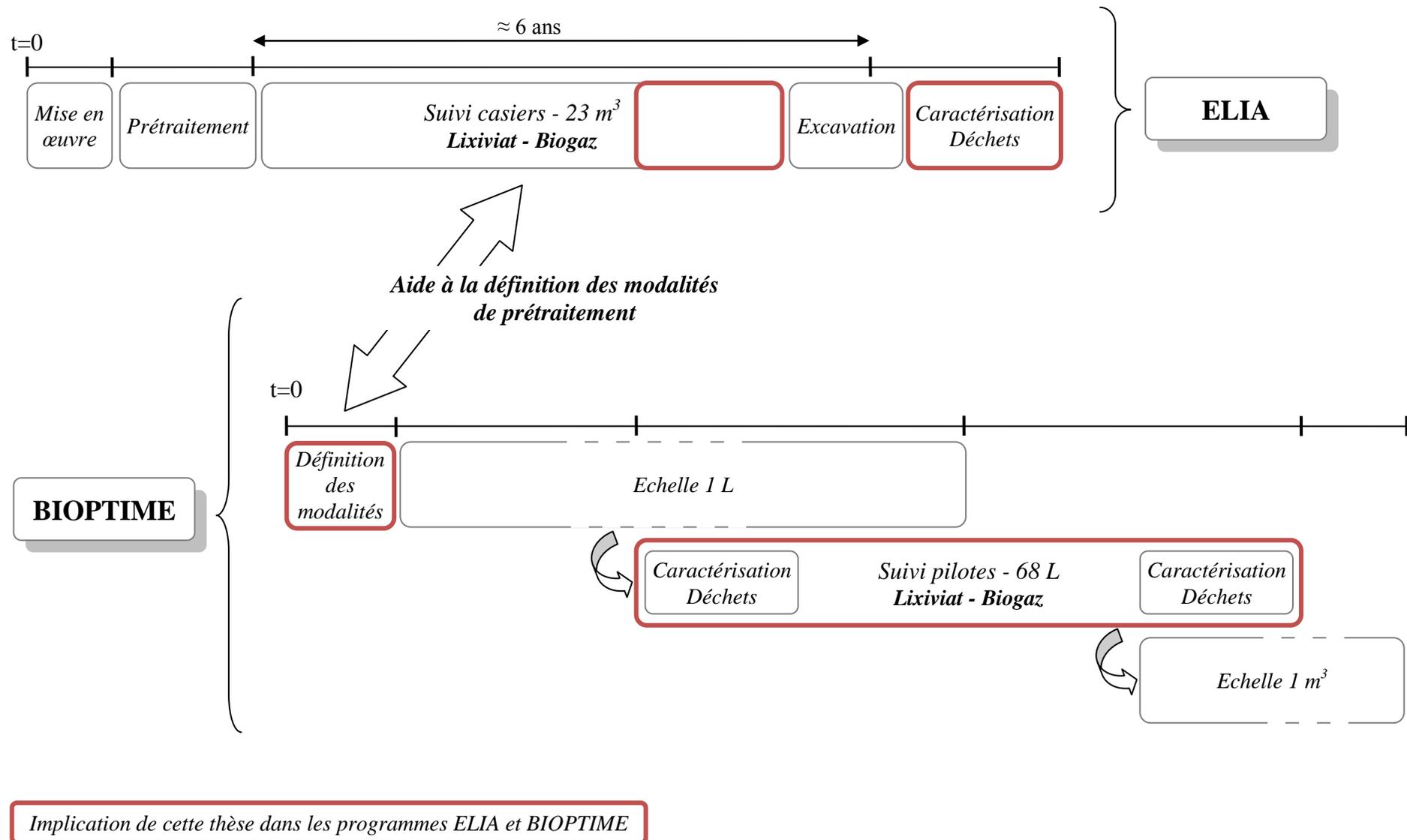


Figure 21 : Calendrier général des programmes ELIA et BIOPTIME.

## II. Dispositifs expérimentaux

Les dispositifs expérimentaux utilisés dans le cadre de ces deux programmes de recherches diffèrent de part leur taille mais leur physionomie générale reste similaire.

### II.1. ELIA : étude en casiers de 23 m<sup>3</sup>

#### II.1.1. Caractéristiques des casiers

Des casiers hors sol de 23 m<sup>3</sup> ont été mis en place par VERI sur site dans la région de Dieppe (Seine Maritime) ; la taille semi industrielle de ces casiers permet une bonne représentativité de la réalité. Les 4 casiers expérimentaux sont tous construits sur la même base : une cuve en acier à base carrée avec un fond constitué d'une double pente afin d'obtenir un point bas dans un coin du pilote pour la récupération des lixiviats par voie gravitaire (Figure 22).

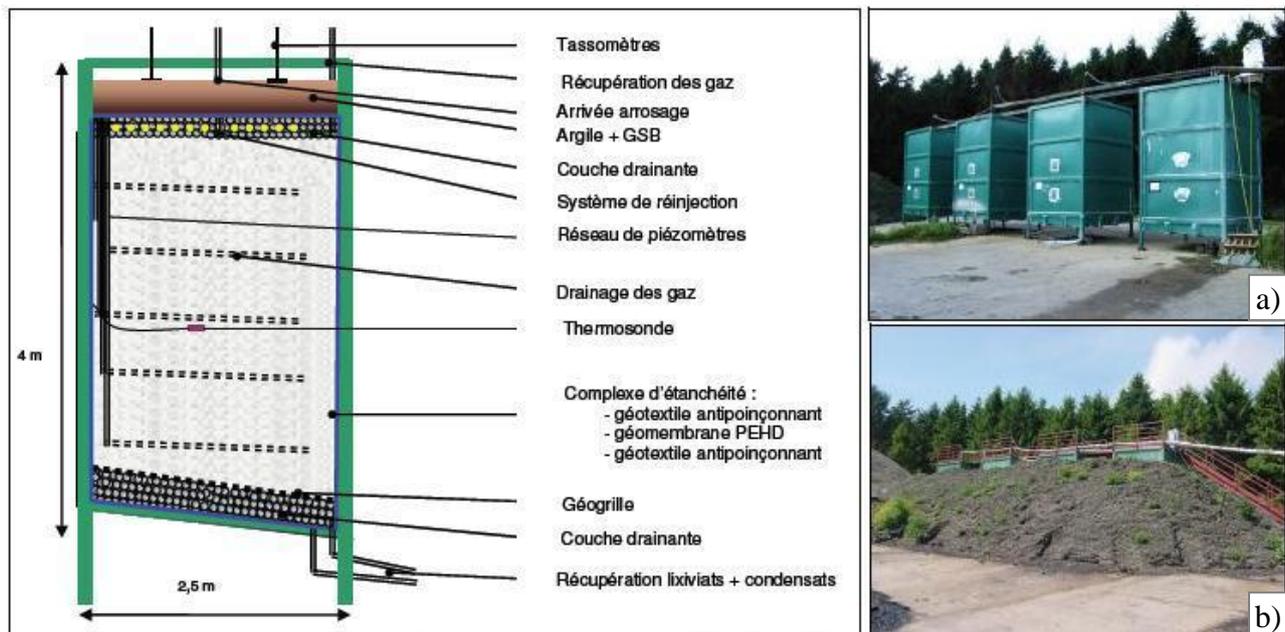


Figure 22 : Représentation schématique et photographique des casiers expérimentaux (Lornage, 2006).

Les parois de chaque casier sont doublées par une membrane complexe (géotextile - géomembrane - géotextile) identique à celles rencontrées sur sites. Une couche drainante (silex concassés non calcaires de diamètre 30-40 mm) surmontée d'une géogrille (polyéthylène de maille 2 mm) est disposée au fond de chaque casier empêchant le colmatage (Lornage *et al.*, 2007).

#### II.1.2. Déchets étudiés

Dans le cadre de ce projet, les déchets utilisés sont des déchets ménagers et assimilés frais collectés près de Dieppe par la société ONYX. Grâce à la technique d'échantillonnage MODECOM, environ 431 kg de déchets ont subi une caractérisation complète afin d'en déterminer la répartition granulométrique ainsi que la composition exacte (Tableau XXII).

Tableau XXII : Composition du déchet collecté (Lornage *et al.*, 2007).

Composition	Déchets organiques	Plastiques	Textiles	Métaux	Déchets spéciaux	Verres	Divers
%	55 %	14 %	7 %	2,6 %	0,4 %	11 %	10 %

Ces déchets sont majoritairement constitués de déchets organiques (55 %) correspondant à des fermentescibles, du bois et des papiers-cartons. En terme de granulométrie, la fraction > 100 mm (déchets qualifiés de « gros ») est majoritairement présente (plus de 50 %). Cette observation est en accord avec la nature du déchet : un déchet frais (François *et al.*, 2006). De plus, cette part importante de matière organique liée à la présence de fermentescibles, de bois et de papiers-cartons est propice à la mise en place d'un prétraitement mécanique et biologique avant enfouissement.

### II.1.3. Modalités étudiées

Le programme ELIA comprend quatre pilotes : deux modalités de prétraitement des déchets avant enfouissement, un fonctionnement selon le concept bioréacteur ainsi qu'un casier témoin servant de référence (Tableau XXIII).

Tableau XXIII : Caractéristiques des modalités étudiées dans le cadre du programme ELIA.

Modalité	Casier	Masse Sèche (T)	Durée d'enfouissement (mois)	Teneur initiale Carbone (kgC/tonneMS)	
Témoin	Tem (C1)	6,80	70	223	
Bioréacteur	Bio (C2)	8,43	70		
Prétraitement Mécanique et Biologique	12 semaines	PTB 1 (C3)	6,76	67	182
	25 semaines	PTB 2 (C4)	6,71	64	163

Le début de l'enfouissement ne correspond pas aux mêmes dates pour les 4 casiers du fait des 12 et 25 semaines de prétraitement biologique pour les casiers PTB 1 et PTB 2 ; la durée totale d'enfouissement est donc légèrement différente (Figure 23).

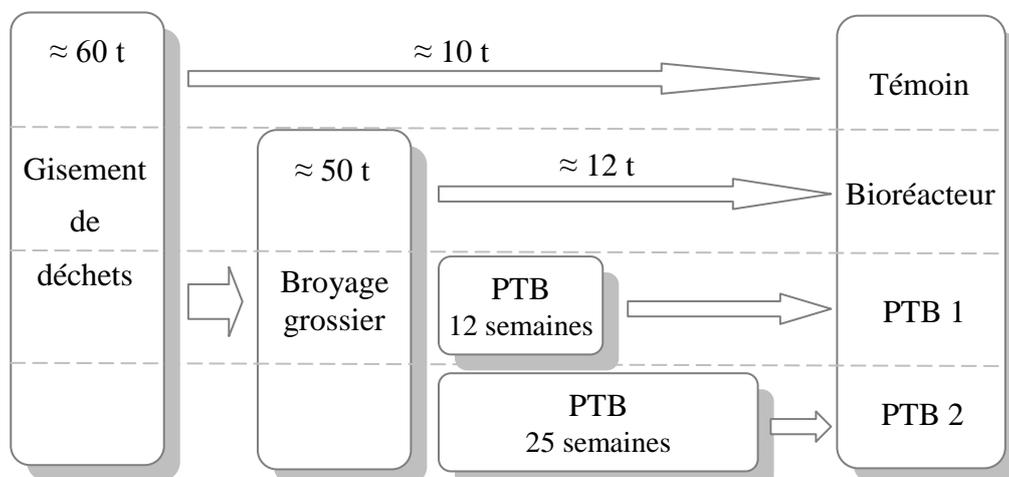


Figure 23 : Gestion des déchets lors du remplissage des casiers (Lornage, 2006).

Les déchets enfouis dans le casier témoin (C1) sont des déchets frais non broyés. Cette modalité correspond à enfouissement conventionnel selon l'arrêté du 9 septembre 1997 consolidé.

Les déchets destinés aux filières bioréacteur (C2) et PTB ont subi un traitement mécanique consistant en une étape préalable d'homogénéisation à l'aide d'un grappin puis en une étape de broyage grossier à l'aide d'un broyeur industriel à marteaux. Ce type de broyage s'apparente davantage à une ouverture des sacs contenant les déchets et à leur homogénéisation. Suite à ce broyage, près de 48 % des déchets ont une granulométrie inférieure à 50 mm.

Pour les modalités PTB 1 (C3) et PTB 2 (C4), un prétraitement biologique par aération forcée a été appliqué avec des durées de fonctionnement respectivement de 12 et 25 semaines. Ce prétraitement s'effectue en andain de 21 m de long, 6 m de large, environ 2 m de haut et de profil trapézoïdal. L'humidité des 37,5 tonnes de déchets a été ajustée à 40 % de manière à ce que la dégradation biologique se déroule dans des conditions optimales d'humidité (Gachet, 2005). Les différentes étapes de fonctionnement du prétraitement biologiques sont représentées sur la Figure 24.

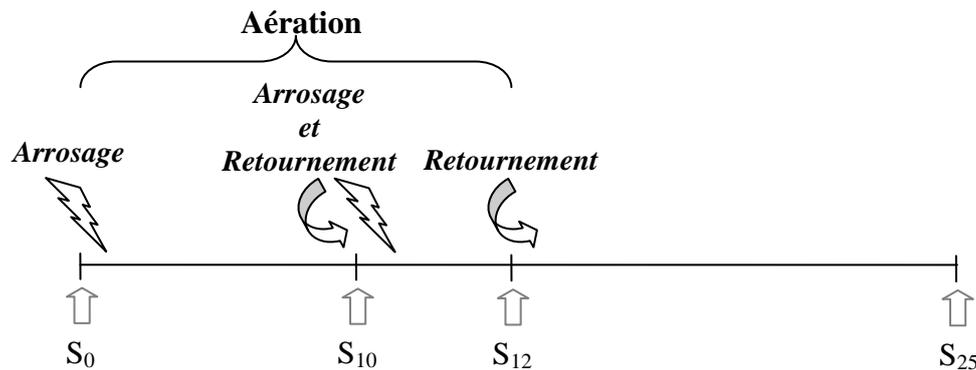


Figure 24 : Etapes de fonctionnement du prétraitement biologique.

L'aération forcée du massif est commandée par la mesure de la teneur en  $O_2$  et de la température au sein du massif de déchet. Ainsi, un seuil minimum (10 % d' $O_2$  / 50°C) et un seuil maximum (16 - 18 % d' $O_2$  / 80°C) sont définis afin de se maintenir des conditions optimales : apport suffisant d' $O_2$  aux microorganismes sans risque d'assèchement et éviter les risques d'auto-combustion du déchet si la température augmente trop. De plus, un retournement associé à une réhumidification des déchets a été réalisé compte tenu de l'hétérogénéité des déchets (création de zones anaérobies et de chemins préférentiels). Le prétraitement mécanique et biologique des déchets génère un abattement en carbone respectivement de 24,5 et 36,3 % par rapport au déchet initial après 12 et 25 semaines de traitement (Tableau XXIII).

Une simulation de pluie a été mise en place pour l'ensemble des casiers afin de recréer les infiltrations d'eau consécutives aux événements pluvieux sur une ISDND (Installation de Stockage des Déchets Non Dangereux). Cette simulation a été adaptée à chaque casier afin que le taux de lixiviation (quantité d'eau par tonne de déchet sec enfoui) soit similaire pour tous les casiers. Ainsi, les casiers ont respectivement reçu 901, 489, 530 et 504 L/tMS pour le témoin, le bioréacteur et les PTB 1 et 2. Le casier Bioréacteur (C2) est également équipé d'un système de recirculation automatisé du lixiviat produit par réinjection au sommet du massif. La fréquence et le débit de recirculation ont évolué tout au long de l'étude ; au total, 2945 L/tMS de lixiviat ont été recirculés. Des ajouts d'eau ont également été effectués pour palier au manque de lixiviat et/ou pour créer la dilution d'un lixiviat trop chargé. Ces conditions sont prises en compte lors de l'interprétation des résultats.

Dans tous les casiers, une inoculation par ajout de bouses de vache a été initialement réalisée afin d'apporter une flore méthanogène et ainsi favoriser le démarrage de la biodégradation (Yuen, 1999).

L'ensemble des lixiviats produits par les quatre pilotes ont été mensuellement analysés par le biais de paramètres globaux (pH -  $\chi$  - AGV - DCO - COD - DBO<sub>5</sub> - ions - Abs UV - Fe / Cu / Ni / Pb / Zn) et par fractionnement de la matière organique selon le caractère hydrophobes des molécules.

## II.2. BIOPTIME : étude en pilotes de 68 L

Les pilotes à l'échelle 68 L du programme BIOPTIME correspondent à une étude de la dégradation anaérobie de déchets ménagers et assimilés en milieu non saturé.

### II.2.1. Caractéristiques des pilotes

Les pilotes utilisés sont de forme cylindrique en polychlorure de vinyle (PVC). Ils se composent d'une cuve et d'un couvercle ; un joint entre ces deux éléments permet au réacteur d'être étanche aux gaz (Figure 25). Le couvercle est équipé de 5 piquages :

- un capteur de pression,
- un tuyau menant au micro-chromatographe en phase gazeuse (micro-GC),
- un piquage menant à une rampe de 15 vannes pneumatiques raccordée à un compteur volumétrique et à un capteur de température puis, reliée à la ventilation,
- une vanne trois voies qui permet d'humidifier le déchet sans faire entrer d'air
- une soupape de sécurité.



Figure 25 : Pilotes 68 L du programme BIOPTIME.

Une grille en inox perforée sépare les déchets du fond de la cuve. L'inclinaison du fond du pilote permet la récupération du lixiviat par écoulement gravitaire à l'aide d'une vanne quart de tour reliée au point le plus bas. Le lixiviat est collecté par l'intermédiaire d'un tube vers un pot en PVC transparent.

Ces pilotes sont situés dans un local thermostaté à 35°C. La quantité de déchets enfouis ainsi que le degré d'humidité sont relativement identique pour tous les pilotes ; respectivement  $\pm 30$  kg et  $\pm 55$  %. Après enfouissement, un inertage à l'azote du ciel gazeux est réalisé afin de s'assurer de conditions anaérobies.

### II.2.2. Déchets étudiés

Les déchets initiaux utilisés sont des déchets reconstitués dont la composition a été définie selon les données moyennes françaises issues de la campagne d'inventaire national MODECOM réalisée par l'ADEME en 1993 (Annexe 1) (ADEME, 1993). Les données issues de la nouvelle campagne de caractérisation n'ont pas été utilisées car elles n'avaient pas été publiées au début de l'étude. Toutefois, les différences observées entre les deux campagnes de caractérisation sont relativement faibles. Le Tableau XXIV donne la composition exacte en masse humide et en masse sèche des différentes fractions du déchet utilisé. La matrice obtenue est ainsi représentative d'un déchet français type. La fraction fermentescible entrant dans la composition du mélange initial n'est ajoutée qu'au dernier moment pour éviter toute évolution avant enfouissement.

Tableau XXIV : Composition du déchet reconstitué.

Catégorie	Sous catégorie	Eléments constitutifs	masse humide (%)		masse sèche (%)	
Déchets putrescibles	Déchets alimentaires	Biscottes	2,90	28,80	10,00	15,80
	Déchets alimentaires	Pomme de terre	16,70		57,00	
	Déchets alimentaires	Escalope de poulet	4,30		15,00	
	Déchets alimentaires	Café moulu	2,00		7,00	
	Déchets de jardin	Luzerne déshydratée	2,90		11,00	
Papiers	Journaux	Journaux	5,00	16,00	6,57	17,70
	Magazines	Magazines	4,70		8,58	
	Papiers de bureau	Papiers de bureau	6,30		2,55	
Cartons	Cartons plats	Emballages yaourts	3,50	9,30	3,45	9,20
	Cartons ondulés	Cartons de déménagement	5,80		5,75	
Complexes	Emballages complexes	Briques de lait	1,20	1,40	1,37	1,60
	Autres complexes	Paquets de cigarettes	0,20		0,23	
Textiles	Textiles	Collants	1,40	2,60	1,50	3,00
		Laine	1,20		1,50	
Textiles sanitaires	Textiles sanitaires	Couches-culottes	0,78	3,10	0,95	1,90
		Mouchoirs	2,32		0,95	
Plastiques	Films polyoléfines	Sacs poubelles	6,70	11,00	7,67	12,70
	Bouteilles PET	Bouteilles d'eau claires	0,40		0,46	
		Bouteilles d'eau colorées	0,10		0,11	
	Bouteilles et flacons polyoléfines	Bouteilles de lait	0,90		1,03	
	PVC	PVC	1,50		1,72	
Emballages polystyrènes	Polystyrène	1,50	1,72			
Combustibles non classés	Combustibles non classés	Cagettes	3,20	3,20	3,90	3,90
Verre	Verre	Bouteilles, bocal	13,10	13,10	19,10	19,10
Métaux	Objets en aluminium	Limaille d'aluminium	0,70	4,10	0,96	5,60
	Métaux ferreux	Limaille de fer	3,40		4,64	
Incombustibles non classés	Incombustibles non classés	Gravier non calcaire	6,80	6,80	8,90	8,90
Déchets spéciaux	Déchets spéciaux	Piles	0,50	0,50	0,70	0,70

Chaque fraction a été séchée à 80°C jusqu'à stabilisation de la masse, puis broyée à 20 mm. Ce broyage est relativement faible par rapport à ce qui est généralement mentionné dans la littérature. Cependant, compte tenu du type de test mis en œuvre (pilotes 68 L), il est nécessaire d'avoir une granulométrie suffisamment faible afin d'avoir une bonne homogénéisation du système et ainsi faciliter les échanges entre solide et liquide. En outre, des essais préliminaires ont été réalisés par VERI afin de valider cette granulométrie compte tenu de la configuration des pilotes et des objectifs d'une telle étude. En effet, la réduction de la taille génère une augmentation du potentiel de biodégradation et de la vitesse de digestion (Sanders *et al.*, 2000) ; critère important lors d'une étude en laboratoire. Le choix d'une telle granulométrie s'est appuyé entre autre sur les résultats obtenus lors de l'exploitation des casiers ELIA. En effet, de meilleurs résultats en terme de cinétique avaient été obtenus pour les déchets broyés à 50 mm.

De manière complémentaire au broyage, le tassement du massif de déchets a été réalisé de manière à favoriser le bon enchevêtrement des déchets.

### II.2.3. Modalités de prétraitements étudiées

Suite à une étude bibliographie approfondie, différents types de prétraitement des déchets ont été identifiées puis testés en milieu saturé (échelle 1 L). Les plus pertinents sont appliqués aux pilotes 68 L (Tableau XXV). De plus, les travaux réalisés dans le cadre du programme ELIA ont également servis de base à la définition de ces modalités. Les différents prétraitements sont appliqués au déchet avant son incorporation dans le pilote.

Pour des questions de logistique, tous les pilotes ne sont pas lancés simultanément. Certaines modalités sont donc déjà arrêtées à ce jour alors que d'autres entrent à peine dans les premières phases de dégradation. Le Tableau XXV indique les durées d'enfouissement correspondant à chaque modalité. Ce tableau est repris en grand format en Annexe 2 de manière à faciliter la lecture des graphes et l'interprétation des résultats proposés dans la Partie III – Résultats et Discussions.

Une nomenclature précise a été définie pour l'ensemble des modalités testées, elle indique :

- le type de prétraitement : témoin (C), prétraitement aérobie (A), mâchefers (B), inoculation (I),
- le moment d'inoculation : inoculation au lancement (\*),
- le genre : bouses de vaches (P), boues de STEP (S),
- le niveau : faible (L), moyen (M), haut (H),
- le numéro (1-2-3) ou le répétat (x-y-z-t).

Le prétraitement aérobie consiste en une pré-aération du déchet. La variation de durée de traitement permet d'obtenir différents niveaux d'abattement en matière organique ; l'abattement est exprimé en pourcentage de perte de carbone. Cette perte de carbone correspond également à une perte de potentiel méthane. Au total, 3 niveaux de préparations ont été testés :

- faible (< 10 %),
- moyen (entre 10 et 20 %),
- élevé (> 20 %).

L'installation de prétraitement biologique aérobie est un procédé expérimental dont les caractéristiques techniques ne peuvent être discutées dans ce travail. Toutefois, il semble essentiel de préciser que le dispositif considéré est conçu de manière à ce qu'un minimum de lixiviat ne soit émis.

Tableau XXV : Modalités de prétraitement mise en place.

Prétraitements Conditions		Nom	Quantité de déchet		Quantité ajoutée		Humidité (%)	Durée (Mois)	Etat
			Masse Humide (kg)	Masse Sèche (kg)	Masse Humide (kg)	Masse Sèche (kg)			
Témoin	-	C	23,25	11,88			48,9	28	en cours
Prétraitement aérobie	niveau bas	A_L1	22,44	11,95			46,8	22	arrêt
	niveau bas	A_L3	21,6	10,02			53,7	20	arrêt
	niveau moyen	A_M3	18,45	8,41			54,3	19	arrêt
	niveau haut	A_H	19,55	10,42			46,6	19	arrêt
Ajout mâchefers	type B	B_2	29,99	14,64	1,98	1,72	45,4	24	arrêt
	type A	B_1	28,39	13,69	1,80	1,70	45,8	24	arrêt
Ajout	bouses vaches	I_P	26,77	14,46	1,47	0,25	45,2	23	arrêt
	boues mésophiles	I_S	24,57	13,16	7,14	0,20	45,6	24	arrêt
Témoin	-	C*	31,35	14,36			54,2	20	en cours
Ajout mâchefers	type A	B*_1	33,75	14,18	1,78	1,69	53,7	20	en cours
Prétraitement aérobie	niveau bas	A*_L2	32,84	14,20			56,8	15	arrêt
	niveau moyen	A*_M1	31,3	13,82			55,9	15	arrêt
Ajout mâchefers	type B	B*_2x	28,7	12,30	1,48	1,48	55,0	3	en cours
	type B	B*_2y	29,45	12,62	1,52	1,52	55,0	3	en cours
	type B	B*_2z	29,8	12,77	1,53	1,53	55,0	3	en cours
	type B	B*_2t					55,0	3	en cours

L'un des prétraitements biologiques appliqué est un ensemencement des déchets par addition de boues méthanogènes mésophiles ou de bouses de vaches. L'objectif est de réduire la phase initiale de latence parfois observée lors d'études pilotes tout en boostant la production de biogaz. Les boues mésophiles sont issues d'un digesteur de station d'épuration et contiennent donc une population anaérobie variée. Il s'agit de boues ne pouvant pas être valorisées en agriculture mais pouvant être enfouies en centre de stockage; elles ont une siccité minimum de 30 %. Les boues de STEP et les bouses de vaches utilisées présentent les caractéristiques usuelles de ce type de matrice (Tableau XXVI). Les quantités de bouses de vaches et de boues de STEP correspondent respectivement à 1,7 et 1,5 % de la masse sèche totale de déchets introduits dans le pilote. Elles sont ajoutées humides au déchet lors de son incorporation dans le pilote.

Tableau XXVI : Caractéristiques des boues de STEP et des bouses de vaches.

Paramètres	MS %	MO %	pH -	Eh mV	[Cl] mg/L	NH <sub>4</sub> mg/L	DCO gO <sub>2</sub> /L	Ntot mg/L
Bouses de vaches	16,7	85,2	-					
Boues de STEP	2,8	-	7,91	-59	137±29	1164±27	19,7	2180±87

L'ajout de mâchefers constitue également une modalité de prétraitement avant enfouissement. En effet, l'incorporation de mâchefers au sein du massif de déchets génère un effet tampon du fait de la basicité des mâchefers. Cet effet sur l'alcalinité du milieu agit sur l'activité enzymatique des microorganismes présents (Lo *et al.*, 2009) accélérant le processus de dégradation (Wang *et al.*, 2009). Pour l'ensemble des 7 modalités contenant des mâchefers, une proportion de  $12,0 \pm 0,2$  % ont été ajoutés au déchet. La quantité de mâchefers ajoutée a fait l'objet d'une optimisation préalable dans le cadre du projet BIOPTIME. Ainsi, les résultats apportés par les tests réalisés en milieu saturé (échelle 1 L) ont montré que la quantité de mâchefers et sa distribution granulométrique sont relativement influant sur les mécanismes de dégradation et sur la production de biogaz (Boulangier *et al.*, 2009a).

Dans le cadre de cette étude, 2 types de mâchefers de différentes origines ont été testés : type A et B. Ils ont une composition différente notamment au niveau de leur teneur en métaux, ils contiennent selon le mâchefer considéré :

- 231 mg/kgMS de Cu, 16 mg/kgMS de Ni et 59 mg/kgMS de Pb pour le mâchefer A
- 128 mg/kgMS de Cu, 12 mg/kgMS de Ni et 38 mg/kgMS de Pb pour le mâchefer B

Ces 2 mâchefers ont également subi une lixiviation de 48 heures dans le but d'appréhender leur capacité à être lessivé dans une solution non saturée (Tableau XXVII).

Tableau XXVII : Composés lixiviés après 48 heures de contact.

Paramètres		Mâchefers A	Mâchefers B
pH	-	10,8 ± 0,1	11,5 ± 0,1
$\chi$	mS/cm	0,32 ± 0,03	1,09 ± 0,08
COD	mgC/kgMS	320 ± 51	1616 ± 188
DCO	mgO <sub>2</sub> /kgMS	1633 ± 646	3525 ± 322
Cu	mg/kgMS	1,98 ± 0,04	6,74 ± 2,68
Ni		0,16 ± 0,04	0,62 ± 0,24
Pb		0,55 ± 0,04	1,98 ± 0,77

Pour l'ensemble des modalités étudiées, un suivi rigoureux a été réalisé sur la production de biogaz (quantité produite et composition) ainsi que sur le lixiviat généré de façon mensuelle. La caractérisation du lixiviat s'est effectuée par le biais de paramètres globaux (pH -  $\chi$  - TA - TAC - AGV - DCO - COD - Ntot - ions - Abs UV - métaux) et par fractionnement selon le caractère hydrophobe de la matière organique.

### III. Caractérisation physicochimique des déchets

Les différents déchets utilisés sont caractérisés au GRESE à l'état initial (avant mise en pilote), à l'état final (après excavation) ainsi qu'au cours du test de lixiviation. Les techniques d'analyse employées sont présentées dans le Tableau XXVIII.

Tableau XXVIII : Techniques analytiques mises en œuvre sur le déchet.

Paramètres	Unité	Matériel et/ou Méthode	Normes
Masse sèche – teneur en eau (%MS)	%	Séchage à 80°C	NF T90-105
Matière Organique – Matière Minérale	%	Combustion à 550°C	NF T90-029
Demande Chimique en Oxygène (DCO)	gO <sub>2</sub> /kgMS	Digestion acide	-
Azote Kjeldahl (NTK)	gN/ kgMS	Minéralisation - distillation	NF EN13342
Acides Humiques et Fulviques (AH*s / AF*s)	gC/kgMS	Extraction alcaline	-
Métaux (Cu, Ni, Pb)	g/kgMS	SAAfour VARIAN AA 800	-

Selon la norme NF T90-029, le déchet est caractérisé par la mesure de la teneur en Matière Organique (MO) obtenue après 16h à 105°C et par la teneur en Matières Minérales (MM) obtenue après calcination à 550°C pendant 2 heures selon l'Équation 1 et l'Équation 2.

$$\text{Équation 1} \quad \text{MO} = \frac{m_{105^\circ\text{C}} - m_{550^\circ\text{C}}}{m} \quad \text{en gMO/kgMS}$$

$$\text{Équation 2} \quad \text{MM} = \frac{m_{550^\circ\text{C}}}{m} \quad \text{en gMM/kgMS}$$

$m_{105^\circ\text{C}}$  : masse de déchet après séchage à 105°C (g)

$m_{550^\circ\text{C}}$  : masse de déchet après calcination à 550°C (g)

$m$  : masse de la prise d'essai (kg)

La Demande Chimique en Oxygène (DCO) contenue dans le déchet est déterminée par oxydation de la matière oxydable par chauffage en milieu fortement acide (H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>) avec une quantité connue de bichromate de potassium (K<sub>2</sub>Cr<sub>2</sub>O<sub>7</sub>). La consommation d'oxygène par l'échantillon provoque un changement de couleur dont l'absorbance est proportionnelle à la quantité de bichromate de potassium réduit et se mesure en équivalent d'oxygène. La teneur en DCO est estimée par le biais de l'Équation 3.

$$\text{Équation 3} \quad [\text{DCO}] = 8000 \times \frac{T \times (V_0 - V_1)}{m} \quad \text{gO}_2/\text{kgMS}$$

T : titre de la solution de sel de Mohr

V<sub>0</sub> : volume de la solution de sel de Mohr pour le dosage du blanc (L)

$V_1$  : volume de la solution de sel de Mohr pour le dosage de l'échantillon (L)

$m$  : masse de la prise d'essai (kg)

L'azote Kjeldhal (NTK) correspond à la teneur en azote ammoniacal ( $\text{NH}_4^+$ ) et en azote organique (Norg). Une masse de  $0,55 \pm 0,01$  g de déchet est d'abord minéralisée à chaud en milieu acide ( $\text{H}_2\text{SO}_4$  98 % + catalyseur de Kjeldahl :  $\text{K}_2\text{SO}_4$  et Se). Après alcalinisation par addition de soude (50 mL de lessive de soude), l'ammonium est distillé et recueilli dans une solution d'acide (10 mL d'HCl à 0,1 M). Il est ensuite dosé par titration (avec NaOH 0,1 M). La teneur en azote Kjeldhal est calculée grâce à l'Équation 4.

$$\text{Équation 4} \quad [\text{NTK}] = \frac{[\text{NaOH}] \times M_N \times (V_1 - V_2)}{m} \quad \text{gNTK/kgMS}$$

$V_1$  : volume de NaOH pour le dosage du blanc (L)

$V_2$  : volume de NaOH pour le dosage de l'échantillon (L)

$m$  : masse de la prise d'essai (kg)

$M_N$  : masse molaire de l'azote (g/mol)

La procédure d'extraction des acides humiques et fulviques est basée sur le protocole utilisé par pour les composts et transférée au déchet (Francou *et al.*, 2008). Cette méthode consiste en une extraction alcaline du solide des acides de type fulvique (AF\*s) suivie d'une précipitation des acides de type humique (AH\*s) en milieu acide (Figure 26).

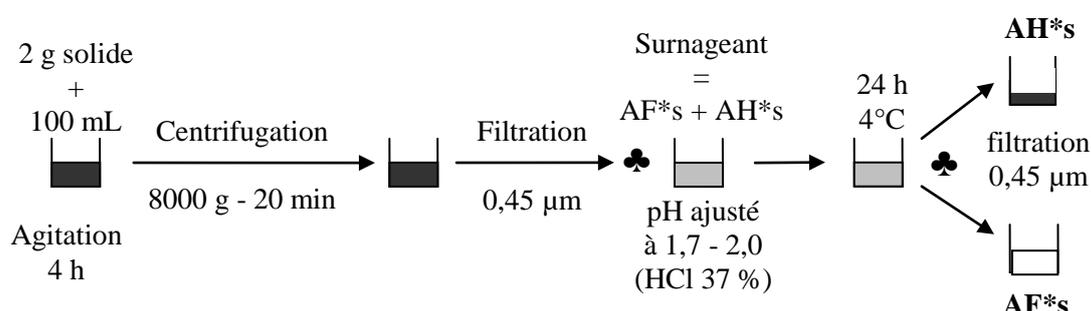


Figure 26 : Protocole d'extraction des substances de type humiques et fulviques.

Les concentrations sont déterminées par le biais de mesure du carbone organique dissous (COD) aux différentes étapes du protocole (notés ♣ sur la Figure 26) ; elles sont données par l'Équation 5 et l'Équation 6.

$$\text{Équation 5} \quad [\text{AF}^*_{\text{s}}] = [\text{COD}_{\text{AF}^*_{\text{s}}}] \times \frac{V}{m} \quad \text{gAF}^*_{\text{s}}/\text{kgMS}$$

$$\text{Équation 6} \quad [\text{AH}^*_{\text{s}}] = ([\text{COD}_{(\text{AF}^*_{\text{s}} + \text{AH}^*_{\text{s}})}] - [\text{COD}_{\text{AF}^*_{\text{s}}}] ) \times \frac{V}{m} \quad \text{gAH}^*_{\text{s}}/\text{kgMS}$$

$V$  : volume de NaOH

$[\text{COD}_{(\text{AF}^*_{\text{s}} + \text{AH}^*_{\text{s}})}]$  : concentration en COD de la fraction  $\text{AF}^*_{\text{s}} + \text{AH}^*_{\text{s}}$  (mg/L)

$[\text{COD}_{\text{AF}^*_{\text{s}}}]$  : concentration en COD de la fraction  $\text{AF}^*_{\text{s}}$  (mg/L)

$m$  : masse de la prise d'essai (kg)

De plus, à partir de la teneur en acides fulviques et humiques, il est possible de calculer le ratio RH qui correspond au rapport de la teneur en composés de type acides humiques (AH\*s) sur la teneur en composés de type acides fulviques (AF\*s).

En phase solide, l'analyse des métaux s'effectue après minéralisation de  $1 \pm 0,01$  g de déchet avec 30 mL d'eau régale (2/3 d'HCl et 1/3 d'HNO<sub>3</sub>). Le minéralisat obtenu est repris dans une fiole jaugée de 50 mL avec de l'eau distillée puis filtré sur des membranes en nylon de porosité 0,45 µm. La mesure de la concentration en métaux est réalisée grâce à un Spectrophotomètre d'Absorption Atomique Four (SAA Four VARIAN SpectrAA 800) ; la méthodologie appliquée est développée par la suite (Partie II - V.2.3).

Parallèlement à ces mesures réalisées au GRESE, d'autres analyses sont réalisées par VERI : matière sèche (MS), matière volatile (MV), carbone organique total (COT), azote Kjeldhal (NTK) et potentiel bio-méthanogène (BMP). L'objectif est de caractériser au mieux la matrice utilisée afin d'en connaître parfaitement la composition et le potentiel en condition de stockage.

## **IV. Analyses du gaz**

L'analyse des émissions gazeuses est un paramètre important dans les études de la dégradation anaérobie des déchets ménagers et assimilés. De nombreuses études considèrent que le biogaz peut être à lui seul indicateur des performances d'un système. Ainsi, l'aspect quantitatif et qualitatif du biogaz produit est suivi à tous les niveaux du projet : casier ELIA, pilotes BIOPTIME, test de lixiviation et test BMP. Pour l'ensemble des études pilotes, les mesures sont réalisées par VERI. Les données observées seront ensuite reprises pour l'interprétation des résultats obtenus en phase liquide et solide dans le but de mettre en place des bilans.

### **IV.1. Casiers ELIA**

Les émissions gazeuses ont été suivies de manière identique pour les quatre casiers. Chaque casier est relié à son propre débitmètre par un réseau de dégazage indépendant. Une pompe permet d'amener le biogaz à un analyseur infrarouge pour le suivi en continu de la teneur en CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub> ou de remplir un sac TEDLAR pour une caractérisation approfondie du biogaz. Dans le cadre de cette étude, ne seront retenus que les gaz majoritaires : N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub> (de l'ordre du %). Le CO<sub>2</sub> et le CH<sub>4</sub> ont été suivis en continu grâce à un analyseur infrarouge BINOS équipé d'un condenseur à effet Peletier et d'un automate (BIOS'AR développé par l'INSA de Toulouse). Ce système permet de balayer les 4 voies d'analyse correspondant aux 4 casiers expérimentaux. Ponctuellement, les teneurs en O<sub>2</sub> et N<sub>2</sub> ont été mesurées soit avec un micro chromatographe (VARIAN 4200) équipé d'une colonne à tamis moléculaire, soit à l'aide d'un analyseur portable (GA 94-Analytical).

### **IV.2. Pilotes BIOPTIME**

Le volume du biogaz des pilotes 68 L est mesuré à l'aide d'un totaliseur ; la mesure de la pression instantanée permet de vérifier les valeurs du totaliseur. La qualité du biogaz est déterminée par chromatographie gazeuse (CP-4900 - micro GC avec l'hélium comme gaz vecteur). Les pourcentages de CH<sub>4</sub>, H<sub>2</sub>S, CO<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>, H<sub>2</sub> sont mesurés une fois par jour. La nature des composés et leur proportion sont déterminées grâce au micro-GC car leur quantité est proportionnelle à l'aire du pic chromatographique.

### IV.3. Test de lixiviation et test BMP

Une procédure de couplage entre test de lixiviation et test BMP a été mise en place en collaboration entre le GRESE pour la partie lixiviation et l'INSA de Toulouse pour la partie BMP.

Tout au long du test de lixiviation, le volume de gaz produit et sa composition sont mesurés quotidiennement. Le volume produit est mesuré par déplacement d'un volume d'eau dans une colonne graduée (précision  $\pm 0,2$  mL). La composition du gaz produit est déterminée grâce à un analyseur en ligne de type Innova Air Tech Instrument / 1313 Fermentation Monitor. Il mesure simultanément le pourcentage de  $\text{CH}_4$ ,  $\text{CO}_2$  et  $\text{O}_2$ . Cette méthode de mesure ne nécessite que de petites quantités de gaz de l'échantillon, en fournissant des résultats très rapides. Le débit d'échantillonnage est de 130 mL/minute.

Pour le test BMP, un prélèvement gazeux est réalisé ainsi qu'une analyse de sa composition lorsque la pression dans la bouteille est suffisante ( $> 0,4$  bars). Un Chromatographe en Phase Gazeuse (HP 5890 avec détecteur de conductivité, colonne HAYSEP D, gaz vecteur : Argon) est utilisé. Les teneurs en  $\text{CH}_4$ ,  $\text{CO}_2$ ,  $\text{N}_2$  et  $\text{H}_2$  sont déterminées.

## V. Analyses des lixiviats et des jus de lixiviation

Aucune méthode de référence n'existe pour évaluer la dégradation des déchets, seules certaines analyses biologiques ou chimiques sont préconisées. Dans le cadre de cette étude, seuls les indicateurs jugés comme les plus pertinents sont pris en considération. Ainsi, le contrôle de l'avancement de la dégradation du déchet s'effectue sur le lixiviats par des mesures générales comme le pH, la conductivité... ou des paramètres globaux liés à la matière organique (DCO, COT, COD,  $\text{DBO}_5$  ...) puis par fractionnement de la matière organique en fonction du caractère hydrophobe des molécules.

Les lixiviats résultants des différents tests de lixiviation et les lixiviats des pilotes et casiers expérimentaux sont analysés de façon similaire.

### V.1. Conservation des échantillons

Les lixiviats issus des pilotes BIOPTIME et des casiers ELIA sont récupérés par le biais d'un écoulement gravitaire. Ils sont transportés dans des flacons en polyéthylène hermétiquement fermés de VERI (site de Limay) jusqu'à l'ENSIL où sont effectuées les différentes analyses. Tout au long du transport, ils sont maintenus au frais. Une fois réceptionnés, ils sont stockés à  $4^\circ\text{C}$  de manière à limiter toute activité biologique et dans un souci d'évolution du système, l'analyse des paramètres globaux et le fractionnement de la matière organique sont effectués au plus vite. En effet, des transformations de la matière organique ont lieu durant la phase de transport et de stockage. Le COD peut diminuer de 9 % après 15 jours de stockage au contact de l'air (Lagier, 2000). De plus, certaines analyses physico-chimiques (pH,  $\text{N}_{\text{tot}}$ , DCO...) sont réalisées en complément directement sur le site à l'aide de kits d'analyse rapide.

Les jus de lixiviation issus des tests de lixiviation sont analysés immédiatement après séparation de la phase solide et de la phase liquide puisqu'ils ne subissent aucun transport (tests réalisés au GRESE).

## V.2. Analyses réalisées

La caractérisation des lixiviats et des jus de lixiviation est réalisée par la mesure de divers paramètres selon les normes AFNOR en vigueur (Tableau XXIX). Pour chaque paramètre, le lixiviat doit être filtré avec un seuil de coupure adapté à la mesure réalisée.

La mesure des Matières En Suspension (MES) et des Matières Volatiles en Suspension (MVS) n'est appliquée que sur les jus de lixiviation et permet d'apprécier la nature du transfert particulaire entre la phase solide et la phase liquide au cours du test de lixiviation. Un volume connu de jus de lixiviation (V) est filtré sur une membrane en fibre de verre de porosité 1,2 µm préalablement rincée à l'eau distillée, séchée à 105°C et pesée. Le filtre est placé dans un creuset en porcelaine puis mis à l'étuve à 105°C jusqu'à stabilisation de la masse. La pesée après séchage permet de déterminer la teneur en MES exprimée en g/L selon l'Équation 7.

$$\text{Équation 7} \quad \text{MES} = \frac{m_{105^{\circ}\text{C}}}{V} \quad \text{en gMES/L}$$

$m_{105^{\circ}\text{C}}$  : masse après séchage à 105°C (g)

V : volume de la prise d'essai (L)

Le creuset contenant le filtre est ensuite mis au four à 550°C pendant deux heures puis refroidi et pesé donnant accès à la teneur en Matières Minérales en Suspension (MMS) et en Matières Volatiles en Suspension selon l'Équation 8 et l'Équation 9. La matière organique est assimilée à la matière volatile à 550°C.

$$\text{Équation 8} \quad \text{MVS} = \frac{m_{105^{\circ}\text{C}} - m_{550^{\circ}\text{C}}}{V} \quad \text{en gMO/L}$$

$$\text{Équation 9} \quad \text{MMS} = \frac{m_{550^{\circ}\text{C}}}{V} \quad \text{en gMM/L}$$

$m_{105^{\circ}\text{C}}$  : masse après séchage à 105°C (g)

$m_{550^{\circ}\text{C}}$  : masse après calcination à 550°C (g)

V : volume de la prise d'essai (L)

Le pH et le potentiel redox (Eh) sont les premiers indicateurs de dégradation utilisés car ils conditionnant le développement de certaines réactions ou inversement sont le reflet des phénomènes se produisant au cœur du système. De plus, ils permettent de se situer dans les différentes étapes de dégradation des déchets (Christensen et Kjeldsen, 1989) ; phases correspondant à l'hydrolyse, l'acidogénèse, l'acétogénèse, la méthanogénèse et la maturation.

La quantité d'oxygène dissous est évaluée au moyen d'un oxymètre possédant une sonde de température qui compense la mesure de l'O<sub>2</sub> dissous. En effet, La concentration en O<sub>2</sub> dissous varie fortement avec les paramètres du milieu tels que la température, la salinité ou la pression. Indicateur d'activité biologique, le taux d'O<sub>2</sub> dissous peut être interprété comme une potentialité de développement d'organismes aérobies ou anaérobies.

Tableau XXIX : Caractéristiques des méthodes et des appareillages de mesure.

Paramètres		Unité	Seuil de coupure	Référence et/ou Norme	Méthode et/ou Appareil	Précision et/ou Limite de détection
Matières En Suspension Matières Volatiles en Suspension	MES MVS	g/L	brut	NF EN 872 T90-105	-	-
pH	-	-	brut centrifugation	NF T90-008	pH-mètre : Eutech Instrument Modèle : CyberScan pH 510 Electrode : verre combiné Ag/AgCl	± 0,1 unité pH
Conductivité	$\chi$	mS/cm	brut centrifugation	NF EN 27888 T90-031	Marque : WTW Modèle : LF 538 Cellule de mesure : Tetracon 325	10 °C < T°C < +55°C erreur max = 0,5%.
Titre Alcalimétrique Titre Alcalimétrique Complet	TA TAC	gCaCO <sub>3</sub> /L	0,45 µm	NF T90-036	Technique : dosage potentiométrique	-
Principaux ions	-	g/L	0,2 µm	-	Technique : chromatographie ionique Appareil : DIONEX DX-120	± 5% d'erreur 0 à 15ppm
Azote Total	<i>N<sub>tot</sub></i>	gN/L	0,45 µm	-	Technique : Kit d'analyse rapide Marque : Dr Lange® LCK 338	20 - 100 mgN/L
Azote Kjeldhal	NTK	gNTK/L	0,45 µm	NF EN 25663 T90-110		-
Potentiel RedOx	Eh	mV	centrifugation	-	Modèle : Metrohm 744 Electrode : platine	± 0,01 mV
Teneur en Oxygène dissous	O <sub>2</sub>	gO <sub>2</sub> /L	centrifugation	NF EN 25814 T90-106	Marque : WTW Modèle : OXI 340 Sonde : OXICAL SL	-

Paramètres		Unité	Seuil de coupure	Référence et/ou Norme	Méthode et/ou Appareil	Précision et/ou Limite de détection
Acides Gras Volatils	AGV	gCH <sub>3</sub> COOH/L	0,45 µm	-	Technique : dosage potentiométrique	-
Demande Biologique en Oxygène au bout de 5 et 21 jours (ultime)	DBO <sub>5</sub> DBO <sub>u</sub>	gO <sub>2</sub> /L	0,45 µm	NFT 90-103	Oxitops WTW	-
Demande Chimique en Oxygène	DCO	gO <sub>2</sub> /L	brut centrifugation 0,45 µm	T90-101 ISO 15705	Technique : Kit d'analyse rapide Marque : Dr Lange® LCK 914	150 – 1000mgO <sub>2</sub> /L ± 6 mg O <sub>2</sub> /L
Carbone Organique Dissous	COD	gC/L	0,45 µm	-	Marque : DOHRMANN Modèle : Phoenix 8000	0,1 - 20 mgC/L 0,2 mgC.L <sup>-1</sup>
Absorbance UV 254nm	-	-	0,45 µm	-	Technique : spectrophotomètre UV - visible Marque : Shimatzu UV 1700 PharmasPec double faisceau – cuve quartz 1cm	± 0,005 unité DO
Métaux (Cu, Ni, Pb)	-	µg.L <sup>-1</sup>	0,45 µm	-	Appareil : SAAfour VARIAN AA 800 Système de correction : Zeeman Four : graphite	Cu : 2 µgCu.L <sup>-1</sup> Ni : 2 µgNi.L <sup>-1</sup> Pb : 3 µgPb.L <sup>-1</sup>
Acides de type Humique	AH*	%	0,45 µm	Thurman et Malcolm, 1981	Précipitation à pH 2	± 3%
Fractionnement de la matière organique selon le caractère hydrophobe	HPO* TPH* HPI*	%	0,45 µm	Berthe <i>et al.</i> , 2008	Colonne : acier inox Volume échantillon : 156mL Volume résine : 5mL k' : 25 Débit : 50mL/h	± 3%

\* centrifugation à 8000g durant 20 min à 4°C

### V.2.1. Charge minérale

La charge minérale s'exprime à travers la mesure de la conductivité. Elle apporte une information sur la quantité totale d'espèces chargées présentes dans le milieu considéré. Un détail des espèces présentes est donné par le dosage des cations ( $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{NH}_4^+$ ) et des anions ( $\text{Cl}^-$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{NO}_2^-$ ,  $\text{PO}_4^{3-}$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ) majeurs.

L'étude de la charge minérale est complétée par la mesure du Titre Alcalimétrique (TA) et du Titre Alcalimétrique Complet (TAC) qui correspondent respectivement à la teneur en carbonates ( $\text{CO}_3^{2-}$ ) et hydrogénocarbonates ( $\text{HCO}_3^-$ ). Le dosage du TA et du TAC s'effectue par dosages potentiométriques. Sur une prise d'essai de 25 mL (volume V), le pH est ajusté à 8 avec de l'acide sulfurique ( $\text{H}_2\text{SO}_4$ ) à 0,1 N (volume  $V_1$ ) ; si le pH est inférieur à 8 le TA est considéré comme nul ; le pH est alors ajusté à 4 (volume  $V_2$ ) pour obtenir le TAC. Les valeurs de TA et TAC sont obtenues par le biais de l'Équation 10 et de l'Équation 11.

$$\text{Équation 10} \quad \text{TA} = \frac{V_1 \times [\text{H}_2\text{SO}_4]}{V} \times M \quad \text{en gCaCO}_3/\text{L}$$

$$\text{Équation 11} \quad \text{TAC} = \frac{V_2 \times [\text{H}_2\text{SO}_4]}{V} \times M \quad \text{en gCaCO}_3/\text{L}$$

$V_1$  : volume d' $\text{H}_2\text{SO}_4$  pour atteindre pH 8 (L)

$V_2$  : volume d' $\text{H}_2\text{SO}_4$  pour atteindre pH 4 (L)

V : volume de la prise d'essai (L)

M : masse molaire de  $\text{CaCO}_3$  (g/mol)

L'azote total est mesuré ainsi que les formes  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{NO}_2^-$  et  $\text{NO}_3^-$ . Un bilan complet des différentes formes de l'azote peut donc être réalisé. La quantité d'azote total est déterminée grâce à un kit d'analyse rapide (LCK 338) alors que les formes ioniques sont déterminées par chromatographie ionique. L'azote Kjeldhal est quant à lui quantifié par minéralisation au sélénium et alcalinisation à la soude ; le protocole appliqué est similaire à celui pour le déchet solide.

L'azote total ( $N_{\text{tot}}$ ) correspond à l'expression  $N_{\text{tot}} = N_{\text{org}} + \text{NH}_4^+ + \text{NO}_2^- + \text{NO}_3^-$  et l'azote Kjeldhal (NTK) à l'expression  $\text{NTK} = N_{\text{org}} + \text{NH}_4^+$

### V.2.2. Métaux

Au vue des différentes études mentionnées dans la littérature, trois espèces métalliques ont été choisies afin d'être suivies dans le déchet mais également en phase liquide (lixiviat issu des pilotes et jus de lixiviation). Le choix de ces éléments métalliques s'est effectué en fonction de leur aptitude à être mobilisés et selon la forme sous laquelle ils sont présents. L'ajout de mâchefers en tant que prétraitement a également été un facteur important dans ce choix. En effet, les mâchefers contiennent une quantité importante d'éléments métalliques plus ou moins toxiques qui sont susceptibles d'être relargués dans le lixiviat ou de rester piégés au sein du massif de déchets. Ainsi, le cuivre (Cu), le plomb (Pb) et le nickel (Ni) ont été choisis au regard de leur capacité à se complexer respectivement à la matière organique et à la matière minérale du lixiviat (Legret et al. 1987). En outre, le nickel et le cuivre présente une grande aptitude à être mobilisés (Flyhammar et

Håkansson, 1999). Le plomb pourtant moins mobile est présent en forte quantité dans les mâchefers et possède une toxicité importante (Chaspoul *et al.*, 2008).

Le dosage des métaux nécessite au préalable une minéralisation de l'échantillon de manière à éviter les interactions de la matrice organique. Celle-ci est réalisée à chaud avec de l'eau régale (2/3 d'HCl et 1/3 d'HNO<sub>3</sub>). En phase liquide (lixiviat et jus de lixiviation), 2 mL d'échantillon filtré à 0,45 µm est chauffé à 150°C pendant 2 heures avec 3 volumes de HCl à 37 % (1,2 mL) pour 1 volume de HNO<sub>3</sub> à 69 % (0,6 mL). Le minéralisât est ensuite filtré sur des membranes en nylon de porosité 0,45 µm.

La mesure de la concentration en métaux est réalisée avec les appareils disponibles au laboratoire : Spectrophotomètre d'Absorption Atomique Flamme (SAA Flamme VARIAN SpectrAA) ou Spectrophotomètre d'Absorption Atomique Four (SAA Four VARIAN SpectrAA 800) selon l'ordre de grandeur des concentrations respectivement en mg/L ou µg/L. Une première analyse au SAA Flamme permet de déterminer dans quel ordre de grandeur les différents métaux sont présents dans un lixiviat provenant d'un déchet reconstitué. En effet, peu de données relatives à ce type de déchet sont mentionnées dans la littérature. Les valeurs obtenues recommandent l'utilisation d'un SAA Four.

L'appareil utilisé est un spectromètre d'absorption atomique à atomisation électro-thermique équipé d'un système de correction de fond Zeeman. L'analyse se base sur l'absorption de photons par les atomes à l'état fondamental à une longueur d'onde spécifique de l'élément à doser. L'échantillon est aspiré et injecté dans un four électrothermique en graphite qui atomise l'élément. L'absorbance est alors mesurée et la concentration de l'élément est déterminée grâce à une droite d'étalonnage.

Le dosage étant soumis à de fortes interactions de la matrice organique il est nécessaire de vérifier si la minéralisation permet de s'affranchir de ce type d'interactions. La méthode des ajouts dosés est utilisée pour les analyses réalisées en SAA Four sur les 3 principaux métaux étudiés : Pb, Cu et Ni. Cette technique consiste en un ajout de concentrations connues et croissantes de l'élément à doser ; la droite obtenue permet de calculer la concentration initiale d'éléments à doser. Au vue des résultats obtenus (Annexe 3), il semblerait que la méthode de minéralisation appliquée à ce type d'échantillon permet de s'affranchir des interactions liées à la matière organique.

### V.2.3. Charge organique

L'étude de la charge organique s'effectue par la détermination de différents paramètres caractéristiques tels que la Demande Chimique en Oxygène (DCO) ou le Carbone Organique Dissous (COD).

Dans la littérature, les valeurs de COT et COD sont généralement prises en considération. Cependant, compte tenue des faibles écarts systématiquement observés entre COD et COT dans les lixiviats, seule la mesure du COD sera conservée. Ainsi, la concentration en Carbone Organique Dissous (COD) est mesurée grâce à un analyseur de carbone de marque DOHRMANN modèle Phoenix 8000 utilisant un système d'oxydation chimique par voie humide. Ce dosage s'effectue en plusieurs étapes. Dans un premier temps, le carbone minéral est éliminé sous forme de CO<sub>2</sub> par bullage d'azote (pendant 120 secondes) après acidification de l'échantillon avec de l'acide orthophosphorique (0,5 mL d'acide orthophosphorique à 20 %). Ensuite, du persulfate de sodium (1 mL à 100 g/L) est introduit dans l'échantillon pour oxyder le carbone organique à 100°C et former du CO<sub>2</sub> qui est également purgé puis détecté par infrarouge. Le principe de quantification repose sur une relation de proportionnalité entre la quantité de CO<sub>2</sub> et la masse de carbone contenue dans l'échantillon. La détermination de la quantité de carbone organique est réalisée par rapport à une droite d'étalonnage obtenue à partir d'une solution connue d'hydrogénéphthalate de potassium. Les

échantillons sont préalablement filtrés à 0,45 µm puis dilués (à l'eau distillée) pour être dans la gamme de mesure.

La Demande Chimique en Oxygène (DCO) exprime la quantité d'oxygène nécessaire pour oxyder la matière organique (biodégradable ou non). La mesure est effectuée après filtration à 0,45 µm par une méthode colorimétrique en microtubes (ISO 15705) ou par kit d'analyse rapide (LANGE® LCK 914). Ces deux techniques fonctionnent de façon similaire, l'échantillon est oxydé à chaud, en milieu acide, en présence d'un excès d'oxydant ( $K_2Cr_2O_7$ ). Pour employer cette technique, la teneur en nitrites, sulfures et chlorures ne doit pas dépasser 2000 mg/L ; les échantillons sont donc dilués afin de limiter les interférences.

La concentration en AGV est déterminée grâce à une méthode potentiométrique. Sur une prise d'essais de 25 ml d'échantillon, le pH est ajusté à 3,5 avec du  $H_2SO_4$  (0,1 N). Le lixiviat est ensuite chauffé pendant 3 minutes de manière à dégazer le dioxyde de carbone. La solution est refroidie à température ambiante, le pH est ensuite ajusté à 4 (volume  $V_1$ ) puis à 7 (volume  $V_2$ ) avec du NaOH 0,1 N. L'acidité volatile (concentration en AGV en g/l) est déterminée grâce à la l'Équation 12.

$$\text{Équation 12} \quad \text{AGV} = \frac{(V_2 - V_1) \times [\text{NaOH}] \times M}{V} \quad \text{en gCH}_3\text{COOH/L}$$

$V_1$  : volume de NaOH pour aller à pH 4 (L)

$V_2$  : volume de NaOH pour aller à pH 8 (L)

$V$  : volume de la prise d'essai (L)

$M$  : masse molaire de  $CH_3COOH$

La Demande Biologique en Oxygène correspond à la quantité d'oxygène nécessaire pour oxyder les matrices organiques (biodégradables) par voie biologique (oxydation par des bactéries). Ce paramètre constitue un bon indicateur car il permet d'évaluer la fraction biodégradable de la charge polluante carbonée ; toute matière organique biodégradable polluante va entraîner une consommation d' $O_2$ . Cette mesure est réalisée en utilisant des oxitops WTW à 20°C (température favorable à l'activité des micro-organismes consommateurs d'oxygène) et à l'obscurité (afin d'éviter toute photosynthèse parasite) durant 5 et 21 jours correspondant respectivement à une  $DBO_5$  et une DBO dite ultime. Une inoculation avec de l'eau de sortie de station d'épuration est nécessaire (entre 8 et 13 % du volume d'échantillon) ; la demande liée à l'inoculum est prise en compte dans celle de l'échantillon.

La mesure de l'absorbance UV à 254 nm permet de traduire le caractère aromatique de la matière organique. La méthode est basée sur la propriété de certaines molécules organiques à absorber dans l'UV grâce à leurs liaisons conjuguées (noyaux aromatiques). Ainsi, la quantité d'atomes de carbone liés par des doubles liaisons est quasiment proportionnelle à la quantité totale de matière organique sachant que la proportion de noyaux aromatiques dépend du type de matière organique.

En outre, différents rapports peuvent être calculés à partir de la mesure de ces paramètres liés à la charge organique. L'objectif est de caractériser au mieux la matière organique et la dégradation des déchets. Le rapport DCO/COD est un indicateur de dégradation des déchets tout comme le ratio  $DBO_5/DCO$  (François *et al.*, 2006). L'indice SUVA correspondant au rapport absorbance UV à 254 nm sur le COD est un indicateur de la prédominance ou non des noyaux aromatiques par rapport à la quantité totale de carbone organique et donc du caractère aromatique des molécules. Il permet de traduire le caractère hydrophobe des molécules organiques.

### V.2.4. Fractionnement de la matière organique selon le caractère hydrophobe

La caractérisation du lixiviat est réalisée par la mesure de paramètres globaux. Cependant, utilisés seuls ces paramètres ne permettent pas d'évaluer l'état de dégradation d'un déchet ou de discuter de l'état de stabilisation du centre de stockage dans la mesure où, même s'ils n'évoluent plus significativement, des réactions continuent de se produire au sein de la masse de déchets (François *et al.*, 2006 ; Berthe *et al.*, 2008). De ce fait, une étude plus approfondie de la matière organique est réalisée en appliquant un protocole de fractionnement selon le caractère hydrophobe des molécules de façon à disposer d'un indicateur pertinent de l'état de dégradation du déchet (Berthe *et al.*, 2008 ; Labanowski et Feuillade, 2009). Ce fractionnement s'effectue en plusieurs étapes distinctes mais indissociables (Figure 27).

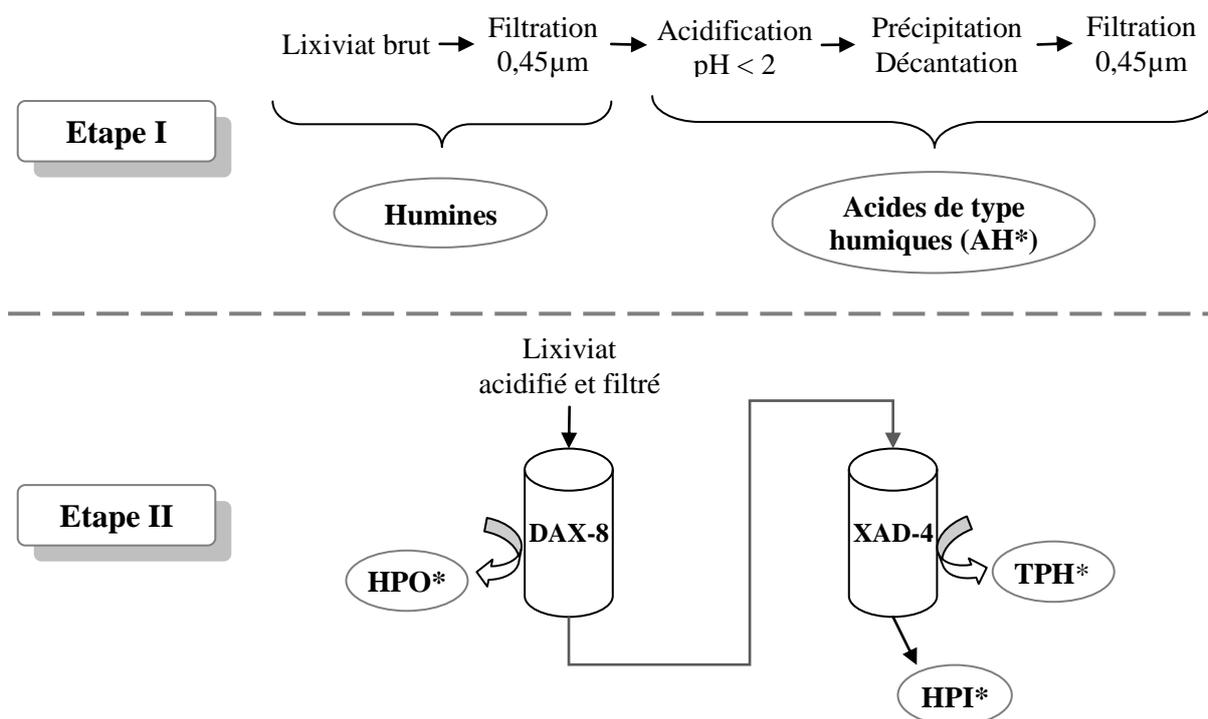


Figure 27 : Protocole de séparation des acides de type humique et de fractionnement de la matière organique du lixiviat.

La première étape consiste à déterminer la proportion d'humines et d'acides de type humique : AH\* (Thurman et Malcolm, 1981 ; Christensen *et al.*, 1998). Les humines, insolubles quelque soit le pH, sont éliminées par filtration sur membrane en nitrate de cellulose de porosité 0,45 µm. L'échantillon est alors acidifié (pH compris entre 1,7 et 2) de manière à entraîner la précipitation des acides de type humique (AH\*) qui sont ensuite éliminés par filtration sur 0,45 µm.

Les substances hydrophiles sont ensuite fractionnées selon leur caractère hydrophobe grâce à des résines macroporeuses non ioniques de type XAD et DAX. Ces résines sont commercialisées sous forme sèche et nécessitent un conditionnement avant la première utilisation. Après rinçage et conditionnement à pH 2, les résines sont introduites dans des colonnes en acier en prenant soin de ne jamais les laisser sécher. L'échantillon à pH 2 est injecté à travers les colonnes avec un débit de 50 mL/h par une pompe péristaltique ; il passe successivement sur la résine DAX-8 et sur la résine XAD-4. Le volume d'échantillon à passer au travers des colonnes dépend du volume de résine ainsi que d'un coefficient de capacité  $k'$  (masse de composés sur la résine par rapport à la masse de composés dans la phase mobile). Le volume d'échantillon est donné par l'Équation 13.

$$\text{Équation 13} \quad V_{\text{éch}} = 2 * V_0 * (1+k')$$

$V_0$  : volume mort de la colonne de résine (60 % du volume du lit)

$V_{\text{éch}}$  : volume d'échantillon filtré

$k'$  : coefficient de capacité

Le suivi de l'évolution de la matière organique nécessite de se placer toujours à une même valeur de  $k'$ . Une valeur de  $k'$  comprise entre 0 et 100 est adaptée pour le fractionnement de lixiviat (J. Labanowski et al. 2003). Ainsi, une valeur de  $k'$  de 25 permet d'obtenir un volume de résine de 5 mL et un volume d'échantillon de 156 mL ; ces valeurs sont adaptées au lixiviat.

Les proportions de chaque composé sont déterminées par mesure du COD en entrée et en sortie de colonne en prenant soin d'évacuer le volume mort situés dans le tuyau et la colonne. Les pourcentages des fractions sont calculés à partir de l'Équation 14, de l'Équation 15 et de l'Équation 16.

$$\text{Équation 14} \quad \% \text{ HPO} * = 100 * \frac{\text{COD}_i - \text{COD}_{\text{DAX} - 8}}{\text{COD}_i}$$

$$\text{Équation 15} \quad \% \text{ TPH} * = 100 * \frac{\text{COD}_{\text{DAX} - 8} - \text{COD}_{\text{XAD} - 4}}{\text{COD}_i}$$

$$\text{Équation 16} \quad \% \text{ HPI} * = 100 * \frac{\text{COD}_{\text{XAD} - 4}}{\text{COD}_i}$$

$\text{COD}_i$  : concentration en COD initiale

$\text{COD}_{\text{DAX}-8}$  : concentration en COD après passage sur la résine DAX-8

$\text{COD}_{\text{XAD}-4}$  : concentration en COD après passage sur la résine XAD-4

Après utilisation, les résines sont désorbées à l'aide d'un mélange acétonitrile - eau (25 - 75 %) puis d'une solution de NaOH à 0,1 M.

## **VI. Potentiel de relargage des déchets**

L'accès au potentiel de relargage des déchets s'effectue par le biais de Test de Lixiviation (TL) ou de tests BMP dont les conditions opératoires spécifiques permettent d'évaluer respectivement la part de composés rapidement ou lentement mobilisables et le potentiel bio-méthanogène de la matrice considérée. Ces données sont essentielles afin de connaître le potentiel de dégradation d'un déchet notamment dans le cas d'un déchet prétraité.

### **VI.1. Optimisation du test de lixiviation**

Un test de lixiviation peut être utilisé pour simuler, sous conditions accélérées, les phénomènes de lessivage survenant dans un centre de stockage. Le potentiel de relargage estimé par lixiviation est dépendant de plusieurs facteurs liés au solide, au liquide ainsi qu'au mode opératoire mis en œuvre. Les différents tests permettent d'évaluer les conditions opératoires favorables à la mise en évidence dans le déchet de composés organiques hydrosolubles où à l'inverse de macromolécules organiques

lentement mobilisables. En effet, le comportement à la lixiviation des composés organiques est principalement contrôlé par des processus de dissolution et/ou de sorption/désorption liés avec la présence de matière organique dissoute (Kalbe *et al.*, 2008). Le protocole normalisé français (EN 12457/1-4) couramment utilisé pour les déchets ménagers est souvent été critiqué quant à sa fiabilité et sa capacité à reproduire les conditions in-situ. Par conséquent, il a été adapté dans ce travail un protocole correspondant à des matrices complexes telles que les déchets ménagers (Parodi *et al.*, 2008 ; Parodi *et al.*, 2010).

### VI.1.1. Conditions opératoires

Plusieurs essais de lixiviation ont été mis en œuvre, optimisés et comparés au regard de l'accès à la matière organique disponible dans un déchet d'ordures ménagères. Ainsi, deux types de test sont réalisés :

- une lixiviation de 24 heures correspondant aux conditions opératoires normées (EN 12457/1-4) complétée par un test de 336 heures avec un prélèvement de 5 mL de jus de lixiviation toutes les 24 heures.
- un test avec renouvellement de la solution d'élution toutes les 24 heures pendant 336 heures. Lors de chaque renouvellement, le volume de solution d'élution ajoutée est égal à celui du jus de lixiviation récupéré.

Pour l'ensemble des tests réalisés, un rapport L/S de 10 ( $100,0 \pm 0,1$  g de déchets et  $1,00 \pm 0,01$  L d'éluant) a été appliqué à température ambiante. D'autres auteurs ont utilisé un rapport L/S différent, mais il a été établi qu'une valeur de 10 est favorable à un échange entre les phases solide et liquide (François *et al.*, 2006). L'agitation du mélange liquide / solide s'effectue grâce à un système horizontal d'agitation à la vitesse de 150 tr/min. L'eau ultrapure est utilisée comme solution d'élution (pH = 5,5 ; résistivité = 18,2 mΩ.cm) car elle permet une approche quantitative du phénomène de relargage du déchet tout en réalisant un lessivage de la pollution stockée. Le déchet qui a servi de base pour élaborer et mettre en place le test de lixiviation est le déchet reconstitué utilisé dans les pilotes 68 L du programme BIOPTIME. Sa granulométrie est de 20 mm et sa composition correspond aux données MODECOM de 1993 (ADEME, 1993).

Les jus de lixiviation produits ont été caractérisés par le biais de paramètres physico-chimiques et par fractionnement de la matière organique selon le caractère hydrophobe en utilisant les protocoles précédemment décrits (partie II - V.2.4). En parallèle, la production de biogaz généré a été suivie. Afin de faciliter la comparaison du comportement du déchet pendant le test de lixiviation, les différents résultats sont exprimés par rapport à la masse sèche de déchets (mg/g<sub>MSOU</sub> ou g/g<sub>MS</sub>).

### VI.1.2. Influence de la durée de lixiviation

Un temps de lixiviation de 24 heures est imposé par le protocole normalisé français (EN 12457/1-4). Cependant, selon plusieurs auteurs, une période de 24 heures est trop courte car elle ne permet pas d'extraire une quantité suffisante et représentative de composés initialement présents dans les déchets (Fällman et Aurell, 1996 ; Fällman, 1997). Ainsi, la durée de lixiviation doit être suffisamment longue pour permettre la mise en place d'un équilibre chimique. L'influence de la cinétique de lixiviation n'est pas perceptible si le temps de contact est trop faible (Kalbe *et al.*, 2008).

L'impact du temps de contact est déterminé en le faisant varier de 24 à 336 heures (Figure 28). L'objectif est de déterminer l'influence de la durée sur la mobilisation des molécules organiques de la phase solide vers la phase liquide.

Une durée de lixiviation de 24 heures permet d'extraire environ 50 % de la quantité de composés organiques mobilisés dans la solution au bout de 336 heures de contact ; respectivement  $9,4 \pm 1,6$  gC/kg<sub>MS</sub> et  $22,8 \pm 2,3$  gO<sub>2</sub>/kg<sub>MS</sub> en terme de COD et de DCO. Une quantité importante de

composés minéraux est également relarguée lors des 24 premières heures de contact ; environ 8,3 g/kgMS des ions totaux présents. Ces résultats sont caractéristiques d'un déchet frais possédant un fort potentiel polluant (Kelly, 2002).

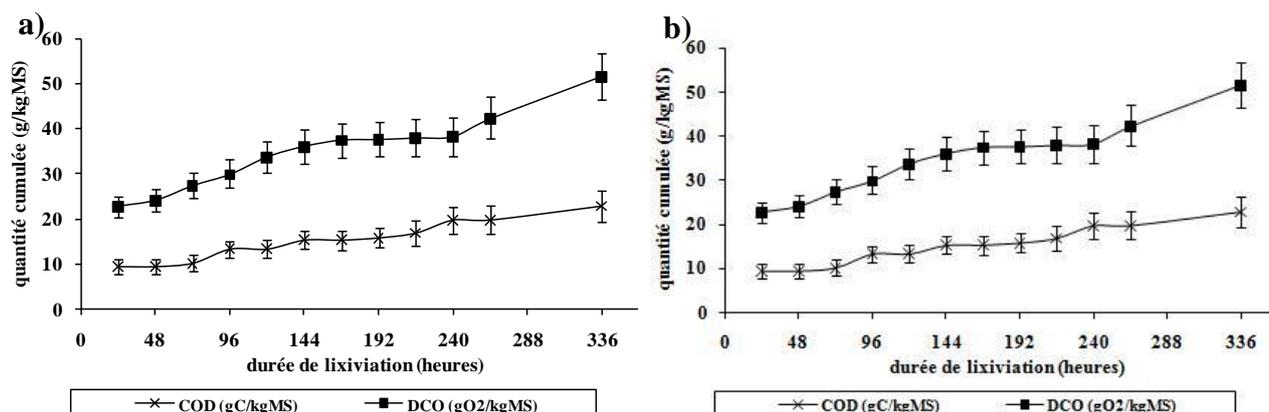


Figure 28 : Evolution de la DCO et du COD au cours de la lixiviation  
a) données expérimentales b) modélisation de l'évolution de la DCO

Entre 24 et 336 heures de lixiviation, 3 parties peuvent se distinguer au niveau de l'évolution de la DCO et du COD. Une modélisation de l'évolution de la DCO au cours de la lixiviation est représentée sur la Figure 28 (b) ; le COD évolue de manière similaire. Lors des 120 premières heures de lixiviation (Partie I), la quantité de DCO relarguée augmente avec une vitesse de 0,11 gO<sub>2</sub>/kgMS/heure puis un équilibre chimique s'établit au sein de la solution (Partie II). La libération de composés organiques reste alors relativement faible (moins de 3 gO<sub>2</sub>/kgMS). Ainsi, un temps de contact suffisamment long crée un équilibre au cours duquel il n'y a plus de transfert de matière entre la phase liquide et la phase solide (Kalbe *et al.*, 2008). Cet équilibre est toutefois modifié par la présence d'une activité biologique. Ainsi, au-delà de 240 heures de lixiviation (Partie III), une forte mobilisation de la matière organique est observée probablement liée au développement d'une flore microbienne au sein de la solution. En effet, dans ces conditions opératoires, une production de biogaz, majoritairement composé de CO<sub>2</sub> a été observée. En outre, la quantité d'espèces minérales lessivées augmente également avec le temps de contact. Cette évolution n'est cependant pas indicative d'un état de dégradation des déchets.

Le temps de contact entre les phases liquide et solide influe également sur le type de molécules organiques extraites (Figure 30). Les résultats liés au fractionnement de la matière organique extraite sont présentés en pourcentage de chaque fraction.

Après 24 heures de lixiviation, la matière organique extraite est encore faiblement humifiée : les molécules sont principalement de type hydrophile (HPI\*). Il s'agit de molécules organiques présentant une faible aromaticité. Cette observation est confirmée par la valeur faible de l'indice SUVA :  $7,9 \pm 0,1$  L/cm/gC (Tableau XXX). En effet, l'indice SUVA se situe généralement aux environs de 5 à 10 L/cm/gC pour des lixiviats contenant des composés organiques peu humifiés et majoritairement hydrophile alors qu'il peut atteindre 100 L/cm/gC pour un lixiviat dit âgé constitué majoritairement de composés hydrophobes (Berthe *et al.*, 2008).

Tableau XXX : Valeurs de l'indice SUVA avec et sans renouvellement (L/cm/gC).

	24 heures	48 heures	120 heures	240 heures	336 heures
sans renouvellement	$7,9 \pm 0,1$	$7,7 \pm 0,1$	$7,6 \pm 0,1$	$6,3 \pm 0,1$	$5,0 \pm 0,1$
avec renouvellement	$8,2 \pm 0,5$	$9,8 \pm 1,2$	$10,3 \pm 0,1$	$12,7 \pm 1,0$	$13,9 \pm 1,2$

La proportion de substances de type humiques (AH\*) est également relativement élevée ( $9,7 \pm 0,3$  %) après 24 heures de lixiviation. Elles correspondent à des composés facilement mobilisables comme des sucres ou des protéines. Ces composés disparaissent par la suite au profit de molécules présentant un degré d'humification moins important (Figure 30) ce qui se traduit par une diminution de l'indice SUVA atteignant  $5,0 \pm 0,1 \text{L/cm/gC}$  après 336 heures de lixiviation.

L'évolution de la charge organique après 240 heures de lixiviation reflétant le début d'une biodégradation en conditions anaérobies par des micro-organismes méthanogènes adaptés peut être reliée à l'évolution du type de molécules organiques extraites (Figure 28). En effet, les composés de type AH\* sont probablement convertis en molécules de type HPO\* et HPI\* par ces microorganismes spécifiques.

En outre, la lixiviation des déchets, quelle que soit sa durée, entraîne une perte de masse liée à un transfert de la phase solide vers la phase liquide ainsi qu'aux pertes expérimentales lors de la séparation liquide/solide (filtration et centrifugation). Cette perte de masse dépend du temps de contact entre le solide et le liquide. A ces phénomènes de transfert peuvent s'ajouter des phénomènes d'échange de molécules entre les deux phases au cours de la lixiviation comme une réprécipitation de certaines classes de composés. Cet échange peut se traduire par une évolution des paramètres analytiques mesurés dans la phase liquide.

### VI.1.3. Influence du renouvellement de la solution d'élution

Le renouvellement de la solution d'élution permet d'estimer la capacité maximale de relargage du déchet, correspondant à l'épuisement de la pollution susceptible d'être remobilisée à long terme dans un milieu non saturé. Une quantité importante de matière organique oxydable est lessivée lors des premiers renouvellements de la solution d'élution (Figure 29). Cette matière organique correspond à la part rapidement mobilisable dite hydrosoluble.

Après 14 renouvellements, la quantité de matière organique extraite représente respectivement  $15,3 \pm 1,6 \text{ gC/kgMS}$  et  $38,2 \pm 1,8 \text{ gO}_2/\text{kgMS}$  en COD et en DCO. Toutefois, un résiduel en matière organique oxydable ( $1,25 \text{ gO}_2/\text{kgMS}$ ) subsiste et reste constant même après un nombre important de renouvellement. En outre, pour une même durée de lixiviation, le protocole sans renouvellement permet d'extraire une quantité plus importante de matière organique.

La proportion de matière organique mobilisée sans renouvellement, où règne une forte activité biologique anaérobie, est plus importante que celle relarguée avec renouvellement où aucune biodégradation n'est observée.

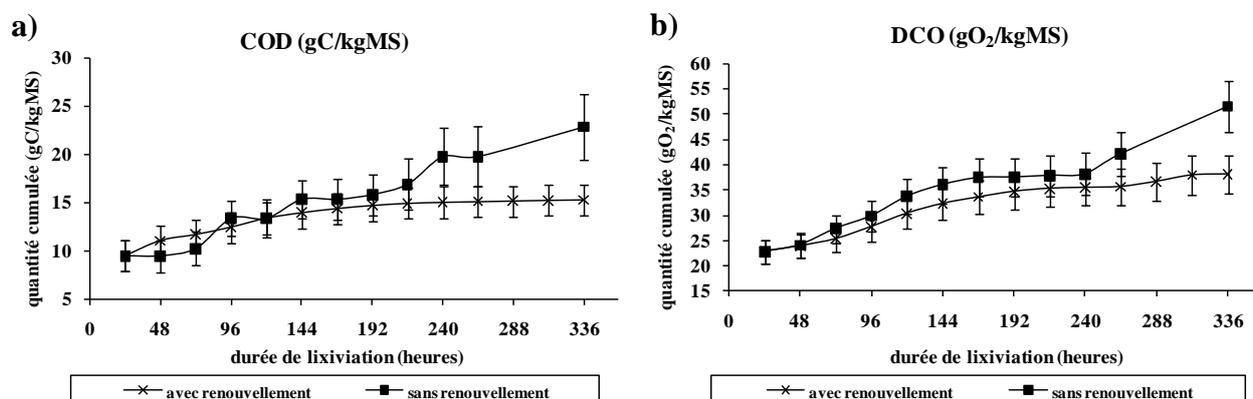


Figure 29 : Evolution du COD (a) et de la DCO (b) au cours de la lixiviation avec ou sans renouvellement.

En effet, le renouvellement est effectué avec une eau distillée qui stoppe et/ou réduit l'activité biologique en éliminant les microorganismes présents dans la solution. De plus, les conditions

aérobies de ce test ne permettent pas la mise en place d'activité microbienne anaérobie. Seule la flore microbienne présente à la surface du déchet est préservée, elle transforme les composés à la surface en substances plus humifiées qui se retrouvent alors dans la phase liquide.

Ainsi, la lixiviation avec renouvellement, libère lors des premiers renouvellements des composés organiques de type hydrophiles (Figure 30). Ces composés disparaissent au profit de molécules ayant un degré d'humification plus important (TPH\* ou HPO\*) et un caractère plus aromatique comme en témoigne l'augmentation de l'indice SUVA.

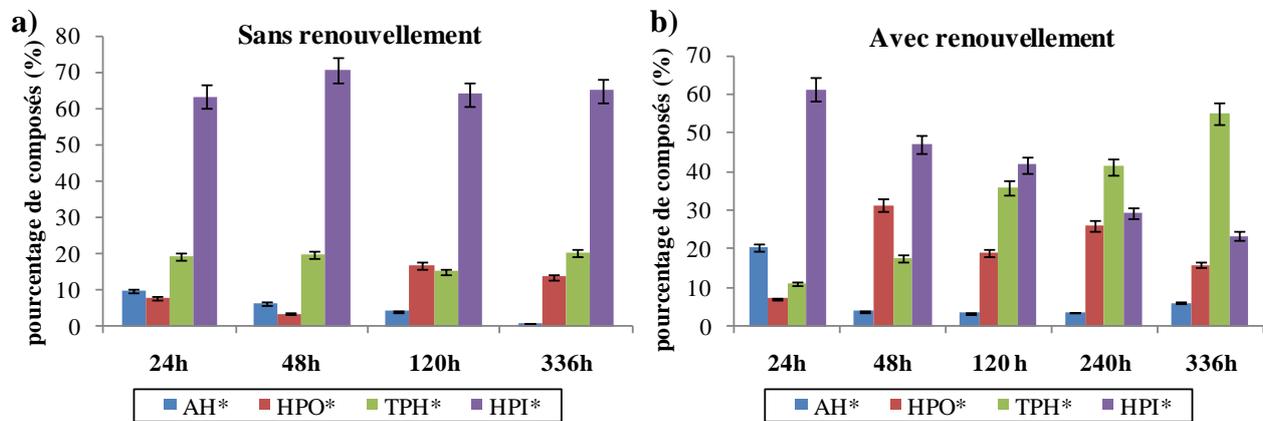


Figure 30 : Caractéristiques des molécules organiques extraites au cours de la lixiviation sans (a) et avec (b) renouvellement.

En effet, l'indice SUVA augmente avec la durée de lixiviation passant de  $8,2 \pm 0,2$  L/cm/gC à  $13,9 \pm 1,2$  L/cm/gC entre 24 et 336 heures de lixiviation (Tableau XXX). Cet indice évolue significativement avec le temps de lixiviation traduisant la présence de molécules organiques de plus en plus aromatiques.

Sans renouvellement, la matière organique extraite après 336 heures de lixiviation est quant à elle principalement constituée de composés de type hydrophile (Figure 30). Ainsi, le changement répété de la solution d'éluion provoque la libération de composés organiques de plus en plus aromatiques contrairement au procédé sans renouvellement. Le transfert de ces molécules organiques en solution est forcé par le renouvellement sans respecter l'équilibre chimique du système. Ces conditions de renouvellement sont semblables à celles obtenues lors d'un traitement passif aérobie des déchets alors que sans renouvellement, les conditions opératoires (sans oxygène) sont plus proches de celles d'un centre de stockage.

#### VI.1.4. Choix du test de lixiviation à appliquer

Les résultats obtenus après 24 heures de lixiviation apportent des informations sur les composés facilement et rapidement mobilisables et dépendent essentiellement de la composition des déchets. La part de ces composés dans la phase liquide donne une première information sur le degré de dégradation du déchet. Après 336 heures de lixiviation, le transfert de la phase solide vers la phase liquide continue puisque le COD et DCO augmentent encore ; l'état d'équilibre n'est pas encore atteint. De plus, la matière organique a évolué au sein de la solution entre 24 et 336 heures ; les composés devenant de plus en plus hydrophiles. Cette évolution traduit le début d'une biodégradation également mise en évidence par une production de biogaz en conditions anaérobies. Ainsi, l'hypothèse de la transformation des AH\* et HPO\* en HPI\* au sein de la solution par des microorganismes spécifiques peut être avancée. Les capacités du milieu à générer des composés de plus en plus hydrophiles informe sur la biodégradabilité des espèces mobilisées et donc sur la composition et l'état de stabilisation du déchet.

Compte tenu de l'objectif visé par ce test de lixiviation, la mise en place d'un renouvellement de la solution d'élution ne semble pas nécessaire. En effet, les conditions opératoires imposées par un renouvellement ne correspondent pas à celles d'un centre de stockage des déchets. La durée de lixiviation reste encore à définir, elle doit être suffisamment longue pour permettre à l'équilibre chimique de s'établir tout en conservant une faible activité biologique. Un compromis entre maximum de mobilisation et minimum de biodégradation doit donc être envisagé.

Ainsi, une durée de 120 heures de lixiviation semble convenir pour répondre à l'exigence d'une dégradation minimale. La faible biodégradation observée après 72 heures de lixiviation et indiquant un début de biodégradation n'engendre pas de réelle modification des composés organiques dans la phase liquide entre 24 et 120 heures de lixiviation. Les composés remobilisés restent donc de bons indicateurs de ce qui est lessivé. Cette durée de lixiviation paraît également adaptée pour répondre au critère de mobilisation maximale :  $21,81 \pm 1,19$  gC/kgMS de matières organiques sont extraits sous forme de COD au cours des 120 heures de lixiviation. Cette matière organique correspond majoritairement à des substances organiques de type hydrophiles ( $64,1 \pm 1,9$  % de HPI\*). Une durée de lixiviation de 120 heure permet également d'observer ou pas un début de production de biogaz signe d'une reprise ou non de l'activité biologique au sein de la solution.

Les conditions opératoires optimales de lixiviation mises en place sont décrites dans le Tableau XXXI.

Tableau XXXI : Caractéristiques du protocole de lixiviation mis en place.

Durée	Rapport L / S	Vitesse Agitation	Eluant	Renouvellement	Biogaz
120 heures	10	150 rpm	eau distillée	sans	Evacué toutes les 24 heures

Ce type de test peut donc être utilisé afin d'évaluer la mobilisation de la matière organique, le type de composés qui peuvent être rapidement mobilisés et, éventuellement, évaluer le potentiel de production de biogaz d'un déchet.

## VI.2. Couplage Test de Lixiviation et BMP

La mise en évidence d'une production de biogaz lors des essais d'optimisation du test de lixiviation nous a conduit à débiter une nouvelle série de tests en suivant à la fois la qualité du lixiviat, la qualité et la quantité du biogaz généré et en réalisant des tests d'évaluation du potentiel biométhanogène (BMP) au cours de la lixiviation à la fois sur le liquide et sur le solide. En effet, pour évaluer l'évolution d'un déchet, deux phénomènes sont à prendre en considération. D'une part, la notion de mobilisation de la matière organique dans la phase liquide, à l'origine d'un transport possible de polluants retrouvés dans les lixiviats et d'autre part, la notion de biodégradabilité de la matière organique, qui permet d'étudier son évolution sous l'action de réactions biologiques. Ces deux phénomènes conduisent à une double classification possible de la matière : hydrosoluble / non hydrosoluble et biodégradable / non biodégradable.

Dans cette perspective, un test de lixiviation est appliqué afin d'évaluer la solubilisation de substances polluantes et la stabilité des déchets peut être évaluées biologiquement par la mesure du potentiel de biodégradation dans des conditions anaérobies (BMP). L'objectif est d'appréhender toutes les évolutions du système grâce à un dispositif permettant de caractériser avec précision le potentiel global du déchet. Ce potentiel comprend la capacité du déchet à produire du biogaz mais également celle du liquide issu de la remobilisation de la charge organique de la phase solide vers la phase liquide.

Cette étude a été menée en collaboration avec le CRITT Génie des Procédés et le Laboratoire d'Ingénierie des Systèmes Biologiques et Procédés (LISBP) de l'INSA de Toulouse (pour la partie BMP). Le protocole expérimental mis en œuvre est présenté sur la Figure 31.

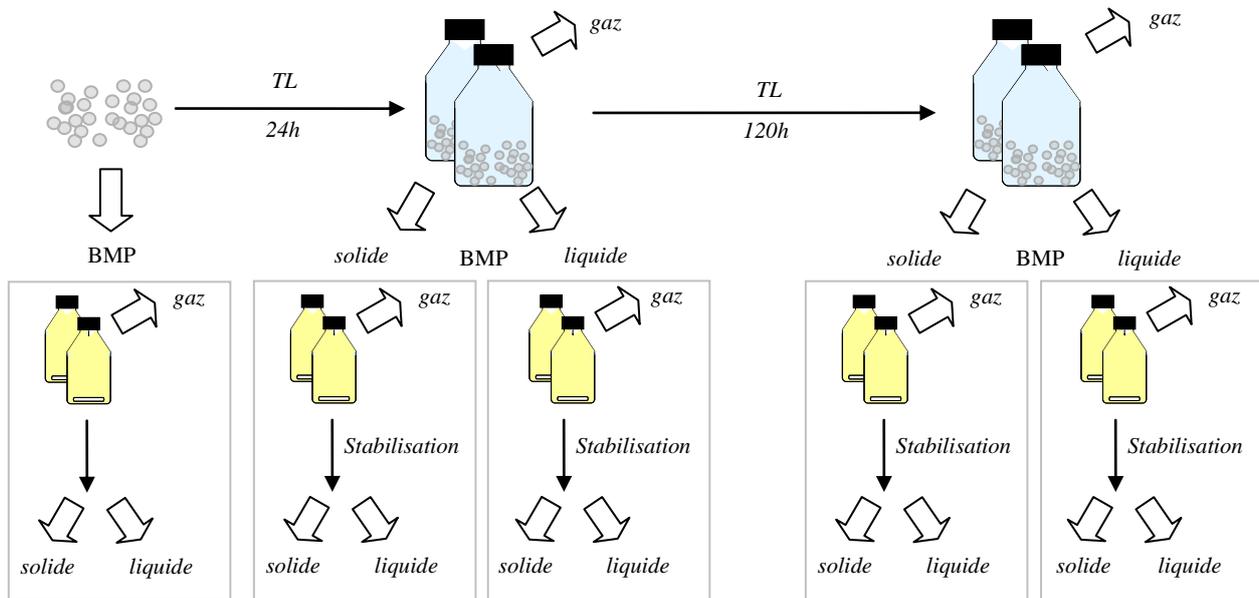


Figure 31 : Schéma du protocole expérimental.

Après caractérisation du déchet, la lixiviation est réalisée pour des temps de contact variant de 24 à 120 heures. Les phases gazeuse et liquide sont analysées quotidiennement au cours de la lixiviation ; les analyses réalisées sur les phases liquides et solides nécessitent de sacrifier une fiole par jour. Sur le déchet initial ainsi qu'après 24 et 120 heures de lixiviation, des tests BMP sont réalisés sur les phases solides et liquides. A la fin du BMP, la part non biodégradable de la phase liquide est caractérisée. Un bilan matière à partir des résultats des tests de lixiviation et de ceux des tests BMP peut ainsi être réalisé.

Afin de travailler sur un échantillon représentatif dans chaque bouteille, une quantité importante de déchet a été préparée puis un quartage a été réalisé. De plus, les tests de lixiviation ont été réalisés en triplicat pour exprimer au travers d'écart type de mesure les problèmes liés à l'échantillonnage (hétérogénéité du prélèvement). Les conditions opératoires de lixiviation appliquées sont celles précédemment définies. Le système flacon + bouchon utilisé est étanche et permet de prélever facilement le gaz produit afin de l'analyser (Figure 32).

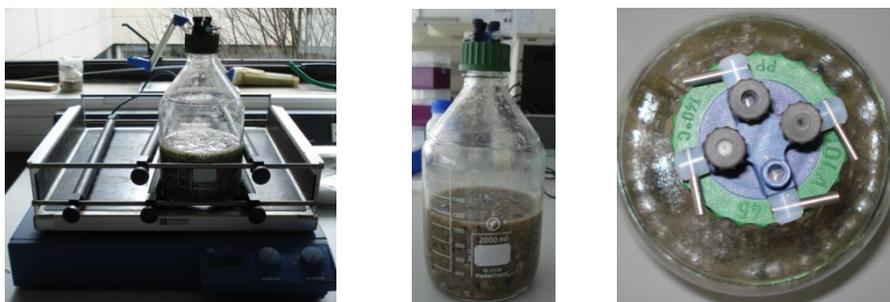


Figure 32 : Système flacon + bouchon utilisé pour les Tests de Lixiviation.

Ainsi, toutes les 24 heures les déchets, le lixiviat et des biogaz sont recueillis et analysés. Les phases liquide et solide sont séparées par filtration grossière puis par centrifugation à 8000 g

pendant 20 minutes à 4°C ; le culot est récupéré avec de l'eau distillée puis réincorporé au déchet. Le déchet issu du test de lixiviation est séché à 80°C jusqu'à stabilisation de la masse.

Les fioles servant au test BMP sont préparées par ajout du substrat, de 25 mL tampon phosphate, de 100 mL d'inoculum, de 0,72 mL de réazurine (solution 1 g/L) et d'eau (ajustement à 400 mL). La quantité de substrat (déchet ou jus de lixiviation) à introduire dans chaque fiole est différente selon la nature de l'échantillon (Tableau XXXII).

Tableau XXXII : Quantité de substrat dans chaque fiole

Fiole	Quantité de substrat (gMS ou mL)	DCO Substrat (gO <sub>2</sub> /gMS ou gO <sub>2</sub> /L)
T	Blanc	-
SP1	Déchet initial	1,5
SP2		1,5
S24-1	Solide à 24h	1,5
S24-2		1,5
S120-1	Solide à 120h	1,5
S120-2		1,5
L24-1	Liquide à 24h	200
L24-2		200
L120-1	Liquide à 120h	100
L120-2		100

L'inoculum utilisé est une boue anaérobie issue de la STEP de Muret (31) qui a subi une étape de stabilisation. Le tampon phosphate permet de réguler le pH à une valeur comprise entre 7 et 8. Avant fermeture de la fiole, un balayage du volume mort à l'azote est réalisé.

### VI.3. Application du test de lixiviation

Les projets ELIA et BIOPTIME sur lesquels est basé ce travail comportent tout deux des tests de lixiviation afin de caractériser le déchet initial ainsi que le déchet traité (Figure 33).

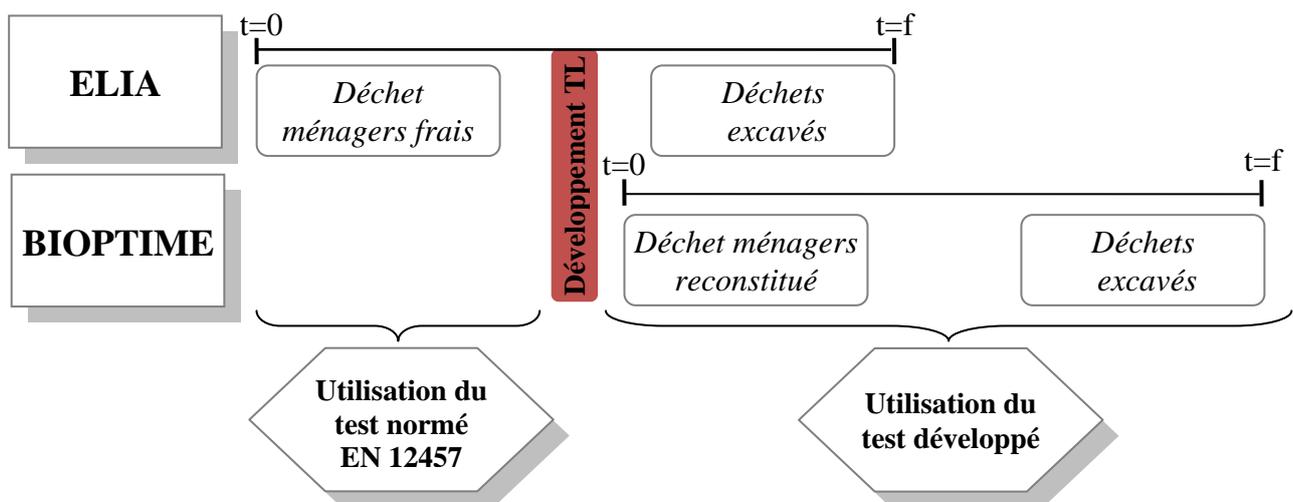


Figure 33 : Type de tests de lixiviation utilisés.

Le test de lixiviation développé est appliqué à l'ensemble des déchets à l'exception du déchet ménager frais initialement utilisé dans le cadre du projet ELIA. En effet, ce projet a été lancé bien en amont de la mise en place du test développé. Au niveau du projet BIOPTME, le déchet témoin (C), la modalité contenant des mâchefers (B\_1) et une modalité de prétraitement aérobie de faible niveau (A\*L2) ont été caractérisés initialement par ce protocole de lixiviation. Apparu comme ayant une dégradation plus optimale, le déchet A\*L2 a également été analysé par lixiviation une fois excavé.



## PARTIE III - RESULTATS ET DISCUSSIONS

---

*Ce chapitre présente les principaux résultats obtenus au cours de ce travail de thèse. Il se compose de 2 parties correspondant aux 2 projets de recherche sur lesquels se base ce travail de thèse : ELIA et BIOPTIME. L'ensemble des protocoles précédemment décrits ont été appliqués dans le cadre des ces 2 projets dans le but de déterminer au mieux l'impact des modalités de prétraitement des déchets testées.*

*La première partie présente les résultats de suivi des 4 casiers expérimentaux du programme ELIA. Un bilan complet de chacune des 4 filières de traitement est réalisé en tenant compte des pertes liées à l'étape de prétraitement et des flux de lixiviat et de biogaz émis. En outre, le protocole de lixiviation développé est appliqué aux déchets excavés dans le but d'accéder à leur état de stabilité après 5,5 ans d'enfouissement.*

*La deuxième partie s'intéresse ainsi à un nombre plus important de modalités de prétraitement testées à une échelle plus petite dans le cadre du projet BIOPTIME. La démarche expérimentale appliquée repose sur la combinaison d'une caractérisation précise de la matrice déchet au travers notamment du test de lixiviation optimisé et sur un suivi rigoureux des émissions liquides et gazeuses de ces mêmes déchets enfouis en conditions de stockage. L'évaluation des performances d'un mode de gestion peut ainsi être appréhendée.*

*En outre, les conclusions apportées à chaque niveau sont utilisées afin de réaliser une comparaison des modalités des plus performantes aux 2 échelles testées (23 m<sup>3</sup> et 68 L). L'objectif étant de valider l'effet d'une modalité similaire dans des conditions d'exploitation légèrement différentes.*



## I. Projet ELIA

Au terme de plus de 5 ans de suivis réguliers (lixiviats et biogaz), l'exploitation des casiers ELIA a été arrêtée et les déchets ont été excavés en juillet 2009. Après caractérisation bio-physicochimique des déchets excavés, un bilan complet de chacune des 4 filières de traitement est réalisé conformément à l'objectif initial du projet (Figure 34).

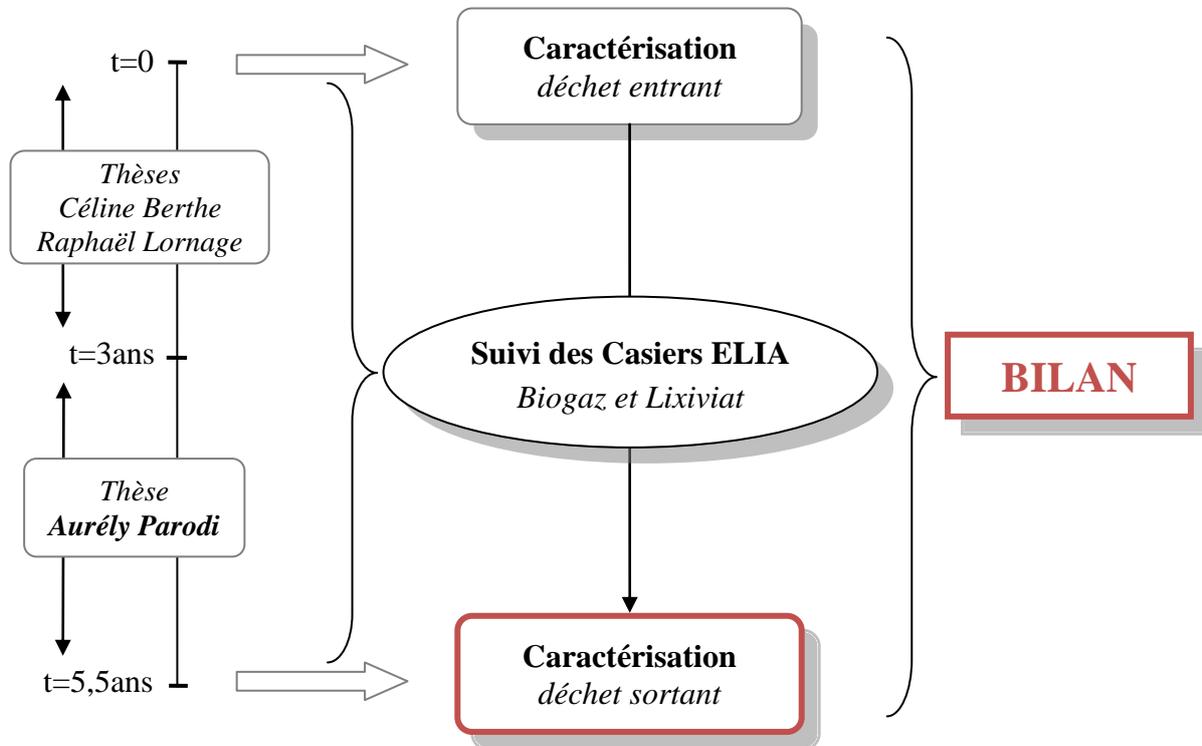


Figure 34 : Démarche de bilan du programme ELIA.

Les analyses de lixiviat et de biogaz tout au long de l'enfouissement permettent de dresser un premier bilan en terme de comportement du déchet lors du stockage. La caractérisation bio-physicochimique ainsi que la détermination du potentiel de relargage des déchets excavés finalise ce bilan.

### I.1. Suivi de la composition du lixiviat et du biogaz

Le suivi des lixiviats et du biogaz produits au cours de l'exploitation des casiers a mis en avant un certain nombre de problèmes dans le fonctionnement des casiers ayant engendré des modifications dans le mode de gestion. La non production de lixiviat du casier C1 au cours des 23 premiers mois de stockage avait ainsi laissé penser à une fuite dans le système d'injection de la simulation de pluie qui avait été ajusté par la suite de manière à compenser les pertes (Berthe, 2006). Cependant, l'excavation des casiers ainsi que l'exploitation des données sous forme de bilan ont permis de démentir certaines hypothèses précédemment émises et ont conduit à en envisager et appliquer de nouvelles. Ainsi, l'absence de lixiviat du casier C1 au cours des premiers mois d'enfouissement ne serait pas liée à des fuites dans le système de simulation de pluie mais à une cinétique d'infiltration de l'eau dans le massif de déchets très lente (rapport interne - Veolia R&D). Au moment de l'excavation, une quantité non négligeable voire importante de lixiviat a ainsi été retrouvée piégée au sein du massif de déchets. De plus, la baisse de la production de biogaz sur l'ensemble des

casiers a vraisemblablement provoqué des entrées d'air mais l'hypothèse d'une perte similaire à tous les casiers permet de comparer les bilans gazeux sur une même base. Le casier C2 a également connu d'importantes fuites de biogaz qui n'ont pas pu être quantifiées et qui modifient donc la quantité totale de biogaz produit. Les difficultés rencontrées lors de l'exploitation des casiers C1 et C2 (fuites) rendent donc parfois complexe l'exploitation et la comparaison de ces 2 modalités.

### I.1.1. Production et composition du biogaz

L'évolution de la production et de la composition du biogaz produit est souvent considérée comme le principal indicateur de l'avancement de la dégradation des déchets enfouis. La cinétique de production du biogaz et la quantité totale produite sont utilisées afin d'appréhender la stabilisation biologique du déchet enfoui et pour comparer les différentes modalités mises en place (Annexe 4).

Ainsi, un démarrage plus précoce de la production de biogaz et donc de la méthanogenèse est observé pour les casiers ayant un mode de gestion non conventionnel notamment pour C3 et C4 ayant subi un prétraitement du déchet (Figure 36). En effet, la préparation aérobie limite les risques d'inhibition par acidogenèse et permet de réduire ou d'éliminer les phases initiales d'acidogenèse et d'acétogenèse (Lornage *et al.*, 2007). Le casier C1 présente donc une cinétique de production de biogaz retardée par rapport aux autres casiers qui peut aussi être liée à la faible teneur en eau initiale du déchet : 28,1 % contre 37,1 et 40,2 % pour C3 et C4. Le manque d'eau au cœur du massif de déchet a pour principale conséquence de limiter le développement des bactéries indispensables aux premières étapes de la dégradation de la matière organique. Les réajustements dans le protocole de simulation de pluie du casier C1 après 23 mois d'enfouissement ont inversé cette tendance et la cinétique de C1 s'accroît jusqu'à dépasser celle des autres casiers.

Après une phase de méthanogenèse stable pour l'ensemble des casiers suivie d'un ralentissement, les cinétiques de production de biogaz deviennent très faibles voire nulles pour C3 et C4. Au moment de l'arrêt de l'exploitation des casiers, la production de biogaz était donc constante et pratiquement nulle (inférieure à  $0,06 \text{ Nm}^3/\text{tMS}$ ) signe d'un état de dégradation avancé et stable pour C3 et C4 alors qu'elle était encore de  $0,65$  et  $0,11 \text{ Nm}^3/\text{tMS}$  pour C1 et C2. Au niveau de sa composition, la proportion de méthane devient rapidement nulle pour C3 et C4 alors qu'elle demeure supérieure à 2 % jusqu'à la fin de l'expérimentation pour C1 et C2 indiquant une activité méthanogène résiduelle toujours présente pour ces 2 casiers. En outre, la concentration en  $\text{CO}_2$  encore proche de 10 % pour C3 et C4 met en avant un phénomène de dégradation aérobie probablement localisé et éventuellement dû à une entrée d'air dans les casiers. Malgré l'étape de prétraitement aérobie ayant préalablement eu lieu, certains composés organiques difficilement biodégradables en anaérobiose ont ainsi pu être dégradés en présence d'oxygène.

Cette entrée d'air, bien qu'arrivée tardivement, peut engendrer des modifications de l'expression de la production cumulée de biogaz et de méthane (Tableau XXXIII). La production de biogaz et de méthane mentionnée dans ce tableau ne prend en compte que le volume de gaz capté et analysé et ne tient donc pas compte de la fuite sur C2 et des entrées d'air potentielles. Le biogaz présenté correspond à la somme du  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  produits et non à la totalité du gaz évacué par chaque casier car seul le biogaz peut être comparé au potentiel de production initialement déterminé. Les tests BMP réalisés sur le déchet entrant donnent des informations plus précises en terme de production de méthane.

Les 4 casiers ont généré une production différente de biogaz ; le casier C1, bien que correspondant à une gestion conventionnelle donc non optimisée, a produit la plus grande quantité de biogaz représentant 80 % de son potentiel de production initial. La mise en place d'une gestion bioréacteur (C2) n'a pas permis d'augmenter la production de biogaz et a même au contraire limité cette production par rapport à C1 puisque seulement 42 % du potentiel initial a été dégradé sous forme de  $\text{CH}_4$  et  $\text{CO}_2$  contre 80 % pour C1. En outre, les bilans gazeux de C1 et C2 ne sont pas totaux car une faible production de biogaz était encore perceptible au moment de l'excavation des déchets.

La mise en place d'un prétraitement biologique avant enfouissement permet, dans un premier temps, de diminuer significativement la quantité de biogaz produit au cours du stockage tout en améliorant sa cinétique de production. En effet, les émissions gazeuses ont principalement eu lieu lors du prétraitement à hauteur de  $5480 \text{ Nm}^3/\text{tMH}$  dont 95 % lors des 12 premières semaines.

Tableau XXXIII : Production de biogaz et de méthane des 4 casiers.

		<b>Paramètres</b>	<b>C1</b>	<b>C2</b>	<b>C3</b>	<b>C4</b>
à t = 3 ans de suivi	Biogaz produit (CH <sub>4</sub> + CO <sub>2</sub> )	Nm <sup>3</sup> /tMS	71	62	25	19
		%potentiel	34	30	42	84
	CH <sub>4</sub> produit	Nm <sup>3</sup> CH <sub>4</sub> /tMS	39	33	14	10
		%BMP	36	31	43	109
à t = 5,5 ans de suivi (à l'arrêt)	Biogaz produit (CH <sub>4</sub> + CO <sub>2</sub> )	Nm <sup>3</sup> /tMS	169	88	27	22
		%potentiel	80	42	46	100
	CH <sub>4</sub> produit	Nm <sup>3</sup> CH <sub>4</sub> /tMS	95	47	14	11
		%BMP	88	44	44	122

Le BMP du déchet initial ( $108 \text{ Nm}^3\text{CH}_4/\text{tMS}$ ) est ainsi réduit de 72 à 90 % selon la durée du prétraitement. L'objectif de stabilisation du déchet au cours du prétraitement biologique est donc atteint du fait de la réduction significative de la production de biogaz. Le déchet C4 a ainsi dégradé une très grande partie de son potentiel (84 %) bien avant la fin de l'expérimentation (à 31 mois) et la totalité (100 %) au moment de l'excavation. Le biogaz produit par ce casier est également plus riche en CH<sub>4</sub> que celui estimé par le BMP réalisé sur le déchet prétraité (50 % contre 41 %), la production de CH<sub>4</sub> s'élève d'ailleurs à 122 % de celle du BMP (109 % après 31 mois). Le déchet du casier C4 semble donc avoir atteint un état de stabilisation avancé. A l'inverse, le déchet C3 possède encore un potentiel de biodégradation important (54 %) malgré la stabilisation de sa cinétique de production de biogaz.

*La possibilité de fuites de gaz au niveau du casier C2 qui a été sérieusement envisagée lors de l'exploitation des données engendrerait d'importantes modifications dans la quantification du volume de biogaz produit par ce casier et donc dans les premières conclusions apportées. En effet, la recirculation du lixiviat peut s'accompagner d'entrées d'air modifiant l'équilibre CO<sub>2</sub> - CH<sub>4</sub>. Une telle hypothèse n'a toutefois pas été vérifiée lors de la mesure du biogaz. Ainsi, l'impact de la recirculation du lixiviat sur les émissions gazeuses est difficile à identifier compte tenu de l'incertitude de fonctionnement du casier C2 mais également de C1. Ces premiers résultats ont tout de même permis de mettre en avant l'effet positif du prétraitement biologique aérobie sur la stabilisation des déchets avant enfouissement.*

### I.1.2. Caractéristiques du dernier lixiviat produit

Tout au long de l'exploitation des quatre casiers ELIA, l'ensemble des lixiviats produits a été caractérisé afin d'estimer l'état d'avancement de la dégradation des déchets. Les caractéristiques du dernier lixiviat produit avant l'excavation des déchets suivent les tendances observées au cours des derniers mois de suivi (Tableau XXXIV). Ainsi, pour tous les casiers, les concentrations de la plupart des polluants des lixiviats se sont stabilisées. Cette tendance semble corrélée à la réduction de la production de biogaz.

Au terme de l'enfouissement la qualité des lixiviats ne respecte pas la plupart des critères minimaux imposés pour le rejet d'effluents dans le milieu naturel et fixés par l'arrêté du 9 Septembre 1997 modifié par l'Arrêté du 19 Janvier 2006 (Annexe 5). En outre, les valeurs mesurées sont nettement

supérieures à celles généralement reportées dans la littérature pour des déchets et des lixiviats âgés. Ces différences pourraient être attribuées à la faible simulation de pluie appliquée lors de l'expérimentation. Environ 500 L/tMS pour C3 et C4, 900 L/tMS pour C1 afin d'obtenir 40% d'humidité et 3434 L/tMS pour C2.

Tableau XXXIV : Composition du dernier lixiviat produit (Leloup, 2010).

Paramètres		C1	C2	C3	C4
pH	-	7,0 ± 0,1	8,4 ± 0,1	7,8 ± 0,1	8,1 ± 0,1
$\chi$	mS/cm	13,2 ± 0,1	14,0 ± 0,1	17,6 ± 0,1	14,3 ± 0,1
COD	mgC/L	944 ± 28	946 ± 47	2316 ± 13	3722 ± 78
DCO	mgO <sub>2</sub> /L	3480 ± 174	4110 ± 205	8830 ± 441	6660 ± 333
DBO <sub>5</sub>		220 ± 20	140 ± 15	200 ± 20	280 ± 30
DCO/COD	mgO <sub>2</sub> / mgC	3,7 ± 0,1	4,3 ± 0,2	3,8 ± 0,1	1,8 ± 0,2
DBO <sub>5</sub> /DCO	-	0,06 ± 0,01	0,03 ± 0,01	0,02 ± 0,01	0,04 ± 0,01
SUVA	L/cm/gC	26 ± 2	26 ± 3	54 ± 3	56 ± 4
AH*/AF*	-	0,59 ± 0,01	0,84 ± 0,03	1,39 ± 0,04	1,45 ± 0,04
SH*	%	55,5 ± 1,7	51,4 ± 1,5	64,3 ± 1,9	66,0 ± 2,0

ratio AH\*/AF\* correspond à %AH\* / %HPO\*

SH\* correspond à %AH\* + %HPO\*

Ainsi, après 5,5 années de stockage, le pH de l'ensemble des lixiviats s'est stabilisé autour de 7 - 8 indiquant une phase méthanogène et un état stabilisé du système (Kjeldsen *et al.*, 2002). Ce paramètre étant semblable pour les casiers C2, C3 et C4 à la fin de l'exploitation, il ne peut pas être utilisé pour évaluer l'impact des conditions de stockage ou du prétraitement. Pour C1, le pH reste plus faible d'une unité par rapport aux autres casiers laissant envisager une différence de stabilisation. Une conclusion similaire s'observe pour la mesure de la conductivité qui est constante depuis plus d'un an avec des valeurs de l'ordre de 15 ± 2 mS/cm. Une légère différence peut toutefois être notée au niveau des casiers C3 et C4 qui libèreraient une quantité plus importante d'espèces minérales que C1 et C2.

Le stockage de ces quatre déchets génère également une libération importante de matière organique quantifiable sous forme de DCO ou de COD. En fin d'exploitation, la charge organique libérée par les casiers C3 et C4 est très supérieure à celle des casiers C1 et C2. Cependant, l'évolution de ces paramètres n'apparaît pas être à lui seul un indicateur pertinent de la stabilisation même s'il permet de classer les casiers en 2 catégories C1 et C2 d'une part et C3 et C4 d'autre part avec des valeurs plus faibles pour les casiers non prétraités.

Le calcul du ratio DCO/COD permet d'utiliser ces deux paramètres en tant qu'indicateur de dégradation. Il représente, en effet, la disponibilité du carbone organique comme source d'énergie pour les microorganismes présents ; plus ce ratio est faible et plus l'état de dégradation est avancé (Millot, 1986). Le faible ratio obtenu dans le dernier lixiviat issu de C4 indique la présence d'une plus grande quantité de carbone oxydé que pour les autres casiers et donc une stabilité plus avancée de la dégradation. Les autres casiers, moins avancés, restent toutefois proches les uns des autres. Cette quantité plus importante de carbone oxydé pour C4 ne modifie en rien la biodégradabilité du lixiviat émis. En effet, le ratio DBO<sub>5</sub>/DCO caractéristique de cette biodégradabilité est inférieur à 0,1 pour tous les casiers indiquant une faible biodégradabilité de tous les lixiviats et donc l'absence de molécules facilement biodégradables. En outre, le faible ratio DBO<sub>5</sub>/DCO et l'indice SUVA relativement fort traduisent la présence d'une grande quantité de composés organiques récalcitrants

à la dégradation dont la structure est aromatique. Les écarts entre les valeurs de SUVA indiquent un état plus ou moins humifié et dégradé selon les différents casiers. Les casiers C4 et C3 semblent être les plus dégradés ( $SUVA > 50 \text{ L/cm/gC}$ ) alors que C1 et C2 sont plus en retard ( $< 30 \text{ L/cm/gC}$ ).

La distinction entre ces molécules difficilement biodégradables s'effectue par le biais d'une caractérisation plus approfondie des molécules organiques présentes dans le lixiviat. Le suivi du fractionnement de la matière organique selon le caractère hydrophobe tout au long de l'exploitation des casiers a permis de distinguer 3 phases distinctes dans la dégradation de la matière organique (Berthe *et al.*, 2008 ; Feuillade *et al.*, 2009). Ces phases correspondent respectivement à la phase d'acidogenèse (I) puis à une fin d'acidogenèse et au début de la méthanogenèse (II) suivi de la méthanogenèse et de la maturation (III) ; elles sont corrélables aux évolutions des paramètres plus globaux (pH, AGV, DCO...) mesurés dans le lixiviat.

Les phases de lessivage (I), de pré-humification (II) et d'humification (III) se produisent donc simultanément et à des échelles de temps variables pour les différents casiers (Tableau XII). La présence et la durée du prétraitement aérobie semblent ainsi accélérer le rythme de la dégradation des déchets au cours des premiers mois de stockage. Néanmoins, les données montrent qu'avec le temps la distribution de la matière organique devient comparable entre les deux prétraitements ; les déchets provenant des casiers C3 et C4 semblent tendre vers le même état d'humification.

Tableau XXXV : Durée des 3 phases de dégradation et caractéristiques de la matière organique.

Paramètres		Phase I	Phase II	Phase III
Caractéristiques	Substances de type Humique	AH* < 10 % HPI* > 50 %	AH* < 10 % HPI* ≤ 50 %	AH* > 30 % HPI* < 20 %
	AH*/AF*	0,1 à 0,5	< 0,5	> 0,5
	Indice SUVA (L/cm/g)	< 10	10 - 30	> 30
Durée (mois)	C1	Non observée (dysfonctionnements)	x à 26	27 à 70
	C2	0 à 13	14 à 25	26 à 70
	C3	Non observée	0 à 5	6 à 67
	C4	Non observée	0 à 3	4 à 64

Ainsi, les différences temporelles dans le déroulement des phases de dégradation semblent s'être atténuées au terme des 5,5 années d'enfouissement. En effet, tous les déchets stockés sont entrés dans une phase d'humification et de maturation (phase III) plus ou moins avancée. Le fractionnement selon le caractère hydrophobe de la matière organique issue du dernier lixiviat produit est présenté sur la Figure 35 et permet de hiérarchiser cette avancée dans la dégradation de la matière organique. Les conclusions apportées par le fractionnement de la matière organique peuvent être corrélées avec celles de l'indice SUVA.

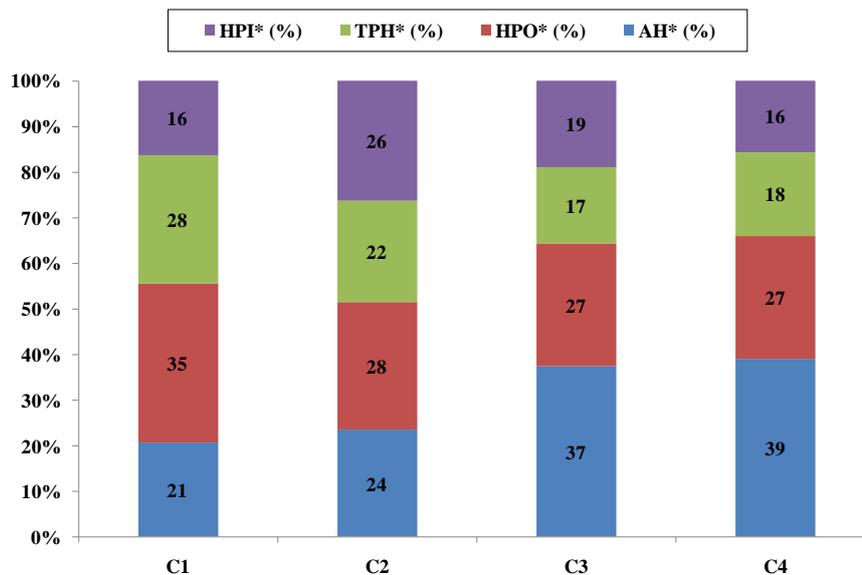


Figure 35 : Fractionnement de la matière organique du dernier lixiviat selon le caractère hydrophobe.

Les casiers C3 et C4 présentent un SUVA plus élevé et un plus fort pourcentage d'AH\* et de HPO\* que les deux autres casiers, confirmant ainsi l'hypothèse d'une plus forte dégradation et humification des composés organiques. La durée du prétraitement ne semble plus influencer la dégradation et la stabilité des déchets puisque la différence de la valeur de l'indice SUVA reste très faible entre les deux casiers et la répartition de la matière organique est identique aux incertitudes de mesure près. Les niveaux de maturation atteints par les casiers C1 et C2 semblent assez éloignés de ceux de C3 et C4 mais relativement proches l'un de l'autre (indice SUVA identique). Le casier C1 paraît toutefois être plus en retard que C2 du fait d'une proportion de SH\* plus faible.

### I.1.3. Corrélation entre production de biogaz et analyses du lixiviat

Lors de l'exploitation des données relatives au suivi du biogaz et du lixiviat, une corrélation a été mise en évidence entre la composition du biogaz et celle du lixiviat générés lors du stockage, notamment au niveau de l'indice SUVA et de la proportion de CO<sub>2</sub> ou de CH<sub>4</sub> (Figure 36). En effet, les différentes étapes de la dégradation anaérobie et donc la quantité de biogaz générée sont liées à la matière organique solubilisée. La relation entre l'indice SUVA et la production de biogaz décrit donc les périodes d'activité biologique au sein du massif de déchets (Feuillade *et al.*, 2009).

Aucune corrélation entre biogaz et indice SUVA n'a pu être réalisée dans le cas du casier C1 en raison des nombreux dysfonctionnements du casier qui n'ont pas permis de faire un suivi rigoureux du lixiviat (Figure 36-a). Pour les casiers C2, C3 et C4, l'évolution de la composition du biogaz suit les 4 grandes phases de dégradation décrites dans la littérature (Farquhar et Rovers, 1973 ; Christensen et Kjeldsen, 1989). L'indice SUVA issu des lixiviats émis au même moment évolue de façon similaire.

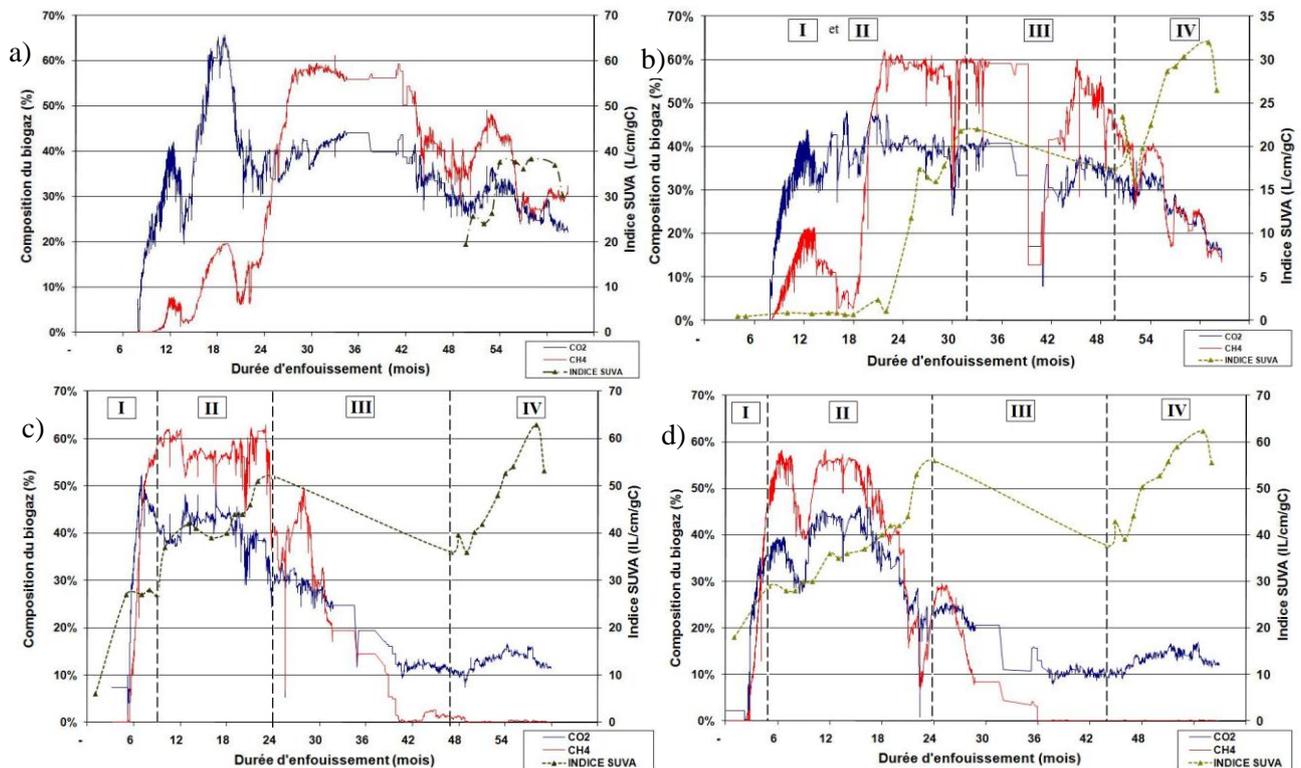


Figure 36 : Evolution de l'indice SUVA du lixiviat et de la composition en  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  du biogaz au cours de l'enfouissement pour les 4 casiers.

Ainsi, au cours des premiers mois suivant l'enfouissement (**phase I**), la concentration de méthane dans le biogaz et l'indice SUVA mesurés dans le lixiviat augmentent. La deuxième phase (**phase II**) correspond à une stabilisation de la production de biogaz et à une augmentation de l'indice SUVA. Lorsque la qualité du biogaz produit baisse (**phase III**), l'indice SUVA reste constant et/ou diminue, ce qui peut être lié à un changement dans le type de microorganismes responsables de la biotransformation des composés organiques. Au cours de la dernière phase de dégradation (**phase IV**), la production de biogaz s'arrête et s'accompagne d'une réaugmentation de l'indice SUVA caractéristique d'une évolution intrinsèque de la matière organique. Cette évolution de la matière organique a également été observée au travers du fractionnement selon le caractère hydrophobe des molécules organiques extraites (Annexe 6).

Toutefois, dans le cas du casier C2 les phases I et II sont confondues (Figure 36-b) et nettement plus longues que pour les casiers C3 et C4 (Figure 36-c et Figure 36-d) ; la phase III débutant après plus de 30 mois pour C2 contre 24 mois pour C3 et C4. L'évolution du casier C2 semble donc plus lente que celle des casiers C3 et C4. Cette différence peut être imputée au mode de gestion de ces 3 casiers. Le prétraitement mécanique et biologique a pour principal effet de rendre immédiatement disponible la matière organique pour les premières phases de dégradation, limitant ainsi toute phase de latence et favorisant la cinétique de production de biogaz (Bockreis et Steinberg, 2005 ; Gioannis *et al.*, 2009). La recirculation du lixiviat lors des premières phases de dégradation (hydrolyse et acidogénèse) conduit le plus souvent à un blocage du système par une production trop importante et une accumulation d'acides organiques (Kinman *et al.*, 1987) ne permettant pas une production de biogaz optimale et donc un retard dans la dégradation de la matière organique perceptible au travers des variations de l'indice SUVA.

En outre, un parallèle peut être effectué entre les phases établies lors du suivi strict du lixiviat (Tableau XII) et celles du suivi du biogaz (Figure 36). Les phases de lessivage (I) et de pré-humification (II) décrites pour le lixiviat peuvent être assimilées aux phases I et II décrivant le comportement du biogaz alors que la phase III d'humification observée dans le lixiviat se décompose en phases III et IV pour lors du suivi du biogaz.

### I.1.4. Bilan des différentes filières

L'ensemble des données recueillies au cours de l'exploitation des casiers permet d'établir un bilan de type hydrique et massique du comportement du déchet en conditions de stockage (Tableau XXXVI).

Tableau XXXVI : Bilan massique et hydrique lors du stockage.

Paramètres		C1	C2	C3	C4
Teneur en eau initiale	%	28,1	28,1	40,2	37,1
Ajout d'eau		901	489	530	504
Lixiviats recirculé	L/tMS		2945		
Lixiviats évacués		819	241	613	210
Eau évacuée dans le biogaz	L/tMS	10	7	3	2
Teneur en eau finale	%	45,4	43,1	43,9	38,9
Perte de masse liée au prétraitement	%MS			27	37
Perte de masse liée au stockage	%MS	22	36	3	2

La simulation de pluie initialement prévue correspond à une pluviométrie moyenne sur 6 mois d'exploitation des casiers ouverts suivie d'une fermeture du casier au moyen d'une couverture semi-perméable. Les volumes d'eau ajoutés étaient donc identiques pour tous les casiers. Cependant, à la fin de la période de stockage seuls les casiers C2, C3 et C4 ont reçu une quantité d'eau équivalente à celle prévue (500 L/tMS). Les problèmes de gestions du casier C1 (fuites) ont engendré des modifications dans le synoptique de simulation de pluie et induit un apport supplémentaire d'eau (901 L/tMS). En outre, cet apport d'eau complémentaire (400 L/tMS) est dû à la faible teneur en humidité (28 %) des déchets du casier C1 qui est relativement éloignée d'une humidité optimale pour la dégradation des déchets de l'ordre de 50 % (Gachet, 2005). Le casier C2, a subi en complément une recirculation du lixiviat correspondant à un volume total de 2945 L/tMS réparti selon les taux suivants : 0 - 7 mois : 3,2 L/tMS/jour ; 7 - 13 mois : 6,2 L/tMS/jour ; 13 - 43 mois : 1,1 L/tMS/jour ; 43 - 49 mois : 5,8 L/tMS/jour puis 49 - 70 mois : 0,4 L/tMS/jour.

De plus, même si l'un des objectifs du concept bioréacteur est d'éliminer la fraction inorganique lixiviable par lessivage, il reste indispensable d'alterner les phases de recirculation du lixiviat avec des phases de repos afin d'éviter l'accumulation de composés pouvant inhiber la dégradation tels que les AGV ou l'azote qui persistent toujours au sein du massif de déchets (Berthe *et al.*, 2008). Les conditions de recirculation sont en effet essentielles pour obtenir une biodégradation optimale du déchet (Benbelkacem *et al.*, 2010).

Les disparités dans la quantité d'eau injectée ainsi que le mode de gestion des casiers (recirculation ou prétraitement avant enfouissement) induisent une production de lixiviat différente. Tout au long du stockage, les différents casiers C1 à C4 libèrent respectivement 91, 89, 116 et 42 % du liquide injecté par lixiviation. L'eau évacuée dans le biogaz est également prise en compte dans le bilan hydrique ; elle ne représente que 0,2 à 1,1 % de l'eau apportée à chaque casier. Toutefois, le comportement différent observé au niveau de C3 et C4 peut être lié à l'étape de prétraitement biologique qui a significativement influencé les bilans hydriques de ces deux casiers ; la production de C4 est 66 % inférieure à celle de C3. En outre, la comparaison de la teneur en eau du déchet

entrant à celle du déchet résiduel met en avant un stockage d'eau plus important pour les casiers dont la dégradation est la moins avancée notamment pour C1. Cette rétention d'eau de C1 est à mettre en relation avec la part importante de matière organique du déchet (51,5 %).

L'évaluation de la perte de masse au cours de l'ensemble de la filière de traitement (prétraitement et stockage) permet d'appréhender le taux de dégradation de la matière. En effet, la perte de masse s'effectue principalement lors de la minéralisation du carbone organique sous forme de CO<sub>2</sub> et de CH<sub>4</sub>. Le casier C2 semble ainsi avoir un taux de dégradation (36 %MS) plus important que celui du casier C1 (22 %MS). Il semblerait donc que la recirculation du lixiviat favorise la biodégradation des déchets en conditions de stockage. La perte de masse de C2 est semblable à celle de C3 et C4 pour l'ensemble du procédé ; respectivement 30 et 39 %MS sachant que la perte de masse s'effectue principalement lors du prétraitement biologique des déchets. En outre, l'enfouissement des déchets ne semble pas avoir permis à C3 de rattraper le taux de dégradation plus élevé obtenu par C4 lors des semaines supplémentaires de traitement biologique.

A ce bilan massique et hydrique, peuvent être associés des bilans spécifiques aux émissions gazeuses et liquides (Tableau XXXVII). Les flux des différents composés émis sont ramenés à une tonne de matière entrant chacune des filières (matière humide). Le poids du traitement biologique dans le processus d'émission (%PTB) est également mentionné pour les déchets C3 et C4 afin de considérer le procédé de traitement dans sa totalité.

Tableau XXXVII : Flux de pollution par voie gazeuse et liquide.

Paramètres			C1	C2	C3	C4
Emissions gazeuses	CH <sub>4</sub>	kg/tMH	49	24	7	5
		%PTB			22 %	31 %
	CO <sub>2</sub>	kg/tMH	106	57	194	270
		%PTB			93 %	96 %
Emissions liquides	DCO	gO <sub>2</sub> /tMH	1947	2376	2683	2019
		%PTB			8 %	11 %
	COD	gC/tMH	653	421	930	831
		%PTB			5 %	5 %
	AGV	g/tMH	53	1498	189	331
		%PTB			71 %	40 %
	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	g/tMH	194	70	303	331
		%PTB			6 %	6 %
	N <sub>tot</sub>	gN/tMH	1203	345	455	322
		%PTB			7 %	10 %
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	gN/tMH	1143	262	339	206
		%PTB			8 %	14 %
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	gN/tMH	12	3	18	20
		%PTB			3 %	3 %

Les émissions gazeuses ont également libéré du NH<sub>3</sub>, H<sub>2</sub>S, N<sub>2</sub>O ou des COV pour l'ensemble des modalités. La production de NH<sub>3</sub> a été relativement faible et diffuse pour l'ensemble des casiers notamment pour C1 et C2 où elle reste inférieure à 15 mg/tMH. La dégradation de C3 et C4 génère une quantité supérieure de NH<sub>3</sub> (2 à 4 kg/tMH) intégralement libérée lors du prétraitement biologique. Le comportement de N<sub>2</sub>O au cours du procédé est similaire dans des proportions

toutefois totalement différentes (de l'ordre du g/tMH). La dégradation des déchets génère également des COV : 70 à 90g/tMH pour C1 et C2 alors que C3 et C4 ne produisent pas de COV lors du stockage mais une quantité très importante de l'ordre de 148 kg/tMH lors du prétraitement. Le prétraitement biologique représente donc la principale source d'émission pour les COV, le NH<sub>3</sub>, le N<sub>2</sub>O mais également pour le CO<sub>2</sub> (> 93 %). De même, les émissions de CH<sub>4</sub> au cours du prétraitement représentent 22 à 31 % des émissions totales de CH<sub>4</sub> des casiers C3 et C4. En outre, la durée du prétraitement ne semble pas avoir un effet significatif sur la production de biogaz puisque plus de 95 % des émissions gazeuses ont eu lieu au cours des premières semaines de prétraitement.

Les émissions gazeuses produites par les déchets C3 et C4 tout au long de la filière de traitement (prétraitement et stockage) sont moindres que celles produites au cours du stockage de C2 ou C1 avec toutefois une forte proportion de CO<sub>2</sub> lors du prétraitement correspondant à la conversion du carbone organique en CO<sub>2</sub> en conditions aérobies. Au cours de la phase stable de la méthanogenèse et parallèlement à la production de CH<sub>4</sub>, la dégradation des déchets C1 et C2 s'est faite par des bactéries sulfato-réductrices sous forme de H<sub>2</sub>S. Cette activité microbienne a également été perceptible au travers de l'évolution de la concentration en sulfate émise dans les lixiviats. La plus faible teneur en SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> émise au cours de l'enfouissement par les déchets C1 et C2 par rapport à C3 et C4 traduit cette voie réactionnelle souvent considérée comme compétitive à la méthanisation de la matière organique dans la littérature (Wens *et al.*, 2001).

Ainsi, la composition du lixiviat est fortement conditionnée par les phénomènes biophysicochimiques se déroulant au cœur du massif de déchets mais également par les flux de liquide entrant (simulation de pluie ou recirculation du lixiviat). Pour C1, les flux de polluants sont influencés par l'absence de lixiviats lors des premières phases de dégradation qui n'ont pas favorisé le lessivage du déchet ; la quantité de lixiviat produite n'est significative qu'à partir du 23<sup>ème</sup> mois. Le très faible flux d'AGV émis par le casier C1 peut être corrélé à cette absence de lessivage au cours des premières phases de dégradation (hydrolyse et acidogenèse) qui a généré un retard dans la dégradation des déchets. L'augmentation de la simulation de pluie consécutive à cette absence de lixiviat a engendré une lixiviation importante de certains composés facilement mobilisables tels que Cl<sup>-</sup> ou NH<sub>4</sub><sup>+</sup>. La forte proportion d'azote relarguée est largement dominée par l'azote ammoniacal qui représente près de 95 % de l'azote total relargué.

Lors d'une gestion en mode bioréacteur (C2), les flux de polluants sont globalement moins importants que pour les autres filières malgré les fortes quantités recirculées. La recirculation d'un lixiviat relativement chargé a vraisemblablement limité la mobilisation des polluants dans la phase liquide. La recirculation importante de la première période d'exploitation a néanmoins permis de lessiver la grande quantité d'AGV qui était accumulée au sein du massif de déchets. En effet, la cinétique de production de biogaz (Figure 36) met en avant un retard dans le démarrage de la méthanogenèse qui peut être reliée à une accumulation d'AGV lors des premières phases de dégradation qui a inhibé le système.

Les déchets prétraités biologiquement avant enfouissement (C3 et C4) génèrent un relargage important d'espèces organiques et minérales au cours des deux étapes du traitement. Les quantités de polluants émises sont supérieures lors du stockage par rapport au prétraitement à l'exception des AGV qui sont très fortement relargués lors du prétraitement aérobic. L'activité de bactéries acidogènes peut ainsi être mise en évidence en parallèle de l'action hydrolytique se produisant dès le début du traitement. Le prétraitement permet donc de limiter les premières phases de dégradation lors de l'enfouissement puisqu'elles se sont déjà produites au cours du prétraitement. Toutefois, il semblerait qu'un prétraitement trop long tel que celui appliqué à C4 inhibe cet effet car une forte quantité d'AGV (199 g/tMH) est libérée au cours du stockage en plus de celle déjà évacuée (133g/tMH) lors du prétraitement.

*Les différentes voies d'exploitation des casiers (lixiviat, biogaz, perte de masse...) donnent lieu à des conclusions différentes quant à l'impact du mode de gestion sur la dégradation des déchets notamment au niveau de la recirculation du lixiviat. Ainsi, le suivi de la production de biogaz ne*

démontre pas un avantage à la recirculation du lixiviat alors que les autres bilans réalisés mettent clairement en avant l'effet positif de ce mode de gestion. L'ensemble des conclusions apportées convergent néanmoins au niveau de l'impact du prétraitement biologique avant enfouissement sur la stabilité des déchets, sur l'optimisation de la dégradation et sur la réduction de la production de biogaz. La caractérisation des déchets excavés s'avère donc indispensable afin de statuer sur l'impact du mode de gestion en apportant des réponses quant à l'état de dégradation des déchets notamment au travers de leur comportement en conditions de lixiviation.

## I.2. Caractérisation des déchets excavés

Une fois excavés, les déchets ont été séchés puis caractérisés par le biais d'analyses bio-physicochimiques classiques. Une lixiviation des déchets au travers du test de lixiviation précédemment développé (Partie II - VI.1.4) et adapté à cette matrice a été appliquée.

### I.2.1. Caractéristiques bio-physicochimiques

Les déchets excavés sont préalablement caractérisés afin de connaître la teneur en substances organiques et azotées susceptibles d'être mobilisées lors du test de lixiviation (Tableau XXXVIII). En effet, au terme de 5,5 années d'enfouissement, les déchets excavés possèdent des caractéristiques bio-physicochimiques différentes de celles initiales (Tableau XXXVIII).

Tableau XXXVIII : Caractéristiques des déchets avant stockage et au moment de l'excavation.

Paramètres		MO	NTK	AH*s	RH	BMP
		%	gN/kgMS	g/kgMS	-	NLCH <sub>4</sub> /kgMS
C1	initial	62	10,8		0,17	108
	final	51,5 ± 3,6	8,8 ± 0,7	10,1 ± 0,4	0,66 ± 0,02	70,5
C2	initial	62	10,8		0,17	108
	final	57,8 ± 2,9	8,6 ± 2,6	4,7 ± 0,9	0,55 ± 0,01	2,0
C3	initial	48	11,0		0,47	32
	final	50,2 ± 2,5	5,8 ± 2,1	3,9 ± 0,5	0,64 ± 0,01	2,0
C4	initial	39	9,3		0,63	9
	final	30,3 ± 5,9	4,9 ± 0,3	4,4 ± 1,6	1,13 ± 0,03	1,1

RH correspond au ratio AH\*s / AF\*s

La teneur en matière organique (MO) est similaire pour les déchets C1 et C3 alors qu'elle est nettement plus faible pour C4 et plus forte pour C2. Dans le cas de C4, cette première observation peut être reliée au prétraitement mécanique et biologique poussé qui a induit un abattement de la teneur en matière organique avant stockage et qui a favorisé les mécanismes de dégradation de la matière organique restante lors de l'enfouissement. La teneur initiale du déchet enfoui était en effet plus faible pour C3 et C4 (respectivement 43 et 60 % d'abattement en matière organique). Le déchet C3 a également subi un prétraitement mais moins important d'où l'écart dans la teneur en matière organique observée. La comparaison des déchets C1 et C2 permet de mettre en avant un retard dans la dégradation du déchet C2. En effet, au moment de leur enfouissement, ces deux déchets possédaient les mêmes caractéristiques physicochimiques ; seul le mode de gestion du casier dans lequel ils ont été stockés est différent. La recirculation du lixiviat imposée au casier C2 n'a donc pas permis de dégrader plus de matière organique qu'un mode de gestion conventionnel. Un comportement similaire à celui de la matière organique est observable au niveau de la teneur en

azote des déchets. Les déchets C3 et C4 contiennent une quantité inférieure d'azote par rapport à C1 et C2 qui en ont des teneurs similaires. La teneur en azote plus faible de C3 et C4 peut initialement être imputée au prétraitement biologique qui avait déjà réduit la teneur en azote de près de 14 % avant enfouissement pour C4 (Tableau XXXVII) (Lornage *et al.*, 2007).

La matière organique présente dans le déchet s'exprime au travers de la teneur en AH\*s. Il a été montré que la teneur en AH\*s d'un déchet frais reconstitué est de l'ordre de 6,5 g/kgMS (Parodi *et al.*, 2009). Dans le cas de C1, la teneur en AH\*s est bien supérieure à cette valeur signe d'une humification progressive du déchet au cours du stockage. La valeur inférieure obtenue pour C2 peut être imputée à une humification ralentie du fait de la recirculation du lixiviat. Les valeurs encore plus faibles de C3 et C4 sont liées au prétraitement avant enfouissement qui a pour conséquence d'abaisser la teneur en AH\*s du déchet. En effet, la perte en AH\*s d'un déchet frais subissant un prétraitement aérobie dont la perte en carbone est supérieure à 20 %, comme c'est le cas dans cette étude, est environ de l'ordre de 70 %.

Le ratio RH (AH\*s/AF\*s) apporte des informations similaires et complémentaires. En effet, il permet d'estimer le taux d'humification des déchets ; la stabilité de la matrice considérée augmente avec le ratio RH. Pour un déchet frais reconstitué, ce ratio se situe aux alentours de 0,3 (Parodi *et al.*, 2009) et peut atteindre des valeurs supérieures à 2 dans le cas d'un « compost » stable d'ordures ménagères (Francou *et al.*, 2008). Les valeurs obtenues pour l'ensemble des déchets restent inférieures à 2 mais sont bien supérieures à 0,3 indiquant que la maturation des déchets est avancée mais pas encore achevée. Au vue de ce rapport, le déchet C4 semble être dans un état de dégradation plus avancé et le déchet C2 relativement en retard.

La réalisation de tests BMP sur le déchet excavé permet également d'évaluer son potentiel de relargage futur. Pour les déchets C2, C3 et C4, les potentiels résiduels mesurés sont très faibles, signe d'une dégradation avancée voire terminée. Le potentiel de production de CH<sub>4</sub> a été réduit de plus de 98 % tout au long de la filière de traitement dont seulement 28 et 7 % au cours du stockage pour C3 et C4 le reste étant dégradé au cours du prétraitement. Le déchet C1 apparaît quant à lui comme beaucoup moins dégradé et stable car il n'a réduit son potentiel initial que de 35 %.

*L'identification de la composition chimique d'un déchet est difficile compte tenu de l'hétérogénéité d'une telle matrice. Toutefois, au vue de cette caractérisation bio-physicochimique, il apparait des conclusions contradictoires pour C2 qui semble être plus chargé et probablement moins stable que les autres déchets et pourrait donc avoir une capacité de relargage plus importante lors de sa mise en contact avec une solution non saturée. Ces premières observations demandent néanmoins à être confirmées grâce notamment à un protocole de lixiviation adapté.*

### I.2.2. Lixiviation des déchets excavés

La lixiviation des déchets excavés selon le protocole précédemment mis en place a pour principal objectif de déterminer leur potentiel de relargage résiduel. Il s'agit d'une lixiviation de 120 heures avec analyses des phases liquide, solide et gazeuse toutes les 24 heures. Le niveau de stabilité atteint par chaque casier après 5,5 années d'enfouissement sera ainsi appréhendé.

#### I.2.2.1 *Evolution du déchet au cours de la lixiviation*

Au cours de la lixiviation, la mesure de différents paramètres au niveau des phases liquide et gazeuses permet de mettre en évidence l'évolution physique, chimique et biologique du déchet au cours du test de lixiviation. En outre, dès la première immersion des déchets dans l'eau d'élution, une hiérarchisation dans le comportement des différents déchets peut être effectuée.

En tant que paramètres très généraux et généralement caractéristiques des phases de dégradation, le pH et la concentration en acides gras volatils (AGV) sont les premiers indicateurs de ce qui se passe lors de la lixiviation d'un déchet (Figure 37).

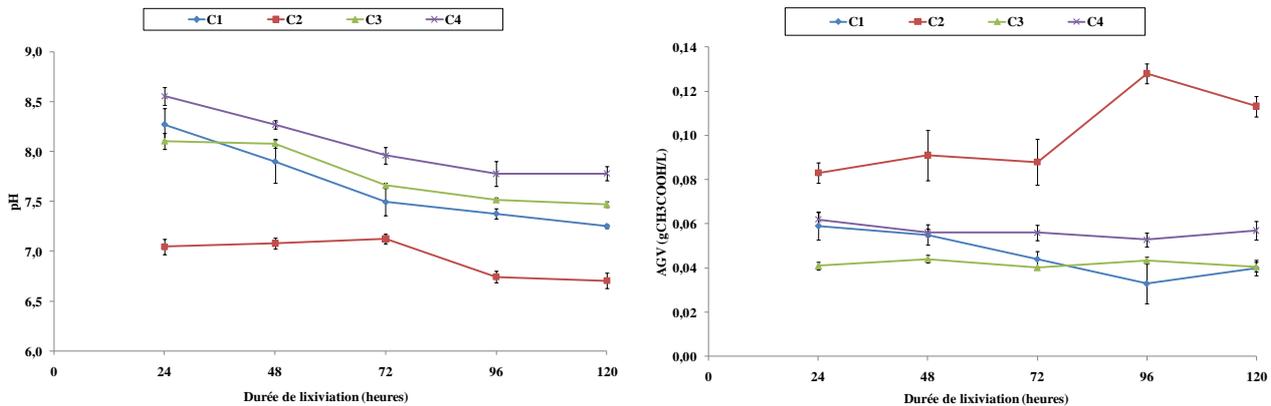


Figure 37 : Evolution du pH et de la concentration en AGV de la phase liquide au cours de la lixiviation.

La chute du pH et la libération d'AGV en phase liquide par le déchet C2 met en avant une possible reprise de l'activité biologique lors du contact avec un milieu non saturé. L'état de dégradation du déchet excavé apparaît comme incomplet.

Ces premières observations au sein de la phase liquide sont corrélables avec la modification de composition du ciel gazeux au cours de la lixiviation (Figure 38). En effet, la production de biogaz ainsi que la modification de la composition du ciel gazeux sont des indicateurs d'activité biologique au sein du système. Le volume de biogaz produit est très faible et proche de la limite de détection (0,2 mL) pour l'ensemble des déchets lixivés ; la production de biogaz n'est donc pas significative et indique une dégradation déjà avancée.

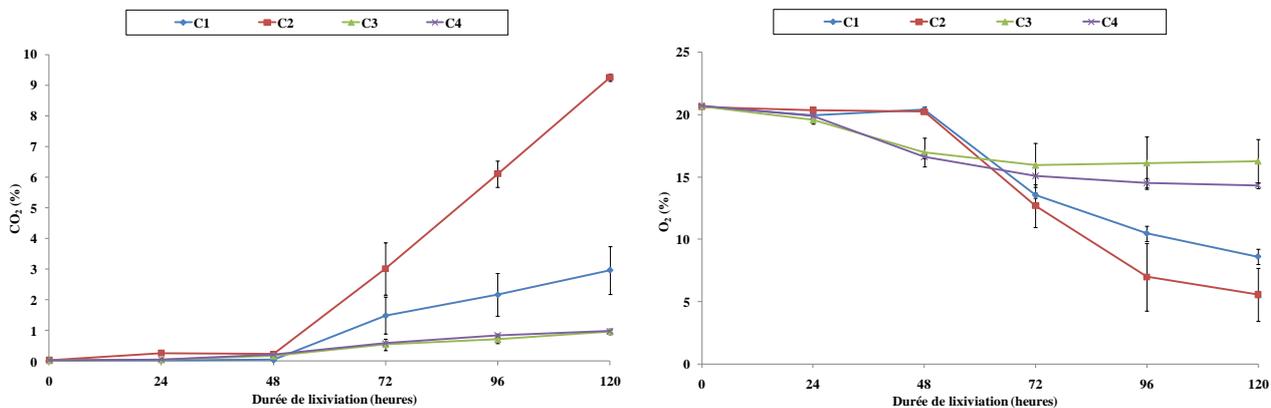


Figure 38 : Evolution de la teneur en CO<sub>2</sub> et O<sub>2</sub> du ciel gazeux au cours de la lixiviation.

Principalement composé d'O<sub>2</sub> et de N<sub>2</sub> au début du test, la composition du ciel gazeux évolue de façon significative au cours de la lixiviation. Pour l'ensemble des tests, le taux de CO<sub>2</sub> augmente et le taux d'O<sub>2</sub> diminue indiquant une reprise de l'activité biologique. L'oxygène est ainsi progressivement consommé par des microorganismes qui libèrent du CO<sub>2</sub>. Cette hypothèse se vérifie également au travers de la mesure de l'oxygène dissous dans la phase liquide : la concentration en O<sub>2</sub> dissous diminue au cours du temps. Pour les quatre déchets, la teneur en méthane du ciel gazeux ne varie presque pas et reste proche de celle de l'atmosphère (environ 0,002 %) ; l'activité biologique observée est donc de type aérobie.

En outre, l'intensité de cette activité biologique varie selon le déchet lixivié. En effet, une plus forte consommation d' $O_2$  est observée pour le déchet C2 avec une teneur proche de 5 % en fin de test. La dégradation du déchet C2 n'est donc pas totalement achevée car une reprise rapide et intensive de l'activité biologique y est toujours possible. Une reprise de l'activité biologique est également observée pour le déchet C1 avec toutefois une plus faible intensité ; le taux d' $O_2$  est d'environ 10 % en fin de test. Lors de la lixiviation des déchets C3 et C4, la composition du ciel gazeux est très peu modifiée signe d'une faible activité biologique. De plus, la variation de la composition du ciel gazeux ne permet pas de différencier significativement le comportement de C3 et C4 lors de la lixiviation.

*L'ensemble des informations apportées par la mesure de paramètres très globaux de la phase liquide (pH, AGV, TAC) et par la quantification de la composition de la phase gazeuse permettent d'émettre des premières conclusions quant au degré de dégradation des déchets excavés. Ainsi, l'état de dégradation atteint par les déchets C3 et C4 semble plus avancé que celui de C1 et C2 ; le déchet C2 étant lui-même plus en retard que le déchet C1.*

### 1.2.2.2 Libération d'espèces minérales et organiques

La proportion d'espèces minérales et organiques extraites au cours de la lixiviation peut être appréhendée au travers de mesures de la conductivité et de la DCO au sein de la phase liquide (Figure 39). La conductivité apporte une information globale sur la quantité d'espèces minérales et la DCO donne une estimation de la charge organique extraite.

La conductivité de la phase liquide augmente au cours de la lixiviation pour l'ensemble des tests pour atteindre des valeurs de 1,8 mS/cm pour C1, de 2,3 mS/cm pour C2, de 1,3 et 1,5 mS/cm pour C3 et C4. La DCO de la phase liquide issue de la lixiviation des déchets C1, C3 et C4 reste constante de l'ordre de 700  $mgO_2/L$  tandis que celle du déchet C2 augmente pour se stabiliser autour de 2000  $mgO_2/L$  après 72 heures de contact.

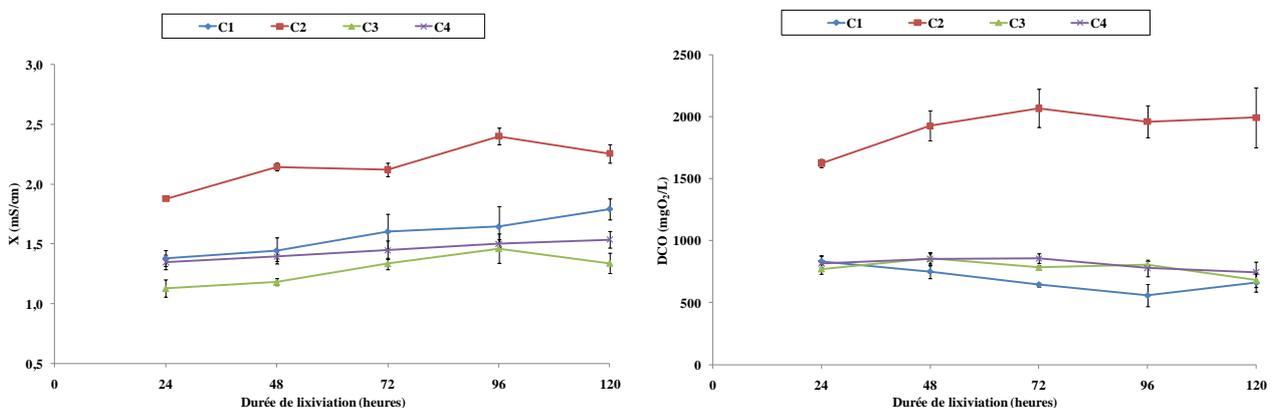


Figure 39 : Evolution de la conductivité et de la concentration en DCO de la phase liquide au cours de la lixiviation.

L'augmentation de la conductivité est également corrélable à la chute du pH car la solubilisation des espèces chargées est favorisée par les faibles pH. Ainsi, les principaux ions se retrouvent en phase liquide (Tableau XXXIX). Les données en italique correspondent à 24 heures de lixiviation et celles en gras à 120 heures.

Pour l'ensemble des déchets, une absence de phosphates ( $PO_4^{3-}$ ) est observée indiquant un état de dégradation avancé pour l'ensemble des pilotes. Les phosphates sont généralement retrouvés dans les lixiviats issus de déchets frais. La concentration en ions chlorure ( $Cl^-$ ), potassium ( $K^+$ ) ou sodium ( $Na^+$ ) augmente de façon régulière tout au long de la lixiviation. Le relargage de ces ions

n'est cependant fonction que du lessivage et n'est pas représentatif d'un état de dégradation. L'évolution des ions calcium ( $\text{Ca}^{2+}$ ) et magnésium ( $\text{Mg}^{2+}$ ) est beaucoup plus significative et peut être reliée à l'activité biologique au sein de la solution. En effet, l'augmentation de la pression partielle en  $\text{CO}_2$  et la baisse du pH engendre la solubilisation de précipités de  $\text{CaCO}_3$  et  $\text{MgCO}_3$  et donc l'augmentation de la concentration en  $\text{Ca}^{2+}$  et  $\text{Mg}^{2+}$  dans la phase liquide. En outre, l'activité biologique plus importante du déchet C2 (conversion de l' $\text{O}_2$  en  $\text{CO}_2$ ) se traduit par une teneur en  $\text{Ca}^{2+}$  et  $\text{Mg}^{2+}$  plus importante que pour les déchets C1, C3 et C4. Une augmentation de la teneur en sulfates ( $\text{SO}_4^{2-}$ ) est également observée et peut être imputée à une accumulation suite au lessivage car les conditions oxydantes du milieu (potentiel redox élevé) ne permettent pas la réduction des sulfates en sulfures.

Tableau XXXIX : Composition en cations et anions après 24 heures (en italique) et 120 heures (en gras) de lixiviation.

Paramètres		C1	C2	C3	C4
$\text{Na}^+$	mg/L	<i>201,3 ± 8,6</i>	<i>194,3 ± 4,2</i>	<i>191,9 ± 8,1</i>	<i>262,9 ± 17,0</i>
		<b>254,4 ± 14,3</b>	<b>207,5 ± 13,2</b>	<b>217,5 ± 3,4</b>	<b>330,7 ± 71,3</b>
<i>99,6 ± 3,3</i>		<i>270,8 ± 16,4</i>	<i>118,9 ± 3,4</i>	<i>154,1 ± 7,4</i>	
<b>120,1 ± 6,7</b>		<b>277,4 ± 5,8</b>	<b>143,1 ± 4,1</b>	<b>181,9 ± 11,9</b>	
<i>4,9 ± 0,2</i>		<i>23,7 ± 0,8</i>	<i>4,4 ± 0,2</i>	<i>4,1 ± 0,4</i>	
<b>16,5 ± 0,7</b>		<b>27,9 ± 0,2</b>	<b>13,9 ± 0,4</b>	<b>12,9 ± 0,5</b>	
<i>23,9 ± 1,6</i>		<i>230,7 ± 8,9</i>	<i>46,6 ± 2,2</i>	<i>37,2 ± 2,7</i>	
<b>78,7 ± 2,4</b>	<b>313,5 ± 15,7</b>	<b>92,1 ± 3,8</b>	<b>85,4 ± 1,6</b>		
$\text{Cl}^-$	<i>230,1 ± 10,8</i>	<i>194,3 ± 3,3</i>	<i>186,2 ± 8,3</i>	<i>246,2 ± 28,2</i>	
	<b>231,6 ± 18,5</b>	<b>241,8 ± 1,1</b>	<b>203,4 ± 2,2</b>	<b>247,6 ± 9,2</b>	
$\text{SO}_4^{2-}$	<i>144,1 ± 14,0</i>	<i>967,4 ± 19,1</i>	<i>295,3 ± 10,7</i>	<i>283,6 ± 19,7</i>	
	<b>189,8 ± 10,6</b>	<b>1231,6 ± 78,8</b>	<b>376,4 ± 9,9</b>	<b>344,2 ± 2,4</b>	
$\text{PO}_4^{3-}$	<LD	<LD	<LD	<LD	

Une attention particulière est portée aux espèces azotées qui de part leur répartition peuvent être de type organique ou minéral. La répartition des différentes formes de l'azote pour chaque déchet lixivié est présentée sur la Figure 40 après 24 et 120 heures de contact. La lixiviation des déchets au cours des 24 premières heures entraîne la libération d'une quantité importante d'azote total de l'ordre de 35-40 mgN/L pour C1, C3 et C4 et 57 mgN/L pour C2. Entre 24 et 120 heures de contact, une légère diminution de la concentration en azote total est observable dans la phase liquide de C1 alors que celles de C3 et C4 reste constantes. Cet écart de comportement est probablement lié à une reprise plus prononcée de l'activité biologique pour C1 et donc une consommation d'azote par les microorganismes présents. La teneur en azote de la phase liquide C2 augmente de 57 à 70 mgN/L au cours de la lixiviation signe d'un potentiel polluant encore fortement présent et mobilisable.

La répartition des espèces azotées ainsi que sa modification au cours de la lixiviation permet de mettre en avant les différences liées à l'activité biologique et au simple lessivage des espèces. Ainsi, l'absence de nitrites ( $\text{NO}_2^-$ ) est constante tout au long de la lixiviation et pour l'ensemble des déchets. La teneur en ions nitrates ( $\text{NO}_3^-$ ) est également très faible (proche de la limite de détection) pour l'ensemble des déchets et diminue légèrement au cours de la lixiviation. Cette diminution peut être associée à une dénitrification des nitrates sous forme de  $\text{N}_2$  ou de  $\text{N}_2\text{O}$ . L'analyse de la phase gazeuse a effectivement montré une augmentation de la concentration en  $\text{N}_2$ . Après 24 heures de contact, la forme majoritaire de l'azote relarguée par les déchets C1, C2 et C3 est de type ammoniacale ( $\text{NH}_4^+$ ) alors que C4 libère plutôt de l'azote organique. Cette quantité de  $\text{NH}_4^+$  libérés est corrélable au degré de dégradation du déchet ; les proportions relarguées indiquent un état moins avancé du déchet C2. Cette concentration élevée en azote ammoniacal de C2 peut également être

reliée au mode d'exploitation du casier dont ce déchet est issu. En effet, la recirculation du lixiviat génère bien souvent une accumulation d'ions ammonium au sein du massif de déchets (Benson *et al.*, 2007 ; François *et al.*, 2007). La recirculation du lixiviat provoque une accumulation d'AGV entraînant une diminution du pH et un blocage de l'azote sous forme  $\text{NH}_4^+$  créant une inhibition des processus de dégradation (Berthe *et al.*, 2008). Au cours de la lixiviation, les teneurs en  $\text{NH}_4^+$  initialement élevées diminuent au profit de l'azote organique qui représente à la fin du test la quasi-totalité de l'azote relarguée. Cette consommation de l'azote ammoniacal est à mettre en relation avec la reprise de l'activité biologique. Cette diminution est nettement plus marquée pour C2 où la reprise de l'activité biologique est de plus forte ampleur que pour C1, C3 et C4.

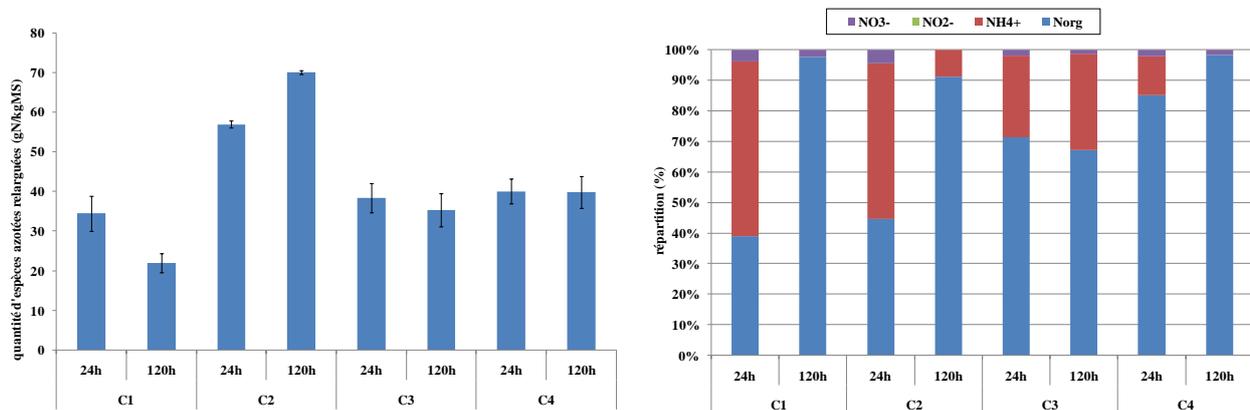


Figure 40 : Différentes formes de l'azote dans la phase liquide après 24 et 120 heures de lixiviation (a) quantité relarguée (b) répartition des espèces.

Pour les déchets C3 et C4, la prédominance de la forme organique de l'azote indique que la dégradation des déchets est relativement avancée. En effet, ces déchets ont subi un prétraitement mécanique et biologique aérobie au cours duquel l'azote organique est minéralisé sous forme  $\text{NH}_4^+$  et  $\text{NO}_3^-$  facilitant ainsi la libération de ces espèces dans le lixiviat au cours de l'enfouissement (Francou *et al.*, 2008). Cette différence de comportement à la lixiviation pour C1 et C2 est donc liée à une minéralisation incomplète de l'azote lors des premières phases de dégradation en conditions de stockage.

*La lixiviation du déchet C2 se distingue nettement des autres par un pH plus faible, une conductivité, une charge organique et une production d'AGV bien supérieure indiquant que le degré de maturité atteint par ce déchet est nettement inférieur à celui des autres casiers. Le comportement des déchets C1, C3 et C4 est quant à lui relativement similaire en terme de pollution relarguée. Le déchet C1 semble toutefois relarguer une quantité plus importante d'espèces minérales du fait de la plus forte conductivité de sa phase liquide. Les différences observées dans le cas du déchet C2 sont liées au mode de fonctionnement du casier dont il est issu. En effet, la recirculation du lixiviat au cours de l'exploitation du casier a créé un équilibre déchet/lixiviat au sein du massif de déchet. La remise en contact du déchet avec un éluant ne présentant aucune charge organique ni minérale lors du test de lixiviation a généré un lessivage important de la charge piégée avec le déchet. Cette conservation d'un fort potentiel polluant au sein du déchet C2 et son relargage au cours de la lixiviation conforte l'hypothèse d'un état de dégradation moins avancé que pour les autres déchets. En effet, les autres déchets ont subi un lessivage plus régulier et plus intensif au cours de la période d'exploitation leur permettant d'évacuer progressivement leur charge polluante ; ils présentent donc une phase liquide moins chargée. De plus, à partir des paramètres mesurés jusqu'à présent afin de quantifier le type de polluants relargués, peu de différences apparaissent entre les déchets C1, C3 et C4 de natures pourtant diverses.*

### 1.2.2.3 Caractéristiques de la matière organique extraite

Une quantité importante de matière organique est extraite au cours de la lixiviation, l'évolution des caractéristiques de cette matière organique permet d'appréhender l'état de dégradation dont elle est issue. Ainsi, la biodégradabilité et la stabilité de la matière organique extraite sont déterminées au travers de la mesure de la DBO ultime ou par le calcul de ratios caractéristiques tels que  $DBO_5/DCO$ ,  $DCO/COD$  ou l'indice SUVA (Figure 41).

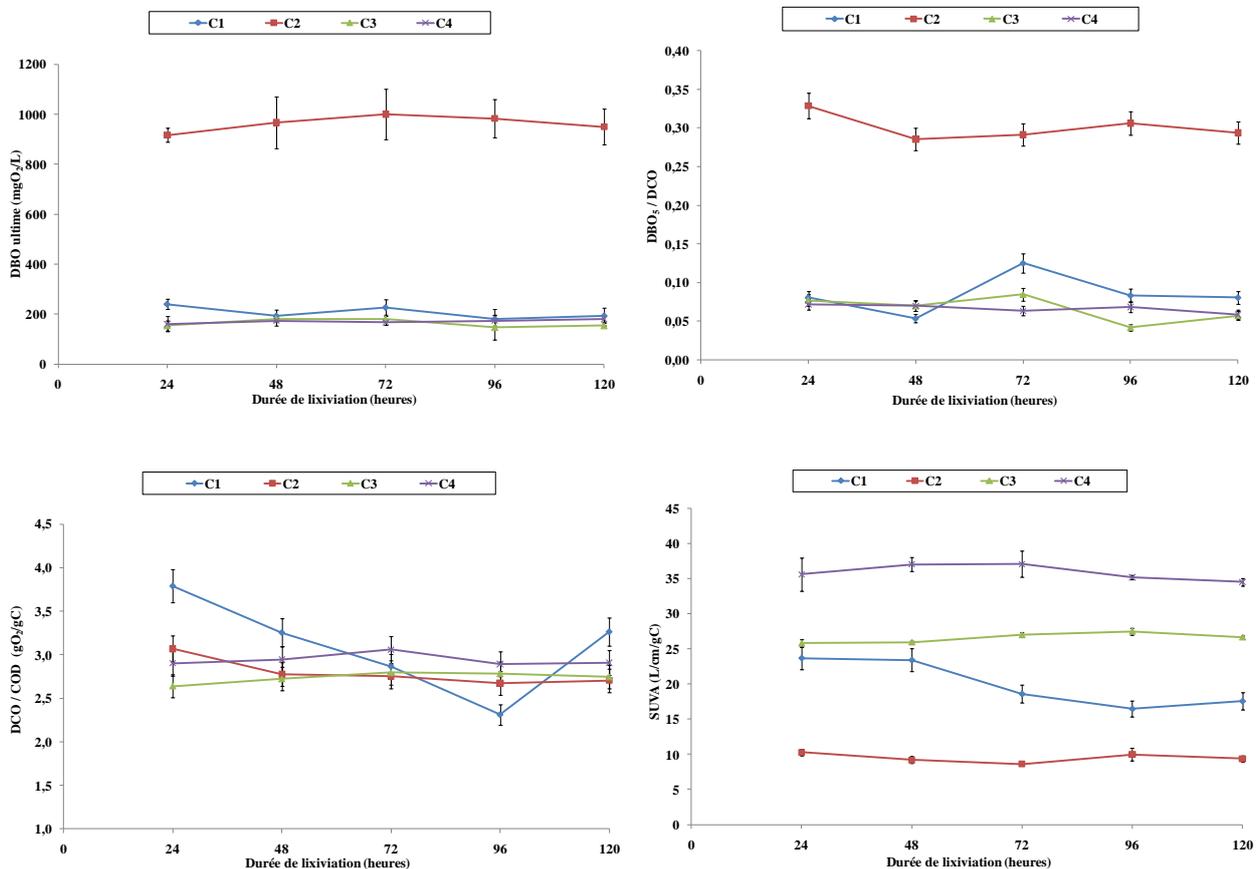


Figure 41 : Evolution de la DBO ultime, du ratio  $DBO_5/DCO$ , du ratio  $DCO/COD$  et de l'indice SUVA au cours de la lixiviation.

Les valeurs de DBO ultime de la phase liquide restent globalement constantes au cours du temps : de l'ordre de 900 mgO<sub>2</sub>/L pour C2 et 200 mgO<sub>2</sub>/L pour C1, C3 et C4. L'écart entre les différents déchets met en avant une biodégradabilité encore très élevée de la phase liquide de C2 par rapport aux autres.

Différents ratios tels que  $DBO_5/DCO$  ou encore  $DCO/COD$  sont également couramment utilisés dans la littérature pour caractériser la charge organique du lixiviat et la dégradation des déchets (Milot, 1986 ; Berthe, 2006 ; Lornage, 2006). Le ratio  $DCO/COD$  reste quasiment constant tout au long de la lixiviation et ne permet pas de différencier les déchets les uns des autres. Un ratio de 3 permet seulement de classer la phase liquide comme étant un lixiviat dit « jeune » car le ratio est compris entre 2,8 et 4 (Chian et DeWalle, 1976). Le ratio  $DBO_5/DCO$  évolue très peu au cours de la lixiviation pour les différents déchets mais est toutefois plus élevé pour C2 (autour de 0,3) que pour les autres déchets (inférieur à 0,1). Cette biodégradabilité encore élevée de la phase liquide issue de la lixiviation de C2 indique à nouveau un retard pris par C2 par rapport aux autres déchets au niveau de la dégradation et de la maturation des déchets. Cependant, le rapport  $DBO_5/DCO$  n'est pas un paramètre suffisant pour déterminer l'état de dégradation d'un déchet. Il ne permet pas de prendre en compte la matière organique difficilement biodégradable, qui constitue l'essentiel de la matière

organique d'un déchet dont la dégradation est déjà bien avancée, comme c'est le cas de C1, C3 et C4. Cet indicateur caractérise donc plutôt la dégradation d'une charge organique extraite d'un déchet jeune et ne suffit pas à traduire l'avancement dans la phase de maturation.

Ainsi, le calcul de l'indice SUVA semble plus pertinent pour la détermination de l'état d'avancement de la dégradation car il renseigne sur l'aromaticité des molécules organiques extraites (Berthe et al., 2008 ; Feuillade *et al.*, 2009). Dans le cadre de cette étude, l'utilisation du SUVA semble bien plus pertinente que celle des autres ratios dans la mesure où cet indice permet de faire une distinction entre le comportement des différents déchets. Une hiérarchisation selon l'avancement de l'état de dégradation peut être faite :  $C4 > C3 > C1 > C2$ . L'état de dégradation des déchets C4 semblerait donc plus avancé et celui des déchets C2 moins avancé. Un prétraitement mécanique et biologique semble donc avoir une influence positive sur l'avancement de la dégradation (le SUVA de C3 et C4 reste supérieur à celui de C1) ; ce qui confirme les résultats obtenus lors du suivi des casiers en exploitation (Berthe, 2006). La durée du prétraitement semble également avoir une influence : plus celle-ci est longue et plus les molécules relarguées ont un caractère aromatique prononcé. La différence dans l'avancement de la dégradation entre les deux modalités de prétraitement mécanique et biologique ne semble donc pas avoir totalement disparue sur le long terme comme le suivi des lixiviats émis lors du stockage l'avaient précédemment montré (Berthe, 2006). De plus, l'état de dégradation moins avancé de C2 par rapport à C1 est contraire aux conclusions portées jusqu'à ce jour par le suivi du lixiviat des casiers. Cette différence peut être imputée aux nombreux dysfonctionnements observés (fuites) au cours des premiers mois d'enfouissement sur le casier C1 et qui ont eu pour conséquences de ralentir les premières phases de dégradation. Une fois les problèmes réglés, le retard a pu être rattrapé et la tendance a pu s'inverser sur le long terme.

La détermination de l'indice SUVA est souvent mise en parallèle avec le fractionnement des molécules organiques selon leur caractère hydrophobe. Pour l'ensemble des tests, la répartition des différentes fractions de la matière organique n'évolue pas de façon significative au cours du temps. La répartition de la matière organique à  $\pm 3\%$  est présentée sur la Figure 42 après 24 et 120 heures de lixiviation.

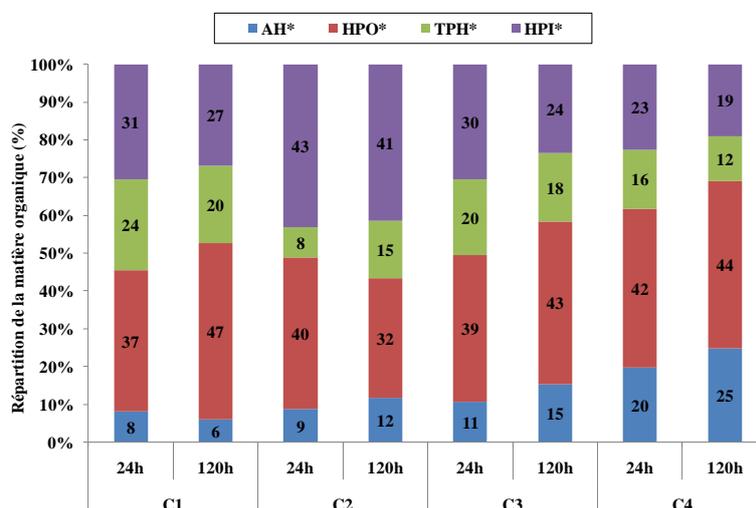


Figure 42 : Fractionnement de la matière organique relarguée dans la phase liquide après 24 et 120 heures de lixiviation.

La phase liquide issue de la lixiviation du déchet C1 présente la plus faible proportion d'AH\* (inférieure à 10 %) alors que la plus élevée a été mesurée pour C4 (supérieure à 20 %) signe d'un état d'humification plus avancé pour ce casier et à mettre en relation avec le prétraitement mécanique et biologique avant enfouissement qui semble avoir un effet positif sur la dégradation des déchets. En outre, l'impact de la durée du prétraitement est perceptible : plus le prétraitement

est long et plus l'état de maturation de la matière organique mobilisée dans la solution après 5,5 années d'enfouissement est avancé. Le pourcentage d'HPO\* est semblable pour C1, C3 et C4 (environ 40 - 45 %) mais est légèrement plus faible pour C2 (autour de 30 - 40 %). Le déchet C2 contient un faible taux d'HPO\* et un pourcentage élevé d'HPI\* (voisin de 40 %) qui corrobore les informations apportées par l'indice SUVA (Figure 41) ; la recirculation du lixiviat ne semble pas avoir un effet positif important sur l'humification de la matière organique (Tableau XL).

Tableau XL : Caractéristiques de la matière organique extraite après 120 heures de lixiviation.

Paramètres		C1	C2	C3	C4
AH*/AF*	-	0,13 ± 0,01	0,37 ± 0,02	0,36 ± 0,02	0,56 ± 0,02
SH*	%	52,6 ± 0,2	43,4 ± 0,3	58,4 ± 0,2	69,1 ± 0,1
SUVA	L/cm/gC	17,6 ± 0,7	9,4 ± 0,5	26,7 ± 0,2	34,5 ± 0,5

ratio AH\*/AF\* correspond à %AH\* / %HPO\*

SH\* correspond à %AH\* + %HPO\*

La proportion de substances humiques (SH\*) et l'indice SUVA indiquent tout deux un état de dégradation plus avancé pour C4 suivi de C3 puis de C1 et enfin C2. L'association de ces deux paramètres constitue un bon indicateur de l'avancement de la dégradation des déchets. De plus, la teneur en SH\* supérieure à 60 % pour le lixiviat de C4 permet de considérer ce déchet comme stabilisé (Berthe, 2006) alors que les autres déchets n'ont pas encore atteint ce niveau de stabilité même si leur dégradation est déjà bien avancée. Le rapport AH\*/AF\* renseignant sur la stabilité des molécules tend également vers cette conclusion car la valeur supérieure à 0,5 obtenue pour C4 lui confère une stabilité élevée (Berthe, 2006). Pour les autres déchets, la stabilité des molécules organiques extraites est beaucoup plus faible (AH\*/AF\* < 0,5) et l'état de dégradation va encore évoluer vers un état de stabilité plus élevé ; les processus d'humification ne sont pas tout à fait achevés. Au vue de ces résultats, la hiérarchisation précédemment avancée semble se confirmer (C4 > C3 > C1 > C2).

L'évolution de la matière organique au sein du déchet permet également d'appuyer ces observations. Cette matière organique s'exprime au travers des acides de types humique (AH\*s) et fulviques (AF\*s) extraits du déchet avant et après lixiviation ; les résultats obtenus pour les 4 déchets excavés et après 120 heures de lixiviation sont présentés dans le Tableau XLI. Les quantités d'AH\*s et d'AF\*s extraites pour chaque casier tout au long de la lixiviation ne varient pas de façon significative, ce qui est en accord avec les résultats obtenus par le fractionnement selon le caractère hydrophobe de la matière organique réalisé sur la phase liquide.

Tableau XLI : Caractéristiques de la matière organique du déchet.

Paramètres		C1		C2		C3		C4	
		Initial	120h	Initial	120h	Initial	120h	Initial	120h
AH*s	g/kgMS	10,1 ± 0,4	5,5 ± 0,3	4,7 ± 0,9	4,4 ± 0,4	3,9 ± 0,5	1,6 ± 0,4	4,4 ± 1,6	3,6 ± 0,6
AF*s	g/kgMS	15,4 ± 2,1	7,7 ± 0,8	8,7 ± 0,1	4,2 ± 0,7	6,1 ± 0,3	4,0 ± 0,2	3,9 ± 0,3	3,5 ± 0,2
RH	-	0,66	0,71	0,55	1,05	0,64	0,39	1,13	1,04

RH correspond au ratio AH\*s / AF\*s

Après 120 heures de lixiviation, une diminution de la teneur en AH\*s et en AF\*s est observée pour l'ensemble des déchets. Toutefois, pour C2, cette diminution de la teneur en AH\*s n'est pas réellement significative. Ce déchet a donc conservé un potentiel de mobilisation fort et la part qu'il remobilise en solution est plus hydrophile, confirmant les résultats obtenus lors du fractionnement

de la matière organique sur la phase liquide où la fraction HPI\* était la plus importante. Le ratio RH (AH\*/AF\*s) évolue faiblement au cours de la lixiviation, il tend à diminuer pour C3 et C4 alors qu'il augmente pour C1 et C2. Cette évolution traduit la présence de molécules plus stable et donc difficilement extractibles au sein des déchets C3 et C4 ; les déchets C1 et C2 contenant quant à eux des molécules organiques plus facilement lessivable de type hydrophiles.

*Comme précédemment, le déchet C2 se distingue des autres de part le type de matière organique qu'il contient et qu'il est susceptible de libérer au cours de la lixiviation ; cette matière organique étant dans un état de dégradation moins avancé. Les déchets C3 et C4 apparaissent quant à eux être dans un état de dégradation, de maturité et de stabilité plus avancé que les autres casiers. De part ces deux principales observations, l'impact d'un prétraitement ou le mode de fonctionnement du casier peut être mis en avant : le prétraitement mécanique et biologique favorise la biodégradation du déchet lors de l'enfouissement et ce d'autant plus que la phase de prétraitement est longue contrairement à la recirculation du lixiviat.*

#### 1.2.2.4 Bilan de la lixiviation

Les quantités totales de DCO, COD, azote total (N<sub>tot</sub>) et AH\* extraites lors du test de lixiviation sont présentées dans le Tableau XLII.

Tableau XLII : Quantités de polluants extraits après 120 heures de lixiviation.

Paramètres		C1	C2	C3	C4
DCO	gO <sub>2</sub> /kgMS	6,59 ± 0,71	19,87 ± 2,41	6,97 ± 0,12	7,71 ± 0,86
COD	gC/kgMS	2,05 ± 0,24	6,91 ± 0,06	2,54 ± 0,04	2,55 ± 0,28
N tot	gN/kgMS	0,22 ± 0,02	0,70 ± 0,04	0,35 ± 0,04	0,40 ± 0,04
AH*	%	6,0	11,6	15,4	24,7
	g/kgMS	0,12	0,80	0,39	0,63

En terme de quantité relarguée, le comportement à la lixiviation des déchets C1, C3 et C4 est très proche alors que C2 se distingue clairement. Ainsi, après 5,5 ans d'enfouissement, le déchet excavé remobilise des quantités de polluants similaires pour ces trois modalités. Une différence importante est toutefois à noter au niveau de la teneur en AH\* dans la phase liquide. En effet, ils sont proportionnellement retrouvés en plus grande quantité pour C3 et C4 ; respectivement 15,4 et 24,7% contre 6,0 et 11,6 % pour C1 et C2. La différence observée au niveau des AH\* est liée à une humification plus avancée de C3 et C4 par rapport à C1. Cependant, comme C2 relargue une quantité de matière organique (exprimée en COD) presque 3 fois supérieure aux autres déchets, la quantité d'AH\* relarguée est elle aussi beaucoup plus importante. Le comportement du déchet C2 est complètement différent des autres du fait que les quantités de polluants émis au cours de la lixiviation sont systématiquement supérieures. Le mode de fonctionnement du casier dont il est issu conserve donc de façon significative la charge polluante au sein du déchet ; les différents polluants sont donc facilement relargables par lixiviation avec une solution non saturée.

En calculant le ratio de la quantité d'un composé retrouvé dans la phase liquide après 120 heures de contact par rapport aux quantités du même composé ou d'un composé analogue présent au sein du déchet solide excavé, il est possible d'évaluer le potentiel de relargage des déchets excavés et donc d'estimer leur capacité à remobiliser des polluants (Tableau XLIII).

Tableau XLIII : Bilan de la lixiviation après 120 heures de contact.

Paramètres		C1	C2	C3	C4
DCO liquide / MO solide	%	1,3	3,4	1,5	2,4
COD liquide / MO solide		0,4	1,2	0,5	0,8
Ntot liquide / NTK solide		2,5	8,1	6,1	8,0
AH*/AH*s		1,2	17,0	9,9	14,3

Proportionnellement à la quantité présente dans le déchet avant la lixiviation, C2 semble avoir une plus grande facilité à relarguer des substances aussi bien organiques que minérales qui le compose. Les déchets prétraités avant enfouissement (C3 et C4) semblent également conserver une capacité plus grande à mobiliser des composés du déchet du fait de l'influence du prétraitement mécanique et biologique qui rendrait la matière organique notamment plus accessible pour les microorganismes et donc plus facile à extraire du déchet solide.

*Les résultats obtenus sur les phases liquide, solide et gazeuse issues de la lixiviation des déchets excavés convergent tous vers les mêmes conclusions quand à l'état d'avancement de la dégradation des déchets après 5,5 années d'enfouissement. La mise en place d'un prétraitement biologique avant enfouissement favorise la mise en place d'un état stable alors que la recirculation du lixiviat lors du stockage ne permet pas d'atteindre plus rapidement cet état et aurait même tendance à générer un retard. La durée du prétraitement biologique semble également avoir un effet sur l'état d'avancement de la dégradation. L'état de stabilité des différents casiers peut donc être hiérarchisé du plus stable au moins stable : C4 > C3 > C1 > C2. En outre, malgré l'état de dégradation déjà avancé de l'ensemble des déchets, la reprise d'une activité biologique lors d'un contact avec une solution non saturée reste toujours possible, à des degrés toutefois différents selon le déchet considéré. Cette observation peut s'avérer importante sur site car l'introduction d'eau dans un système confiné et considéré comme stable pourrait relancer la dégradation et donc une production intempestive de biogaz et de lixiviat dont les émissions ne seraient pas contrôlées.*

### I.3. Bilan complet

Le bilan complet de la filière de traitement s'effectue au travers d'un bilan carbone et azote (Tableau XLIV). Le bilan réalisé n'est toutefois que partiel car il ne prend en considération que les espèces précédemment citées c'est-à-dire analysées au cours du suivi des lixiviat, du biogaz et lors de la caractérisation des déchets (entrants et excavés). Le calcul du pourcentage de perte s'effectue par rapport à la teneur en carbone ou en azote initialement présente dans le déchet considéré (entrant ou excavé).

Le déchet considéré contient une plus grande quantité de composés carbonés qu'azotés ; ratio C/N de 31 caractéristique d'un déchet frais (François, 2004). Le prétraitement biologique tend à faire diminuer ce ratio puisque la teneur en carbone est abattue de 22 à 36 % selon la durée du prétraitement et que la quantité d'azote diminue également mais dans une plus faible mesure (de l'ordre de 10 % de perte). Le carbone et l'azote sont en effet fortement dégradés sous forme de CO<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>O et NH<sub>3</sub> au cours de l'exploitation et majoritairement lors de l'étape de prétraitement.

Tableau XLIV : Bilan carbone et azote de la filière de traitement en masse sèche (en kgC et kgN).

Paramètres		C1	C2	C3	C4	
Bilan Carbone	Initial		2271	2816	2258	2241
	Prétraitement	Gaz (CO <sub>2</sub> + CH <sub>4</sub> )			474	671
		<i>perte</i>			21%	30%
		Lixiviat (COT)			0,44	0,39
		<i>perte</i>			0,02%	0,02%
	Entrant		2271	2816	1751	1429
	<i>% perte lié au prétraitement</i>				22%	36%
	Stockage	Gaz (CO <sub>2</sub> + CH <sub>4</sub> )	621	393	88	59
		<i>perte</i> *	27%	14%	5%	4%
		Lixiviat (COT)	6,2	4,9	10,0	8,4
		<i>perte</i> *	0,27%	0,18%	0,57%	0,59%
	Restant		1649	2414	1644	1347
	<i>%perte lié au stockage *</i>		27%	14%	6%	6%
<b><i>pertes totales</i></b>		<b>27%</b>	<b>14%</b>	<b>27%</b>	<b>40%</b>	
Bilan Azote	Initial		73	91	73	72
	Prétraitement	Gaz (N <sub>2</sub> O + NH <sub>3</sub> )			17	30
		<i>perte</i>			22%	48%
		Lixiviat (Ntot)			0,3	0,3
		<i>perte</i>			0,013%	0,013%
	Entrant		73	91	74	62
	<i>% perte lié au prétraitement</i>				0%	14%
	Stockage	Gaz (N <sub>2</sub> O + NH <sub>3</sub> )	< 0,01	< 0,01	0	0
		<i>perte</i> *	< 0,01%	< 0,01%	0%	0%
		Lixiviat (Ntot)	11,4	4,0	4,8	3,1
		<i>perte</i> *	16%	4%	6%	5%
	Restant		63	87	70	61
	<i>% perte lié au stockage *</i>		14%	4%	5%	2%
<b><i>pertes totales</i></b>		<b>14%</b>	<b>4%</b>	<b>5%</b>	<b>15%</b>	

\* *perte par rapport à l'entrant (après prétraitement)*

La caractérisation du déchet initial s'effectue également au travers d'une lixiviation (

Tableau XLV). La lixiviation initiale du déchet ayant été effectuée avec un temps de contact de 24 heures, les résultats de la caractérisation des déchets excavés retenus pour ce bilan sont ceux après 24 heures de contact.

Ainsi, une plus grande capacité à relarguer de l'azote (12 % de perte) que du carbone (3 % de perte) malgré la plus forte proportion de carbone dans le déchet est mise en avant. Cette aptitude à relarguer des espèces minérales et organiques en milieu non saturé informe sur le potentiel de dégradation du déchet que ce soit en conditions de stockage ou lors du prétraitement.

Tableau XLV : Lixiviation des espèces carbonées et azotées avant et après traitement (en MS).

Paramètres		C1	C2	C3	C4
Lixiviation initiale	kgC	70	86	69	69
	% perte	3 %			
	kgN	8,7	10,8	8,7	8,6
	% perte	12 %			
Lixiviation finale	kgC	11,0	28,5	18,3	19,3
	% perte	0,7 %	1,2 %	1,1 %	1,4 %
	kgN	1,7	3,1	2,4	2,8
	% perte	2,7 %	3,5 %	3,4 %	4,6 %

Quelle que soit la filière considérée, la perte en carbone au cours de l'ensemble du procédé a lieu principalement sous forme gazeuse soit plus de 80 % du carbone perdu. Les casiers prétraités (C3 et C4) présentent une perte en carbone plus importante du fait de l'importante conversion du carbone organique en CO<sub>2</sub> au cours de l'étape de prétraitement aérobie. Le comportement des 4 casiers se distingue d'autant plus au travers des voies d'émissions de l'azote. En effet, la perte d'azote de C1 et C2 se fait majoritairement par voie liquide dont plus de 80 % sous forme de NH<sub>4</sub><sup>+</sup>. Pour C4, la perte d'azote s'effectue par voie gazeuse intégralement lors du prétraitement aérobie alors que pour C3 elle a lieu au moment du stockage. Cette différence est vraisemblablement due à la durée du prétraitement qui lorsqu'elle est trop courte n'impacte pas les espèces azotées. Les espèces azotées sont également lessivées dans des moindres proportions et sous forme de NH<sub>4</sub><sup>+</sup>. De plus, le relargage d'azote est moins important dans le cas de la filière bioréacteur (C2) du fait de la recirculation des lixiviats qui a tendance à concentrer l'azote au sein du massif de déchets. La caractérisation du déchet après excavation met également en avant une teneur en azote importante voire même plus élevée que celle du déchet initial. La recirculation d'un lixiviat très chargé en azote (concentration souvent supérieure à 200 mgN/L) a créé un phénomène de concentration de l'azote au cœur du massif de déchets.

Le ratio C/N du déchet excavé a également évolué en fonction de la dégradation du déchet ; il diminue pour C1 et C2 alors qu'il varie peu pour C3 et C4. La diminution de cet indice est assimilable à une forte dégradation du carbone organique initialement présent dans le déchet ce qui a eu lieu dans les 4 filières de traitement. Toutefois, la forte dégradation de l'azote lors du prétraitement aérobie contrebalance la baisse de la teneur en carbone du déchet (Jimenez *et al.*, 1993).

La lixiviation de l'ensemble des déchets excavés (

Tableau XLV) indique qu'ils possèdent encore un fort potentiel de relargage en carbone et en azote malgré l'abattement ayant eu lieu tout au long de la filière de traitement. Une part importante des polluants est donc encore contenue dans les déchets issus des 4 casiers. Les déchets prétraités (C3 et C4) possèdent toutefois un plus fort potentiel de lixiviation que C2, lui-même plus élevé que celui de C1. Seul le type exact de composés lixiviés grâce à un protocole adapté permet de différencier le comportement des 4 déchets issus de 4 filières distinctes de traitement des déchets ménagers.

*La réalisation de ces bilans carbone et azote a révélé l'extrême difficulté à capter tous les flux de polluants sortant notamment au niveau de l'étape de prétraitement biologique. En effet, le procédé employé ne permettait pas une récupération totale des gaz produits et plusieurs hypothèses ont dues être formulées telle que « les émissions gazeuses sont égales aux émissions actives, équivalentes à l'air insufflé dans l'andain par l'aération forcée ».*

## I.4. Conclusion au projet ELIA

La difficulté de l'exploitation d'une telle expérimentation réside dans la réalisation de bilans massique, hydrique et matière précis du fait des différences de précision de l'ensemble des techniques analytiques utilisées. Il est également difficile de tenir compte de tous les problèmes techniques pouvant survenir et de nombreuses hypothèses doivent être faites et ne sont pas toujours forcément validées. Ainsi, le bilan précédemment proposé comporte quelques incohérences mais permet néanmoins de porter des conclusions très intéressantes quant aux différents modes de gestion testés.

Le bioréacteur (C2) est ainsi conçu pour recirculer une partie du lixiviat et maintenir un taux d'humidité optimal pour l'activité biologique tout en réintroduisant une flore méthanogène au cœur du massif de déchet. Les premières étapes de la dégradation (comme l'hydrolyse), considérées comme essentielles à la dégradation des déchets, ne sont pas influencées par une telle gestion car elles dépendent principalement de la flore aérobie et de la quantité d'oxygène piégée avec les déchets au moment de la fermeture du casier. En effet, cette étape permet de dissocier les molécules complexes pour former des molécules plus simples facilement assimilables par la flore bactérienne caractéristique des phases suivantes. Comme dans le cas d'une gestion conventionnelle, la matière organique étant moins accessible dès le début de la dégradation, son processus d'humification n'est pas accéléré et peut même être ralenti. Toutefois, la recirculation du lixiviat permet entre autre de lessiver la charge polluante du déchet et notamment les composés inhibiteurs pour les phases suivantes tels que les AGV et ainsi permettre la mise en place rapide de la méthanogenèse.

Dans le cas présent de cette étude, la singularité de fonctionnement des casiers témoin (C1) et bioréacteur (C2) a difficilement permis de mettre en avant l'impact de ce concept. En effet, le suivi des lixiviats produits et du biogaz ne convergent pas vers une même conclusion. Un suivi à plus long terme après l'arrêt de la recirculation aurait été nécessaire afin de mieux comparer les différentes filières. La caractérisation des déchets excavés notamment au travers de leur lixiviation a permis de statuer quant à l'effet de la recirculation du lixiviat sur la stabilité du déchet. Il apparaît ainsi que la recirculation du lixiviat lors du stockage ne permet pas d'atteindre plus rapidement un état stabilisé et aurait même tendance à générer un léger retard. En outre, compte tenu des conditions opératoires appliquées notamment au niveau du taux de recirculation, les résultats obtenus sont difficilement extrapolables et comparables à d'autres types de bioréacteur.

A l'inverse du bioréacteur, l'un des objectifs du prétraitement mécanique et biologique est de favoriser les premières étapes de dégradation aérobies du déchet et ainsi de rendre plus accessible la matière organique pour les autres phases de dégradation. Ce type de prétraitement permet également de stabiliser le déchet avant son enfouissement. Des prétraitements aérobies de 12 et 25 semaines ont ainsi permis de réduire de respectivement 79 et 95 % le potentiel de production de biogaz du fait de l'abattement de la teneur en carbone du déchet par conversion sous forme de CO<sub>2</sub>. L'enfouissement de ces déchets génère une production résiduelle de biogaz qui varie selon le degré de prétraitement du déchet. Cette production de biogaz présente une cinétique rapide signe d'une mise en place précoce de la méthanogenèse (Binner et Zach, 1999 ; Bockreis et Steinberg, 2005). La stabilité du déchet prétraité et enfoui est également perceptible au travers du suivi des caractéristiques de la matière organique lixiviée. Ainsi, au terme de plus de 5,5 années d'enfouissement, la matière organique relarguée par les casiers C3 et C4 présente des caractéristiques similaires : un taux important d'AH\* (> 35 %) et un indice SUVA élevé (> 50 L/cm/gC) indiquant un état d'humification avancé (Berthe *et al.*, 2008).

Au vue de leur impact différent mais tout à fait complémentaire sur la dégradation des déchets en conditions d'enfouissement, une combinaison de ces 2 modes de gestion pourrait s'avérer intéressante : un prétraitement aérobie succinct permettrait de favoriser la mise en place rapide de la méthanogenèse sans trop diminuer le potentiel de biogaz, et une gestion en mode bioréacteur permettrait d'augmenter la production de biogaz.

## II. Projet BIOPTIME

Les conclusions apportées dans le cadre de la première partie du projet BIOPTIME (tests de modalités à l'échelle 1 L) ont permis de définir les modalités de gestion les plus pertinentes à mettre en œuvre à l'échelle pilote. La démarche expérimentale comprend un suivi des émissions liquides et gazeuses lors de l'enfouissement ainsi qu'une caractérisation du déchet en amont et en aval du stockage (Figure 20).

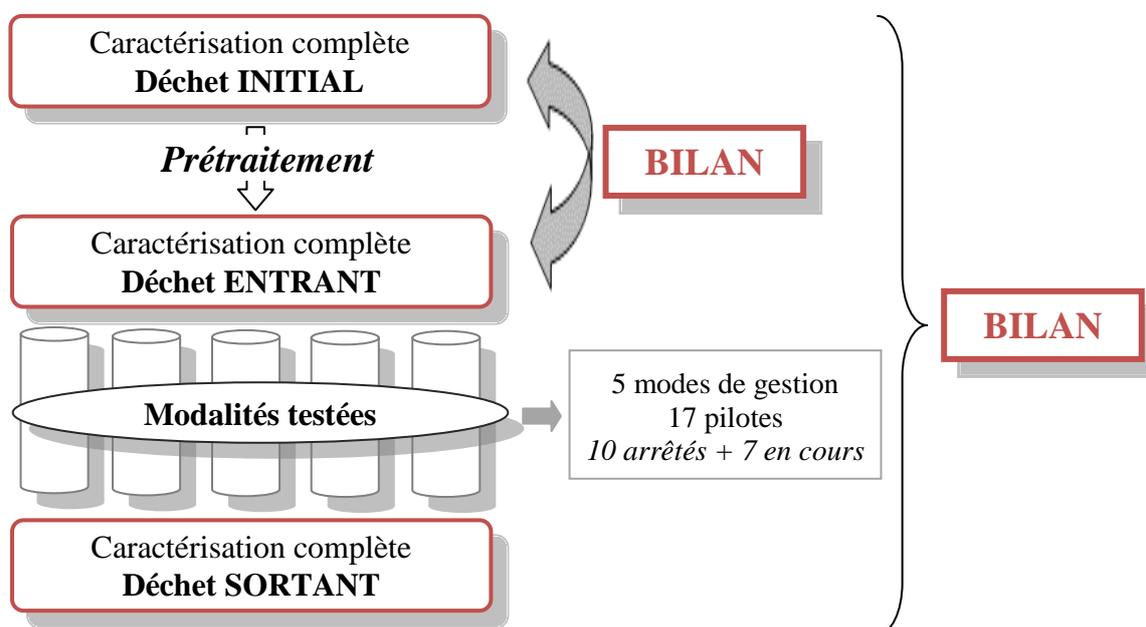


Figure 43 : Démarche expérimentale de suivi des pilotes BIOPTIME.

Sur l'ensemble des 17 pilotes étudiés et correspondant à 5 modes de gestion différents, 10 pilotes ont été arrêtés et 7 sont encore en cours d'exploitation. Le suivi de 4 de ces pilotes servira plus particulièrement à la collecte des données pour effectuer une analyse statistique. En effet, il s'agit de modalités identiques ayant pour objectif d'évaluer l'effet de la reproductibilité d'un tel traitement à l'échelle 68 L. Cette étude statistique ne sera réalisée qu'à l'excavation de l'ensemble des pilotes suivis.

La nomenclature appliquée aux différentes modalités de prétraitement et donc aux différents pilotes est reprise en Annexe 2.

### II.1. Caractérisation bio-physicochimique des déchets

Le déchet étudié est préalablement caractérisé. La répartition par catégorie du déchet étudié est similaire à celle d'un déchet français type (ADEME, 1993). Il est majoritairement constitué de composés organiques ( $63,8 \pm 2,2$  %) correspondant à des fermentescibles, du bois et des papiers-cartons mais également des plastiques (Figure 44). Cette part importante de matière organique peut être considérée comme propice à la mise en place d'un prétraitement biologique du déchet avant

enfouissement. Toutefois, la forte proportion de plastiques (12,7 %MS) est prise en considération dans l'estimation de la teneur en matière organique et modifie la relation entre la matière organique et l'état de dégradation du déchet (Kelly, 2002). En effet, il s'agit de composés difficilement dégradables qui représentent cependant une source importante de matière organique. En outre, de part la teneur élevée en matière organique qu'il contient, ce déchet est comparable à un déchet frais (François *et al.*, 2006).

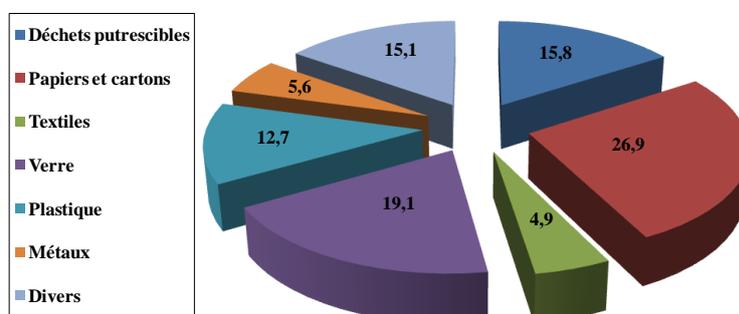


Figure 44 : Répartition par catégories du déchet reconstitué témoin (%MS).

La mise en place d'un prétraitement du déchet ou d'une modalité de préparation avant enfouissement tend à modifier la composition et les caractéristiques bio-physicochimiques du déchet considéré. Les caractéristiques des déchets selon la modalité envisagée sont consignées dans le Tableau XLVI ; certaines mesures n'ont toutefois pas pu être réalisées. Les valeurs présentées correspondent à la moyenne des valeurs obtenues lors de la caractérisation des différents déchets d'une même modalité soit :

- A\_L correspond à A\_L1, A\*\_L2 et A\_L3
- A\_M correspond à A\*\_M1, A\*\_M2 et A\_M3
- I correspond à I\_S et I\_P
- B correspond à B\_1, B\*\_1 et B\_2

Seule la modalité A\_H ne correspond pas à une moyenne car une seule modalité de prétraitement aérobie de niveau élevé (> 20 %) a été réalisée.

Tableau XLVI : Caractéristiques moyennes des déchets utilisés.

Paramètres		C	A_L	A_M	A_H	I	B
MO	%	63,8 ± 2,2	55,8 ± 1,9	50,4 ± 1,0	43,3 ± 1,3	65,1 ± 0,2	55,5 ± 0,7
AH*s	gC/kgMS	6,5 ± 0,4	1,8 ± 0,3	1,9 ± 0,9			1,7 ± 0,7
RH	-	0,31	0,20	0,24			0,21
NTK	gN/kgMS	8,0 ± 1,6	12,4 ± 1,8	10,2 ± 0,4		8,4 ± 0,1	6,3 ± 0,4
BMP	NLCH <sub>4</sub> /kgMS	142	130	90	70		

RH correspond au ratio AH\*s / AF\*s

La majorité des modalités testées abaissent la teneur en matière organique du déchet avant même son enfouissement. Seul l'ajout d'inoculum (I) engendre une augmentation par rapport au témoin (C) liée à la nature même des composés ajoutés qui sont riches en substances organiques ; la DCO des boues de STEP (I\_S) ajoutées étant de 19,7 gO<sub>2</sub>/L et la teneur en matière organique des bouses de vaches (I\_P) de 85,2 %. Au contraire, l'ajout de mâchefers (B), quelque soit son origine (1 ou 2)

a tendance à faire baisser la teneur en matière organique du mélange du fait de sa structure essentiellement minérale. Le prétraitement aérobique du déchet engendre quant à lui une diminution de la teneur en matière organique quasiment proportionnelle à la perte en carbone occasionnée par le traitement (pour l'évolution de  $A\_L$  vers  $A\_H$ ;  $r^2=0,92$ ). L'objectif de ce prétraitement biologique visant à réduire la quantité de matière organique biodégradable à enfouir est donc atteint.

Les caractéristiques de la matière organique du déchet sont également appréhendées au travers de la mesure de teneur en acides de types humiques (AH\*s) et fulviques (AF\*s) ainsi que par le calcul du ratio RH (Rapport d'Humification  $RH = C_{AH*s} / C_{AF*s}$ ). Ces deux paramètres donnent des informations sur le degré d'humification et de stabilité du déchet (Tuomela *et al.*, 2000). L'intérêt témoigné pour ces substances est également dû à la stabilité de leur structure moléculaire et à leur prédominance en fin de procédé (Berthe *et al.*, 2007). Dans le cas d'un déchet frais, il est impossible d'observer une matière humifiée et les AH\*s sont en fait des biomolécules présentes dans les déchets (protéines, sucres, etc...) qui ont les mêmes propriétés d'extractibilité que les substances humiques. Les composés appelés AH\*s et AF\*s correspondent donc à un ensemble de composés solubles dans la soude regroupant des composés humifiés et des biomolécules. Par conséquent, le rapport d'humification RH traduit une différence d'extractibilité des composés organiques, et non un réel degré d'humification de la matière organique (Francou *et al.*, 2008). Les AF\* étant plus importants dans les déchets frais et minoritaires après biodégradation, le ratio RH augmente au cours de la biodégradation. Dans la littérature, les valeurs de RH sont comprises entre 0,1 et 10 pour des composts (Adani *et al.*, 1995). Un RH inférieur à 1 correspond à un degré de maturité faible et à l'inverse, un RH supérieur à 1,3 traduit un degré de maturité élevé (Francou *et al.*, 2008). Un déchet frais possède un RH de 0,4 à 0,5 contre 1 à 1,5 pour un déchet dégradé après incubation anaérobique (Gachet, 2005). Pour le déchet reconstitué considéré, la teneur en AH\*s et le ratio RH sont relativement faibles, respectivement  $6,48 \pm 0,36$  gC/kgMS et 0,31, signifiant que le déchet étudié a bien les caractéristiques d'un déchet frais. L'application d'une modalité de prétraitement engendre une baisse significative de la teneur en AH\*s et du ratio RH. Dans le cas de l'ajout de mâchefers cette baisse n'est due qu'à la prise en compte des mâchefers dans le protocole d'extraction car ils n'apportent aucune espèce humiques mais font diminuer la proportion d'AH\* présente dans le déchet par rapport à la masse totale mâchefers - déchets. Le prétraitement aérobique quant à lui transforme la matière organique du déchet mais la durée du traitement n'est pas suffisante pour qu'un réel processus d'humification ait le temps de se mettre en place.

La teneur en azote d'un déchet ménager provient principalement des putrescibles, des déchets verts et des textiles présents à hauteur de 20,7 %. Elle est exprimée au travers de la teneur en azote Kjeldahl. Par hypothèse, les teneurs en nitrates et nitrites n'ont pas été mesurées et seront négligées dans les bilans azote car elles sont souvent considérées comme minoritaires (Lornage, 2006). Le déchet initial contient une proportion d'azote légèrement plus faible que celle habituellement mesurée dans les déchets frais (ADEME, 1999a). Compte tenu des incertitudes de mesure, le prétraitement du déchet ne semble pas avoir un effet significatif sur le teneur en azote. La dégradation aérobique du déchet donnant lieu généralement à une production de biogaz sous forme de  $NH_3$  et  $N_2O$ , la teneur en azote mesurée pour  $A\_L$  et  $A\_M$  devrait être inférieure à celle du témoin.

La faible évolution de la teneur en azote ne permet pas d'utiliser ce paramètre comme un indicateur pertinent de l'état de dégradation des déchets. Toutefois, à partir des teneurs en carbone et azote, il est possible de calculer le rapport C/N informant sur l'aptitude de la matière organique à se minéraliser et sur son degré d'évolution au cours de la dégradation. Il est couramment admis que, plus le rapport C/N est élevé, plus le déchet se décomposera lentement mais plus le résidu obtenu sera stable. En effet, la méthanisation des déchets n'est possible que si l'ensemble des microorganismes responsables des différentes étapes de la dégradation disposent des éléments principaux à leur développement tel que l'azote en quantité suffisante (Mata-Alvarez, 2002). Un rapport C/N trop faible dû à un excès d'azote entraîne l'accumulation rapide des formes

ammoniacales au sein du massif de déchets provoquant l'inhibition des réactions de dégradation. Le rapport C/N optimal se situe entre 20 et 30 gC/gN pour que toute la matière organique soit dégradée car une carence en azote (rapport C/N très élevé) ne permet pas de dégrader toute la matière organique initialement présente (Agdag et Sponza, 2007). Dans le cadre de ce travail, seul le rapport DCO/NTK exprimé en gO<sub>2</sub>/gN a été évalué et comparé au rapport COT/NTK mentionné dans la littérature (exprimé en gC/gN). Ainsi, le déchet reconstitué présente un rapport C/N élevé (44,3 gO<sub>2</sub>/gN) de l'ordre de celui généralement observé pour les déchets ménagers français (ADEME, 1999a) et indiquant un substrat carboné important. Ce rapport est très proche de celui d'un substrat exclusivement constitué de papiers-cartons (Meraz, 1997). Ce rapport diminue (environ 36 gO<sub>2</sub>/gN) avec l'application d'un prétraitement aérobie avant stockage signe d'une meilleure aptitude à la biodégradation. L'effet du niveau du prétraitement est difficilement perceptible mais l'augmentation de l'abattement en carbone semble toutefois faire baisser le rapport C/N. En effet, au cours de la dégradation du déchet, ce rapport tend à diminuer du fait de la dégradation du carbone organique (François, 2004). Avec l'ajout de mâchefers, ce rapport est également plus faible (31,3 gO<sub>2</sub>/gN) mais n'indique pas un état de dégradation. Cette baisse est tout simplement imputable à l'ajout en quantité suffisante de composés ne contenant pas ou très peu d'azote. Pour les modalités d'inoculation, les teneurs en matière organique, en azote et bien sur le ratio C/N varient peu car l'inoculum bien que relativement chargé (Tableau XXVI - Partie II - II.2.3) n'est introduit qu'en faible proportion par rapport à la quantité de déchet.

La réactivité biologique du déchet est également caractérisée par la mesure du potentiel méthanogène (BMP) exprimant la biodégradabilité ultime du déchet au travers de la quantité maximale de biogaz (sous forme de CH<sub>4</sub>) qu'il est susceptible de produire (Adani *et al.*, 2004). L'efficacité d'un procédé de prétraitement est également perceptible au travers de ce type de test (Gomez *et al.*, 2006) car le potentiel méthanogène diminue avec l'état de dégradation (Kelly, 2002). Le potentiel de production de méthane obtenu pour le déchet reconstitué (142 NLCH<sub>4</sub>/kgMS) corrobore les données généralement retrouvées dans la littérature et aux alentours de 160 NL CH<sub>4</sub>/kgMS pour un déchet frais (Barlaz *et al.*, 1990 ; François *et al.*, 2006). Le prétraitement aérobie du déchet a engendré une chute de 9 à 51 % de ce potentiel selon le niveau du prétraitement (abattement en carbone). La stabilisation biologique des déchets prétraités ne semble toutefois pas complète même au plus haut niveau de prétraitement car le potentiel de production de biogaz est encore élevé, soit 70 NL CH<sub>4</sub>/kgMS (Kelly, 2002 ; Bilgili *et al.*, 2009). La mesure de ce potentiel apparaît donc comme un indicateur relativement pertinent dans la détermination de l'impact d'un prétraitement.

*Malgré l'hétérogénéité de la matrice qui rend la caractérisation bio-physicochimique difficilement reproductible, certains effets des modalités de prétraitement sont déjà perceptibles essentiellement au niveau du prétraitement aérobie. Ainsi, ce prétraitement semble conditionner la matière organique initialement présente dans le déchet pour la dégradation anaérobie en conditions de stockage sans trop la modifier.*

## II.2. Etape de prétraitement aérobie des déchets

Un prétraitement aérobie a été appliqué au déchet initial à 6 niveaux différents. Le niveau de perte en carbone désiré est déterminé en fonction de la quantité de CO<sub>2</sub> produits et selon la composition initiale du déchet en carbone soit 32,9 %MS pour le déchet reconstitué considéré. En effet, à chaque niveau correspond des pertes liquides, gazeuses et solides.

La perte de masse observée pour l'ensemble des déchets traités comprise entre 8 à 48 %MS selon le niveau du prétraitement aérobie. Elle correspond la minéralisation de la matière organique biodégradable mais également à une perte en eau. Toutefois, l'ajustement de la teneur en humidité

au cours du procédé permet de compenser cette perte hydrique et de rester dans des conditions optimales pour la dégradation des déchets. La réhumidification des déchets tout au long du prétraitement a été réalisée grâce au lixiviat généré. Aucune perte de liquide n'a donc eu lieu au cours de la phase de prétraitement aérobie des déchets ; ces émissions sont donc négligées pour la suite des bilans.

Au niveau des pertes par voie gazeuse, la majorité des émissions se font sous forme de CO<sub>2</sub> du fait de la conversion du carbone organique en CO<sub>2</sub> en conditions anaérobies. En outre, le niveau du prétraitement c'est-à-dire sa durée engendre une perte gazeuse plus importante ce qui est cohérent avec les données de la littérature à savoir que l'allongement de la durée de traitement favorise les émissions (Clemens et Cuhls, 2003). Ces émissions gazeuses peuvent être corrélées à la perte de matière organique (13 à 32 %) et donc à une perte de potentiel méthanogène (9 à 51 %) variable selon le niveau du prétraitement ( $r^2 = 0,93$ ).

*Les performances du procédé utilisé sont étroitement liées à la composition initiale du déchet du fait notamment de la teneur importante en papiers / cartons (26,9 %MS). En effet, les papiers / cartons ont une cinétique de dégradation plus lente que la fraction fermentescible (Komilis, 2006) à cause de leur teneur élevée en cellulose et hémicellulose (Mustin, 1987). Le dispositif utilisé a ainsi permis une réduction de masse du déchet à enfouir ainsi qu'une réduction significative de son potentiel méthanogène sans générer de lixiviat.*

### II.3. Etude approfondie du déchet témoin

La connaissance de la matrice à traiter est essentielle afin de lui appliquer un procédé adapté mais également afin d'agir sur ce traitement dans le but de l'optimiser. En effet, en s'intéressant à l'évolution de la matière hydrosoluble disponible et mobilisable dans une solution non saturée, il est possible d'appréhender l'évolution biologique d'un déchet en conditions de stockage.

Dans cet objectif, un test de lixiviation est appliqué au déchet témoin pour évaluer la solubilisation de la matière et un test BMP permet d'en déterminer la stabilité. Le potentiel global du déchet peut ainsi être estimé au mieux et servira de référence lors de la caractérisation du déchet après stockage. Ce test est réalisé selon le protocole développé au cours de ce travail de thèse (Partie II - VI.1.4). Malgré la réalisation d'un quartage rigoureux, la faible quantité de déchet utilisée peut entraîner de grandes variations expérimentales.

#### II.3.1. Suivi de la lixiviation des déchets

##### *II.3.1.1 Evolution du déchet au cours de la lixiviation*

Différents paramètres mesurés dans la phase liquide permettent de mettre en évidence l'évolution du déchet frais reconstitué au cours du test de lixiviation (Figure 45).

La diminution du pH et l'augmentation de la teneur en AGV sont caractéristiques de la mise en place de l'hydrolyse d'un déchet frais. En effet, l'acidification de la solution est due à une oxydation incomplète de la matière organique qui, en conditions anaérobies, conduit à la production d'AGV (Forster *et al.*, 1993). Ces AGV sont majoritairement constitués d'acide acétique et butyrique dès les premières heures de lixiviation (donnés validés par des analyses réalisées à l'INSA de Toulouse).

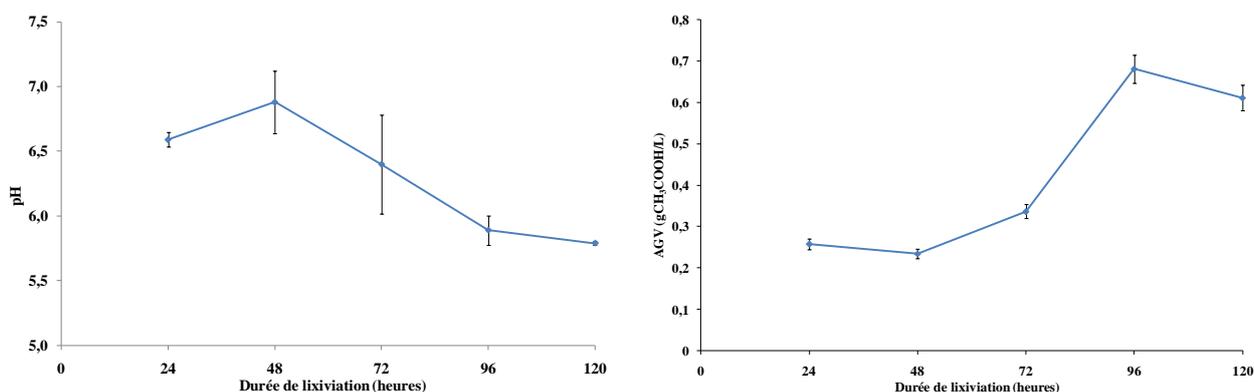
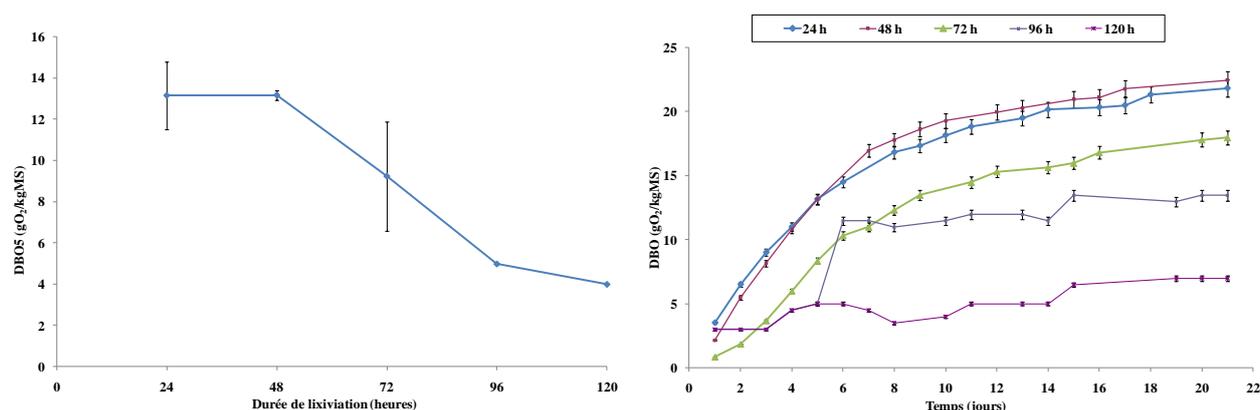


Figure 45 : Evolution du pH et de la concentration en AGV.

Les valeurs de DBO<sub>5</sub> et de DBO ultime (21 jours) sont mesurées sur les différentes phases liquides pour en estimer la biodégradabilité (Figure 46). En effet, la demande biologique en oxygène représente en général la matière organique disponible afin d'être utilisée par les micro-organismes. La connaissance du type de matière organique présent est essentielle afin d'en évaluer le devenir dans l'environnement (biodégradable ou réfractaire). La mesure de la DBO permet donc de statuer sur la biodégradabilité aérobie des composés relargués au cours du test de lixiviation.

Figure 46 : Evolution de la DBO<sub>5</sub> et de la DBO ultime selon le temps de lixiviation.

Les valeurs de DBO<sub>5</sub> durant les premières 48 heures de lixiviation ( $13,17 \pm 0,24$  gO<sub>2</sub>/kgMS) traduisent la présence de composés biodégradables au sein de la solution et par conséquent l'existence d'une activité biologique. Au-delà de 48h de lixiviation, une diminution de la DBO est observée : elle passe de  $21,8 \pm 1,2$  à  $7,0 \pm 0,1$  gO<sub>2</sub>/kgMS pour la DBO ultime. Cette chute de près de 68 % indique que la quantité de matière biodégradable présente est plus faible. Une partie des composés biodégradables solubilisés a donc été consommée pendant la lixiviation indiquant alors l'existence d'une activité biologique. Une éventuelle réadsorption de ces composés à la surface du solide ne peut pas être pris en considération car des essais préalables avaient montré que la solubilisation prédomine sur la réadsorption (François *et al.*, 2006).

Les valeurs de pH, DBO et AGV sont corrélés à la quantité et à la qualité de biogaz produit (Figure 47) ; l'hydrolyse est accompagnée d'une production importante de dioxyde de carbone. En effet, au début du test, le ciel gazeux est principalement composé d'O<sub>2</sub> et de N<sub>2</sub>. La lixiviation conduit à une chute de la teneur en O<sub>2</sub> et une augmentation de celle en CO<sub>2</sub> traduisant une activité aérobie convertissant l'O<sub>2</sub> en CO<sub>2</sub>. Au-delà de 96 heures de lixiviation, une production de biogaz de 47,2mL/kgMS est observée ; biogaz contenant  $0,36 \pm 0,05$  % de CH<sub>4</sub>. Cette teneur en méthane montre la mise en place d'une faible activité anaérobie due essentiellement aux conditions opératoires. En effet, les conditions de l'essai de lixiviation changent au fil du temps favorisant le

développement d'une flore microbienne appropriée car devant s'adapter à un environnement où l'oxygène est réduit.

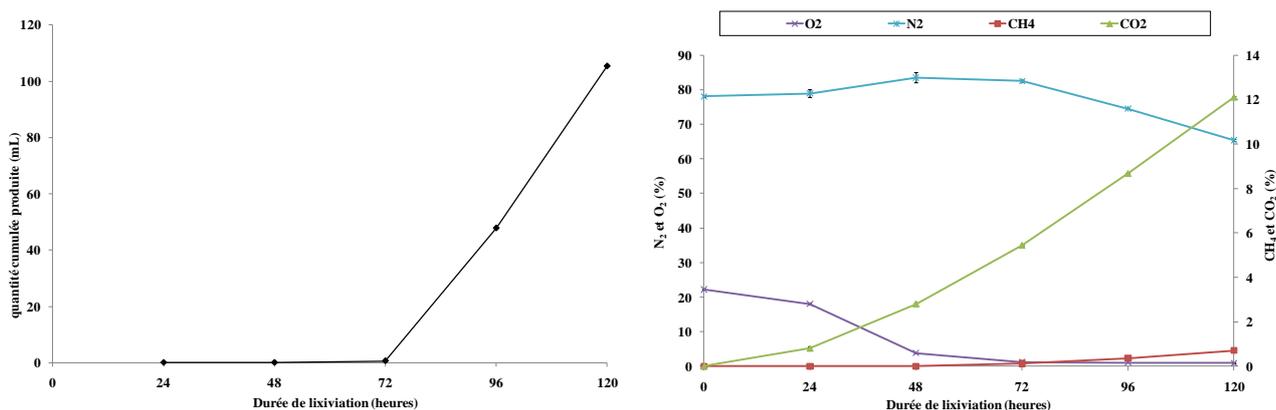


Figure 47 : Production et composition cumulée du biogaz.

Cette diminution de la matière organique observée est alors due à la minéralisation en  $\text{CO}_2$ , à la lixiviation sous forme de DCO et COD et à la production d'AGV. Il a été démontré dans la littérature que les AGV représentent moins de 10 % du COD, cette proportion est atteinte dans le cas de conditions anaérobies, et accompagnée par l'acidification de l'environnement (Bergersen *et al.*, 2009). Dans cette étude, 8 % du COD est due aux AGV après 24 heures de lixiviation.

### II.3.1.2 Les espèces minérales dans la phase liquide

La mesure de la conductivité apporte une information globale sur la quantité d'espèces minérales présentes dans la phase liquide (Figure 48).

La conductivité de la phase liquide augmente avec le temps de lixiviation de  $1,35 \pm 0,05$  à  $2,89 \pm 0,05$  mS/cm entre 24 et 120 heures de lixiviation. Cette augmentation est corrélable à la chute du pH. En effet, le lessivage des espèces chargées est plus important compte tenu des faibles pH qui favorisent la solubilisation des espèces.

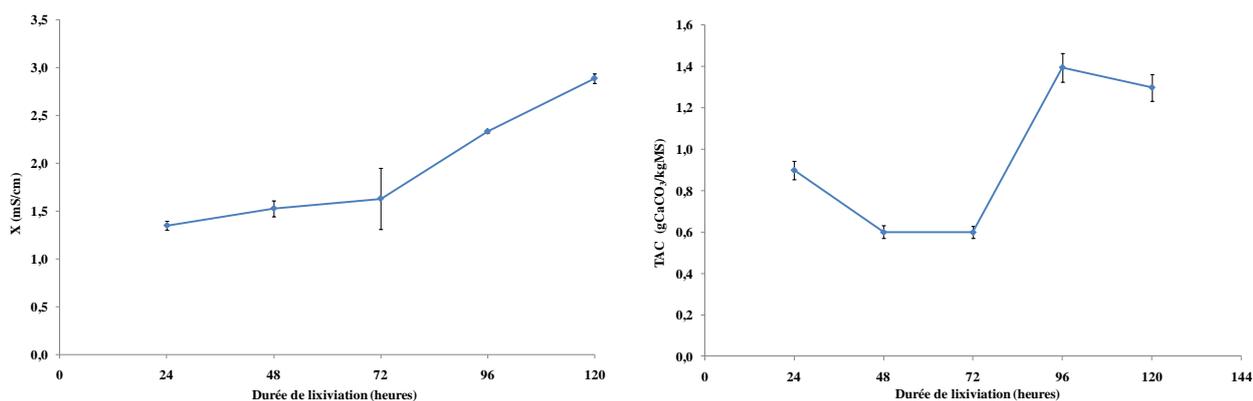


Figure 48 : Evolution de la conductivité et du TAC durant la lixiviation.

Les mesures de la conductivité sont complétées par la mesure des teneurs en carbonates et en hydrogencarbonates exprimées respectivement par le Titre Alcalimétrique (TA) et le Titre Alcalimétrique Complet (TAC) (Figure 48). Tout au long de la lixiviation, la valeur du TA est nulle (absence de  $\text{CO}_3^{2-}$ ) ; l'acidité du milieu ( $\text{pH} < 7$ ) favorisant la forme  $\text{HCO}_3^-$ . De plus, l'évolution de la courbe du TAC est liée aux variations de pH : entre 24 et 72 heures de lixiviation, le pH est

supérieur à 6,3 (correspondant au pKa du couple  $\text{HCO}_3^-/\text{H}_2\text{CO}_3$ ) et indiquant la prédominance de la forme  $\text{HCO}_3^-$  alors qu'après 72 heures de lixiviation la forme  $\text{H}_2\text{CO}_3$ , plus facilement mobilisée, apparaît en solution (pH inférieur à 6,3).

Un dosage des principaux anions ( $\text{Cl}^-$ ,  $\text{NO}_2^-$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{PO}_4^{3-}$ , et  $\text{SO}_4^{2-}$ ) et cations ( $\text{Na}^+$ ,  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Mg}^{2+}$  et  $\text{Ca}^{2+}$ ) est également réalisé (Tableau XLVII et Figure 50).

Tableau XLVII : Concentration en cations et anions après 24 et 120 heures de lixiviation.

Paramètres		24 heures	120 heures
$\text{Na}^+$	g/kgMS	1,39	1,61
$\text{NH}_4^+$		0,04	0,07
$\text{K}^+$		3,10	3,88
$\text{Cl}^-$		1,14	0,97
$\text{SO}_4^{2-}$		1,18	0,88
$\text{NO}_2^-$		0	0
$\text{NO}_3^-$		0	0
$\text{PO}_4^{3-}$		0	0

Lors de la lixiviation des espèces azotées, une absence de nitrites ( $\text{NO}_2^-$ ) et de nitrates ( $\text{NO}_3^-$ ) est observée. La quantité d'ion ammonium ( $\text{NH}_4^+$ ) est relativement faible tout au long de la lixiviation ; de l'ordre de  $0,06 \pm 0,01$  g/kgMS. L'azote issu du déchet se retrouve donc dans la phase liquide sous forme organique ; la teneur en azote Kjeldahl augmente durant l'essai de  $7,6 \pm 3,1$  à  $16,1 \pm 0,8$  gN/kgMS montrant un enrichissement en azote organique.

Une absence d'ions phosphates ( $\text{PO}_4^{3-}$ ) est également observée et peut être corrélée à la présence de microorganismes. En effet, dans le cas d'un déchet frais les ions phosphates sont rapidement lessivés puis consommés par les microorganismes (Berthe *et al.*, 2008 ; François *et al.*, 2006).

Une légère baisse de la concentration en ions sulfates ( $\text{SO}_4^{2-}$ ) dans la phase liquide est observée ; passant de  $1,18 \pm 0,15$  à  $0,88 \pm 0,05$  g/kgMS entre 24 et 120h de lixiviation. Le sulfate est donc vraisemblablement converti en  $\text{H}_2\text{S}$  par des microorganismes sulfato-réducteurs. En effet, lors de premières phases de dégradation, dans des conditions d'anaérobiose et de faible potentiel redox (Figure 49), les sulfates sont réduits en sulfures. Une complexation avec des espèces métalliques telles que le cuivre ou l'aluminium peut également être envisagée.

Le potentiel redox est également un paramètre important à mesurer car il conditionne le développement de certaines réactions, notamment l'établissement des différentes phases de dégradation qui s'effectuent en majorité en milieu réducteur.

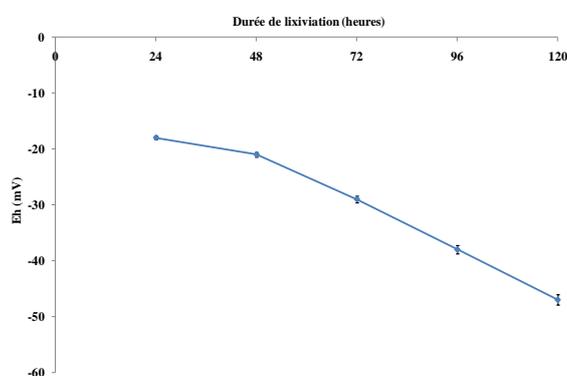


Figure 49 : Evolution du potentiel redox au cours de la lixiviation.

La diminution du potentiel redox au début de la dégradation est caractéristique d'une phase acidogène ; résultats en accord avec les conclusions précédentes quant à l'action de microorganismes acidogènes.

De plus, la diminution du pH (Figure 37) et le passage du carbone inorganique (carbonate) sous la forme de  $\text{CO}_2$  gazeux entraîne une modification de l'équilibre chimique qui se traduit par la solubilisation de précipités de  $\text{CaCO}_3$  et  $\text{MgCO}_3$ . En effet, la dissolution de la calcite ( $\text{CaCO}_3$ ) est favorisée par une augmentation de la pression partielle en  $\text{CO}_2$  et une baisse du pH. Ainsi, les teneurs en ions calcium ( $\text{Ca}^{2+}$ ) et magnésium ( $\text{Mg}^{2+}$ ) augmentent significativement au cours de la lixiviation (Figure 50) ; la teneur en  $\text{Mg}^{2+}$  semble atteindre un palier après le quatrième jour de lixiviation.

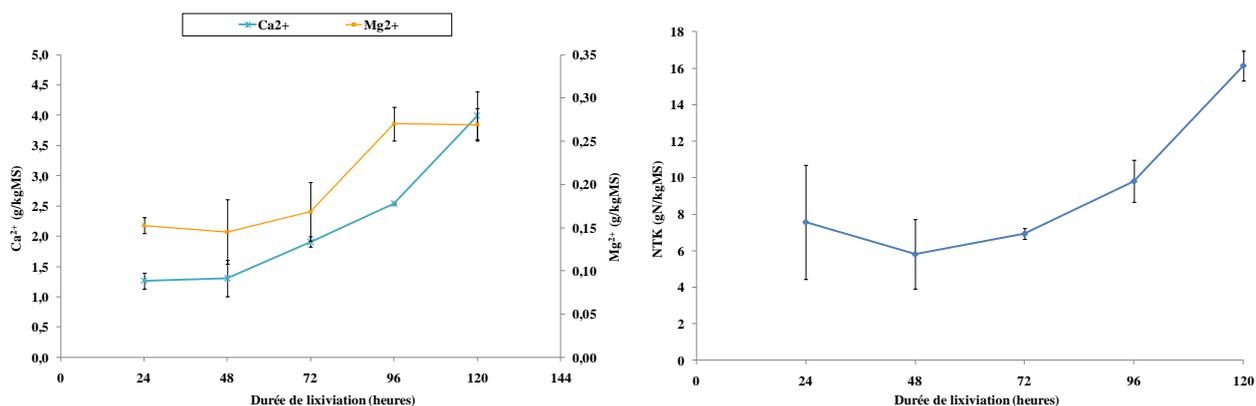


Figure 50 : Evolution des teneurs en  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$  et en NTK au cours de la lixiviation.

La concentration des autres ions ( $\text{Cl}^-$ ,  $\text{K}^+$  et  $\text{Na}^+$ ) ne varie pas significativement au cours de la dégradation. Il s'agit d'espèces souvent considérées comme inertes et conservatrices dont les teneurs ne dépendent pas des différentes phases de dégradation du déchet ; leur relargage est donc uniquement fonction du lessivage. En outre, l'acidité du milieu ne favorise pas la mobilisation des cations et des réactions de précipitation entraînent une faible teneur en cations.

### II.3.1.3 La Matière Organique dans la phase liquide

L'évaluation globale de la charge organique passe par l'étude de nombreux paramètres caractéristiques tels que la DCO, le COD ou l'absorbance UV à 254nm (Figure 51).

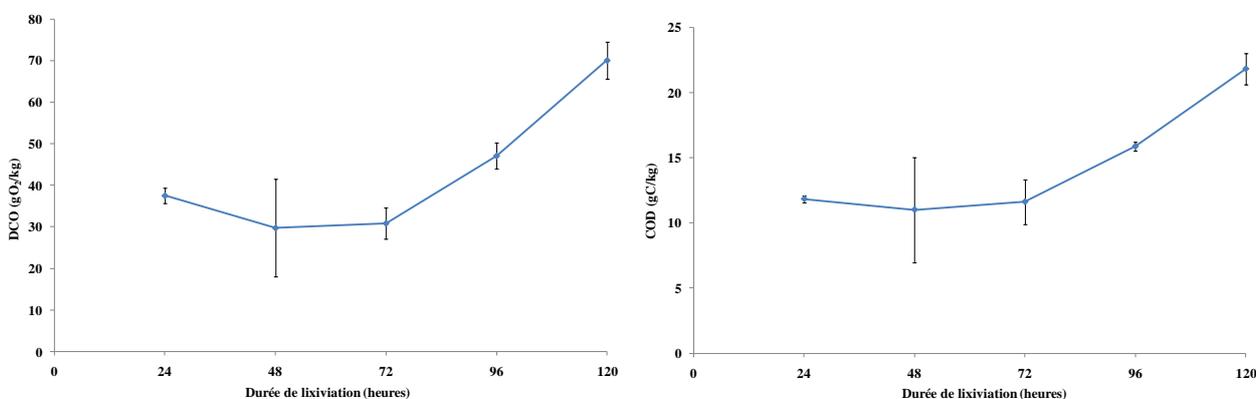


Figure 51 : Evolution de la DCO et du COD au cours de la lixiviation.

Pendant les 24 premières heures de lixiviation, une quantité importante de composés organiques est mobilisée dans la solution ; respectivement  $11,8 \pm 0,3$  gC/kgMS et  $37,5 \pm 1,8$  gO<sub>2</sub>/kgMS pour le COD et la DCO. Cette tendance est caractéristique d'un déchet frais. Au début du test l'activité biologique aérobie est prépondérante (conversion de l'O<sub>2</sub> en CO<sub>2</sub>) et se traduit par un état d'équilibre s'expliquant par une forte demande de la biomasse qui consomme une part de la DCO (ou du COD) au fur et à mesure qu'il est libéré dans la solution. Au-delà de 72 heures de contact, l'augmentation de la DCO et du COD dans le jus de lixiviation résulte d'une solubilisation de matière supérieure à sa consommation sous forme de CO<sub>2</sub>.

A partir de ces paramètres mesurés, différents rapports caractéristiques sont calculées (Figure 52).

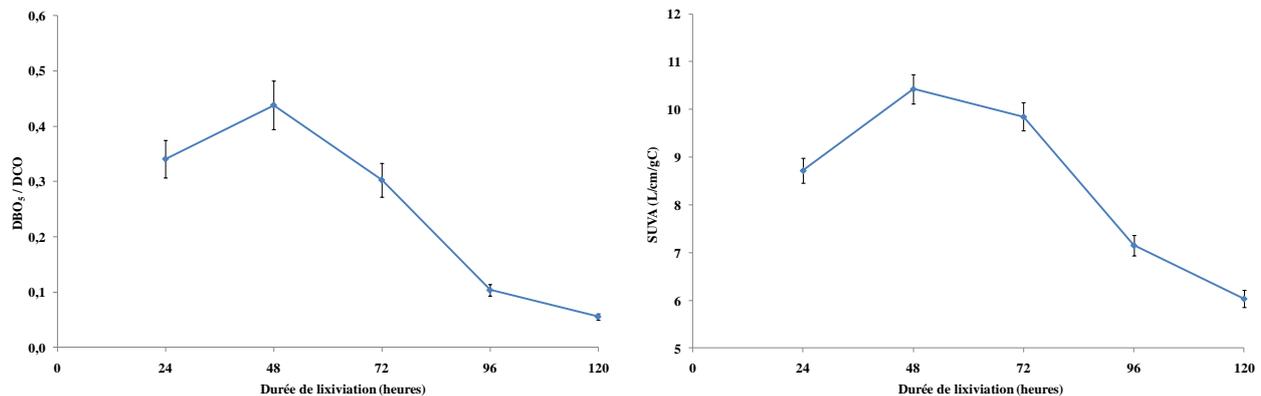


Figure 52 : Evolution du rapport DCO/DBO<sub>5</sub> et de l'indice SUVA au cours de la lixiviation.

Au cours du test de lixiviation, le rapport DBO<sub>5</sub>/DCO diminue indiquant que la biodégradabilité de la matière organique dissoute tend à diminuer (Kang *et al.*, 2002). Cela laisse supposer que les composés les plus biodégradables ont été mobilisés en premier et qu'ils ont été consommés au cours du temps ; les composés plus réfractaires ne sont mobilisés qu'après un certain temps de contact. Le rapport DCO/COD qui représente la disponibilité du carbone organique n'évolue pas significativement ; la valeur calculée reste constante aux alentours de  $3,2 \pm 0,3$  gO<sub>2</sub>/gC correspondant à un lixiviat dit « jeune » car compris entre 2,8 et 4 (Chian et DeWalle, 1976). Ce rapport ne peut donc être utilisé comme un indicateur pertinent au cours du test d'autant plus que la durée du test (5 jours) ne permet pas de simuler un lixiviat dit « âgé ». Les valeurs de l'indice SUVA indiquent tout au long de la lixiviation un état de faible humification suivi d'une légère transformation des composés organiques. En effet, en moyenne, l'indice SUVA se situe aux environs de 5 à 10 L/cm/gC pour un lixiviat contenant des composés organiques peu humifiés et majoritairement hydrophiles alors qu'il peut atteindre 100 L/cm/gC pour un lixiviat dit âgé constitué majoritairement de composés hydrophobes (Berthe *et al.*, 2008).

#### II.3.1.4 Caractérisation de la Matière Organique extraite

La matière organique extraite lors du test de lixiviation est caractérisée par le biais de fractionnement selon le caractère hydrophobe. Les résultats de fractionnement sont présentés en gC/kgMS par rapport au COD total de la phase liquide (Figure 53).

Les AH\* extraits par ce protocole correspondent plus précisément aux composés ayant précipités à pH 2 et sont assimilables à des macromolécules organiques de type acides humiques, sucres ou protéines. Après 24 heures de lixiviation, une forte proportion de HPI\* est présente dans le lixiviat. La teneur observée en composés de type AH\* ( $1,15 \pm 0,02$  gC/kgMS) ne correspond pas à des molécules humifiées mais à des molécules type carbohydrates, polysaccharides ou autres qui

répondent positivement au protocole de fractionnement. Les lixiviats jeunes sont composés d'une faible proportion d'acides humiques allant de 0,5 à 5 % du COD (Cossu *et al.*, 1993).

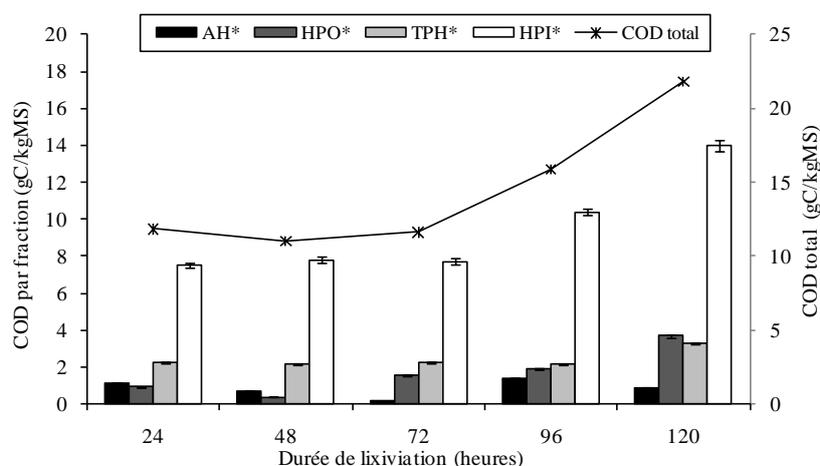


Figure 53 : Fractionnement de la matière organique de la phase liquide au cours de la lixiviation.

Ces résultats peuvent être complétés par le calcul du rapport AH\*/AF\* et par le taux en SH\* (Tableau XLVIII).

Tableau XLVIII : Données du fractionnement de la matière organique au cours de la lixiviation.

Paramètres		24 h	48 h	72 h	96 h	120 h
SUVA	L/cm/gC	8,72 ± 0,26	10,43 ± 0,31	9,84 ± 0,3	7,15 ± 0,21	6,03 ± 0,18
AH*	%	9,7 ± 0,2	6 ± 0,1	1 ± 0,1	9 ± 0,2	4,0 ± 0,1
HPO*		7,8 ± 0,2	3 ± 0,1	13 ± 0,3	12 ± 0,2	16,8 ± 0,3
TPH*		19,1 ± 0,4	20 ± 0,4	19 ± 0,4	14 ± 0,3	15,0 ± 0,3
HPI*		63,4 ± 1,3	71 ± 1,4	66 ± 1,3	66 ± 1,3	64,1 ± 1,3
SH*		17,5 ± 0,4	9,6 ± 0,2	14,5 ± 0,3	20,8 ± 0,4	20,9 ± 0,4
AH*/AF*	-	1,24 ± 0,02	1,83 ± 0,04	0,09 ± 0,01	0,72 ± 0,01	0,24 ± 0,01

ratio AH\*/AF\* correspond à %AH\* / %HPO\*

SH\* correspond à %AH\* + %HPO\*

Les molécules rapidement mobilisables sont donc des molécules peu humifiées, principalement hydrophiles (SH\* faible) et peu aromatiques. Ces résultats sont confirmés par un indice SUVA peu élevé (8,72 ± 0,26 L/cm/gC). Au cours de la lixiviation, les composés de type AH\* fortement présents après 24 heures de lixiviation disparaissent au profit de molécules avec un degré d'humification moins important (HPO\*). L'évolution de l'indice SUVA est en accord avec cette observation (légère diminution).

Ainsi, l'hypothèse d'une conversion des composés AH\* en composés de type HPO\* par des micro-organismes spécifiques peut être avancée. Les résultats précédemment obtenus, notamment la production de biogaz corroborent cette hypothèse. Les quantités d'HPI\* et de TPH\* restent quant à elle constantes au cours du test. Une durée de lixiviation de 5 jours ne permet pas d'appréhender l'ensemble des évolutions liées à la biodégradation mais permet cependant d'évaluer le type de composés mobilisés et donc d'estimer la potentialité du système à se biodégrader, notamment au regard de la quantité de molécules de type HPI\*.

### II.3.1.5 Caractérisation des déchets après lixiviation

A l'issue de la lixiviation, le déchet est caractérisé par la détermination de sa teneur en matière organique et en matière minérale (Tableau XLIX).

Tableau XLIX : Teneur en DCO, NTK, MO et AH\*s après 24 et 120h de lixiviation par rapport au déchet initial.

Paramètres		Initial	24 h	120 h
DCO	gO <sub>2</sub> /kgMS	772 ± 76	727 ± 72	792 ± 38
NTK	gN/kgMS	8,0 ± 1,6	8,7 ± 1,1	11,6 ± 2,7
MO	%	63,8 ± 2,2	60,2 ± 0,6	60,5 ± 1,2
AH*s	gC/kgMS	6,48 ± 0,65	3,78 ± 0,38	3,82 ± 0,35

L'erreur sur la mesure de la DCO et du NTK sur un échantillon solide est relativement importante du fait de la faible masse d'échantillon utilisée. Ainsi, une grande variabilité est observée, respectivement de 10 % et de 20 % pour la DCO et le NTK ce qui traduit un problème d'homogénéité de l'échantillon. Ainsi, les teneurs en DCO et en NTK ne semblent pas varier significativement au cours de la lixiviation.

Cependant, une étude plus approfondie notamment au niveau de la matière organique peut mettre en avant des différences de comportement au fil de la lixiviation (Tableau XLIX). La lixiviation du déchet engendre une légère perte de matière organique (moins de 5 % après 120 heures). Cette perte de matière peut être liée à une solubilisation du déchet (perte de masse par transfert solide/liquide lors du lessivage) ou un début de biodégradation (perte de masse par lixiviation). La quantité d'acides humiques initialement présente dans le déchet diminue au cours du test (6,48 ± 0,65 à 3,82 ± 0,35 gC/kgMS) traduisant un transfert vers la phase liquide de ces composés. Cette observation peut être liée à l'évolution du rapport RH (AH\*s/AF\*s). Ce ratio reste quasi stable ce qui n'indique qu'une légère modification des substances humiques au cours des 120 heures de lixiviation. Ces résultats sont en accord avec ceux obtenus sur l'étude de la matière organique (fractionnement selon le caractère hydrophobe et indice SUVA).

### II.3.1.6 Bilan matière sur la DCO et le NTK

Le bilan matière entre les fractions hydrosoluble et non hydrosoluble exprimé en DCO et en NTK est représenté sur la Figure 54 entre 24 et 120 heures de lixiviation.

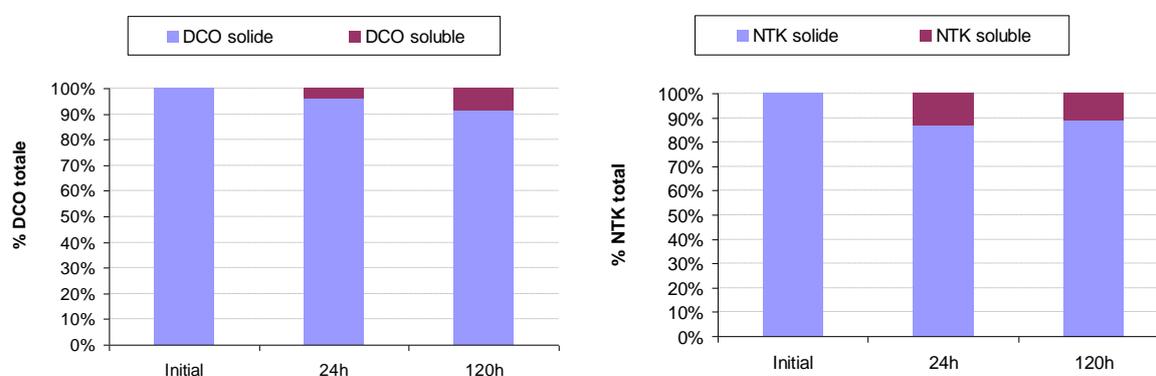


Figure 54 : Répartition de la DCO et du NTK entre les fractions hydrosolubles et non hydrosolubles après 24 et 120 heures de lixiviation.

La répartition de la matière organique (exprimée en DCO) met en avant une part de DCO mobilisable dans la phase liquide faible qui représente entre 4 % et 9 % de la DCO totale de l'échantillon de départ. Au niveau du bilan azoté, la part mobilisable dans la phase liquide représente entre 11 % et 13 % du NTK total de l'échantillon de départ. Les valeurs à l'issue de 24 heures de lixiviation d'un déchet reconstitué sont en accord avec celles obtenues pour un déchet ménager frais (

Tableau XLV) qui sont respectivement de 3 et 12 % pour le carbone et l'azote. En outre, les ordres de grandeur de répartition de la matière organique et l'azote sont similaires. Cependant, il est très difficile de conclure, en raison de l'erreur de mesure (reproductibilité) importante sur la valeur du NTK : de l'ordre de 20 % sur les mesures effectuées.

### II.3.2. Tests BMP des fractions liquides et solides après lixiviation

Des tests BMP à la suite des tests de lixiviation, sur les phases liquides et solides, sont réalisés dans le but d'évaluer la biodégradabilité des fractions mobilisées et de la part réfractaire à la lixiviation. La mise en place du test BMP nécessite de connaître avec précision la composition du substrat et de l'inoculum employé. Les principales analyses effectuées sur les échantillons et l'inoculum sont présentées dans le Tableau L.

Tableau L: Principales caractéristiques analytiques des substrats utilisés.

Paramètres		Solide Initial (SP)	Solide après 24h (S24)	Solide après 120h (S120)	Liquide après 24h (L24)	Liquide après 120h (L120)	Boue	Surnageant boue	Solide boue
DCO	gO <sub>2</sub> /kgMS	772	727	792					770
	gO <sub>2</sub> /L				3,3	7,7	28,6	0,9	
NTK	gN/kgMS	8,0	8,7	11,6					27,0
	gN/L				0,13	0,15	1,06	1,26	
MES	g/l						2,45		

Les cinétiques moyennes de production de méthane permettent de juger de l'influence du temps de lixiviation sur les fractions solide et liquide (Figure 55).

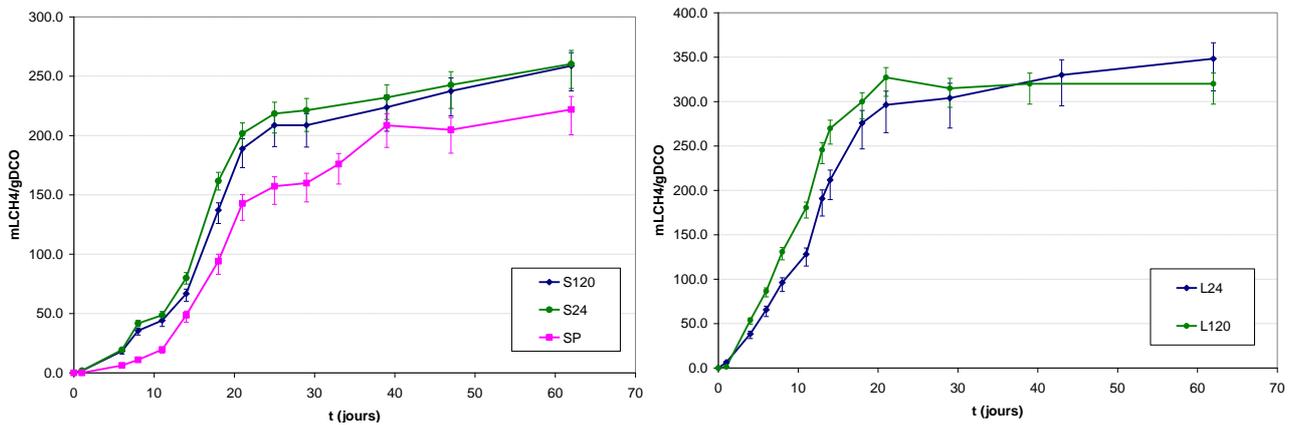


Figure 55 : Comparaison des cinétiques de production de méthane pour les fractions solides et liquides.

La contribution de l'activité endogène de l'inoculum a été déduite du tracé des courbes. De même, après déduction des productions de méthane liées à l'activité endogène de l'inoculum, les potentiels méthanogènes de chacune des fractions peuvent être déduits (Tableau LI). Les intervalles de confiance représentent l'erreur de mesure calculée d'après les précisions sur l'analyse de gaz, la mesure de pression et la mesure du volume mort.

Tableau LI : BMP des différentes fractions après 24 et 120 heures de lixiviation.

Fraction	BMP (mLCH <sub>4</sub> /gDCO)	BMP (mLCH <sub>4</sub> /gMS)	BMP (mLCH <sub>4</sub> /L)
SP	222 ± 15	172 ± 12	
S24	260 ± 16	191 ± 12	
S120	259 ± 16	204 ± 13	
L24	348 ± 26		2299 ± 171
L120	320 ± 17		2464 ± 134

Sur les fractions solides après 24 et 120 heures de lixiviation les potentiels méthanogènes sont similaires. En revanche, le potentiel du solide brut avant lixiviation apparaît plus faible (15 %). Deux explications sont envisagées pour ce résultat :

- une reproductibilité faible en raison d'un manque d'homogénéité du solide utilisé
- une perte de matière solide non biodégradable au cours de la lixiviation (solubilisation de sels, métaux, ou encore de molécules organiques réfractaires)

La très forte biodégradabilité de la fraction liquide à 24 heures écarte l'hypothèse d'une dissolution de molécules organiques non biodégradables. Un bilan sur les quantités de matière a priori inertes solubilisées serait utile pour confirmer l'hypothèse émise. En effet, une quantité importante de matière minérale a été solubilisée dès les premières 24 heures de lixiviation ; respectivement 37,6 et 67,1 meq/L d'espèces chargées après 24 et 120 heures de lixiviation. Au niveau de la fraction soluble, les cinétiques de production de méthane sont sensiblement identiques pour les deux temps de lixiviation. Un rendement en biogaz légèrement supérieur pour la fraction liquide après 120 heures de lixiviation est cependant observé. Une quantité de molécules organiques difficilement biodégradables peut donc avoir été solubilisée tardivement pendant le temps de lixiviation. Cependant, les écarts ne sont pas suffisamment significatifs pour pouvoir conclure de manière ferme.

Les potentiels méthanogènes des fractions hydrosolubles et non hydrosolubles d'un déchet français type ont mis en évidence la très bonne biodégradabilité de la matière organique mobilisée dans la phase liquide ; elle représente entre 5 et 10 % du potentiel total biodégradable du déchet. Il semble par ailleurs que le potentiel méthanogène de la phase solide après lixiviation soit légèrement supérieur au potentiel du solide sec initial laissant supposer une perte d'éléments réfractaires au cours du test. Cette perte peut être due soit à une solubilisation des espèces minérales (la DCO du surnageant étant fortement biodégradable) soit à une élimination de ces espèces lors de la filtration.

### II.3.3. Caractérisation de la phase réfractaire après BMP

A la fin du test BMP, la fraction liquide résiduaire est caractérisée de la même façon que la phase liquide issue du test de lixiviation. Cependant, la plupart des paramètres ne sont pas utilisables sur cette matrice car la présence d'inoculum, de tampon (phosphate) et de réazurine masque l'apport fait par l'échantillon (Tableau LII). Dans le cas de la réazurine, la mesure de l'absorbance UV et donc le calcul de l'indice SUVA ne sont pas possibles à cause de la coloration rose de la solution (la réazurine se colore au contact de l'oxygène).

Tableau LII : Analyses de la fraction liquide résiduaire après BMP

Paramètres		Témoin	Solide			Liquide	
			initial	24 h	120 h	24 h	120 h
pH	-	7,4 ± 0,1	7,4 ± 0,1	7,4 ± 0,1	7,3 ± 0,1	7,6 ± 0,1	7,5 ± 0,1
X	mS/cm	3,9 ± 0,1	4,2 ± 0,1	4,4 ± 0,3	4,5 ± 0,3	5,2 ± 0,3	4,6 ± 0,1
TAC	gCaCO <sub>3</sub> /L	1,3 ± 0,3	1,3 ± 0,1	1,3 ± 0,2	1,4 ± 0,2	1,5 ± 0,1	1,5 ± 0,1
Na <sup>+</sup>	mg/L	483 ± 39	423 ± 226	216 ± 35	324 ± 68	273 ± 77	234 ± 30
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>		89 ± 6	80 ± 20	60 ± 4	65 ± 7	63 ± 8	58 ± 8
K <sup>+</sup>		255 ± 21	270 ± 115	177 ± 45	190 ± 7	212 ± 15	168 ± 30
Mg <sup>2+</sup>		3 ± 1	2 ± 1	3 ± 1	2 ± 1	2 ± 1	2 ± 1
Ca <sup>2+</sup>		6 ± 1	4 ± 1	5 ± 1	6 ± 1	6 ± 1	7 ± 1
Cl <sup>-</sup>		23 ± 1	23 ± 3	26 ± 9	18 ± 4	51 ± 23	31 ± 18
PO <sub>4</sub> <sup>3-</sup>		2169 ± 194	1154 ± 207	584 ± 34	861 ± 299	746 ± 227	655 ± 26
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>		-	-	-	-	-	-

Le pH de chaque essai a été ajusté au début du test par ajout de tampon à 7 - 8, la valeur obtenue à la fin du test est donc identique à celle fixée au départ. L'inoculum et le tampon apportent une grande quantité d'espèces minérales rendant difficile voire impossible l'identification de la part liée au substrat du BMP. A titre d'exemple, l'inoculum contribue à plus de 84 % de la valeur du TAC pour le BMP des jus de lixiviation.

Pour certains paramètres tels que le COD, la DCO et le NTK, il est possible de retrancher la valeur liée au témoin (COD = 58 ± 1 mgC/L ; DCO = 244 ± 8 mgO<sub>2</sub>/L ; NTK = 168 ± 20 mgN/L) pour

connaître la part propre à l'échantillon (Tableau LIII) ; seul le témoin 2 est pris en compte car il contient la même quantité d'inoculum (Tableau L).

Tableau LIII : Analyses de COD, DCO et NTK après retranchement de la part liée au témoin.

Paramètres		initial	Solide		Liquide	
			24 h	120 h	24 h	120 h
COD	mgC/L	49 ± 11	18 ± 21	38 ± 1	91 ± 6	44 ± 4
DCO	mgO <sub>2</sub> /L	143 ± 17	35 ± 1	83 ± 32	213 ± 15	92 ± 16
NTK	mgN/L	56 ± 20	70 ± 12	91 ± 10	42 ± 10	0 ± 5

Un fractionnement de la matière organique est également réalisable. Le retranchement de la part liée à l'inoculum est indispensable car la part de matière organique qu'il apporte représente 40 à 70% du substrat selon sa nature (liquide ou solide). Les résultats de fractionnement obtenus sont exprimés en mgC/kgMS ou mgC/L selon qu'il s'agisse de la phase liquide ou solide puis transformés en pourcentage afin d'être comparés (Figure 56).

Sont représentées sur ces graphes les résultats pour :

- SP : fractionnement après BMP du déchet initial
- TL 24 / TL 120 : fractionnement de la phase liquide après test de lixiviation de 24 / 120 h
- S 24 / S 120 : fractionnement après BMP du solide ayant subi 24 / 120 h de lixiviation
- L 24 / L 120 : fractionnement après BMP de la phase liquide ayant subi 24 / 120 h de lixiviation

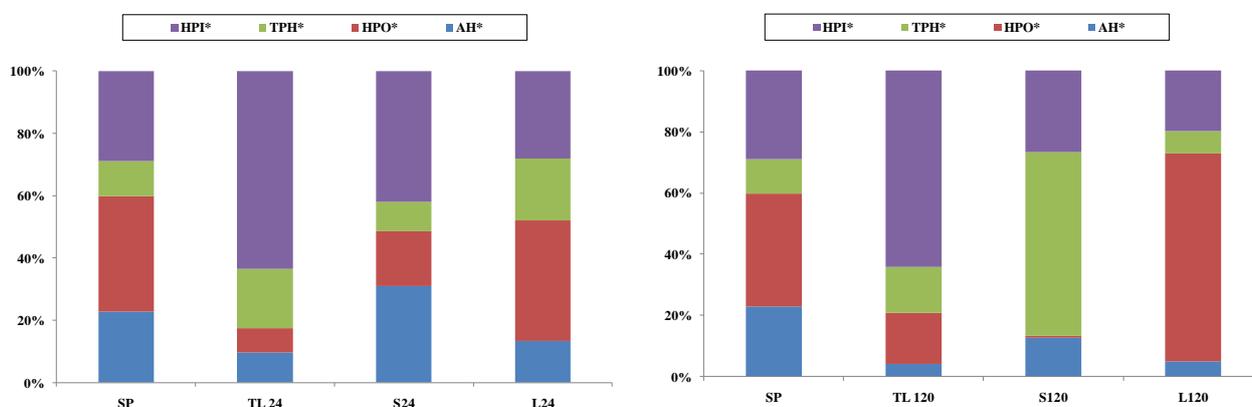


Figure 56: Fractionnement de la MO après 24 et 120 heures de lixiviation et après tests BMP.

Le test BMP réalisé sur le déchet initial permet d'extraire des composés répondant à des structures de type humique car la teneur en AH\* et HPO\* est prépondérante ; respectivement 23 et 37 %. Comme lors du test de lixiviation, ces teneurs laissent penser à une fausse réponse par des molécules simples au protocole d'extraction. Après 24 heures de lixiviation (TL24), une forte proportion de HPI\*(63 %) est présente dans la solution correspondant à des composés à priori facilement biodégradables. Après BMP (L24), la répartition des molécules organiques change pour tendre vers un état où les substances de type humiques représentent 52 % de la matière organique contre 18 % avant BMP alors que les composés hydrophiles passent de 63 à 26 %. Ces substances de type humiques sont principalement sous la forme de HPO\*. La proportion d'HPO\* augmente dans la solution après 120 heures de lixiviation (TL120) par rapport aux valeurs observées après 24 heures de lixiviation (TL24). La proportion de HPI\* reste toutefois majoritaire (64 %). Après test

BMP près de 40 % de cette forte proportion de HPI\* se transforme en HPO\* traduisant un phénomène d'humification dans la solution (L120 comparé à L24). De plus, le test BMP portant sur le déchet après 24 ou 120 heures de lixiviation (S24 et S120) permet de mettre en avant une quantité moins importante de substances de type humique (AH\* + HPO\*) à la fin du BMP par rapport aux résultats obtenus sur le BMP du déchet initial ; respectivement de 49 et 14 %. Cette observation est en accord avec les résultats obtenus sur l'extraction des acides humiques dans le déchet. En effet, la quantité d'acides humiques du déchet diminue avec la lixiviation indiquant un transfert vers la phase liquide.

#### II.3.4. Conclusion

Un test de lixiviation a généralement pour principal objectif d'évaluer le potentiel de relargage d'un déchet en termes d'émission de polluants qu'ils soient de nature organique ou minérale. Un test BMP quand à lui indique le potentiel méthanogène de ce déchet, c'est-à-dire sa capacité à produire du biogaz dans des conditions maîtrisées. Un couplage entre test de lixiviation et test BMP tel qu'il a été mis au point et réalisé sur le déchet frais en amont d'une installation de traitement (stockage, méthaniseur) a permis d'en optimiser le fonctionnement. En effet, ce protocole donne accès à la part disponible et rapidement mobilisable de la matière organique ; matière organique susceptible de subir de multiples transformations donnant lieu à la production de biogaz. La lixiviation permet ainsi d'extraire une quantité importante de matière organique, plus ou moins humifiée selon le temps de contact, et dont le test BMP sur la phase liquide conduit à un potentiel méthanogène important et à une biodégradabilité quasi-totale. En outre, un processus d'humification de la matière organique extraite au cours de la lixiviation et du test BMP a été mis en avant. La lixiviation du déchet agit telle une macération qui permet de libérer de la matière minérale non biodégradable et génère un solide dont le potentiel méthanogène est supérieur au potentiel du déchet initial.

*Malgré le fait que ce type de protocole soit relativement difficile à mettre en œuvre, son application à des déchets ayant subi différents prétraitements est envisageable afin de déterminer par exemple, l'effet d'un prétraitement du déchet sur le potentiel de dégradation et le potentiel méthanogène. Toutefois, la réalisation de bilans matière précis s'est avérée relativement complexe voire impossible dans le cadre des tests BMP du fait de la méthodologie employée. En effet, l'inoculum a été introduit en quantités trop importantes, de sorte que la quantité de matière organique apportée par l'inoculum est du même ordre de grandeur que la matière organique apportée par les échantillons (entre 40 et 60 % de la DCO finale en phase liquide). Pour éviter ce biais méthodologique, il faudrait envisager des essais à très faible ensemencement. De tels essais sont très coûteux en temps, avec des temps de dégradation de l'ordre de 6 mois à 1 an, ce qui ne correspond pas à l'objectif fixé d'un test pratique et rapide caractérisant avec précision le potentiel global du déchet considéré.*

#### II.4. Mise en place des pilotes

Les conditions expérimentales des pilotes sont strictement identiques et ils contiennent exactement la même matrice dans des quantités proches ( $12,7 \pm 1,8$  kgMS) ; les seules différences sont liées à la modalité de prétraitement et à l'hétérogénéité de la matrice.

Les déchets ont été introduits dans les différents pilotes avec une densité solide de placement moyenne de  $0,39 \pm 0,08$  tMH<sub>tot</sub>/m<sup>3</sup> soit  $0,19 \pm 0,04$  tMStot/m<sup>3</sup>. Les quelques différences de densité entre l'ensemble des pilotes ne sont pas liées à la modalité de traitement mais plutôt à l'hétérogénéité de la matrice ou au manipulateur. Dans tous les cas, cette densité solide de placement reste inférieure aux valeurs observées après compactage sur sites réels : 0,6 à 0,9 tMH/m<sup>3</sup> (Olivier, 2003). Cet écart peut être imputé à la configuration des pilotes utilisés qui diffère

de celle d'un casier sur site. En effet, un casier industriel a un volume moyen de l'ordre de  $10^6 \text{ m}^3$  contre  $7,5 \cdot 10^{-3} \text{ m}^3$  pour les pilotes utilisés dans le cadre de cette étude. Le poids des déchets par rapport à la hauteur de la colonne est donc relativement faible en comparaison d'un casier industriel car l'étape grossière de compactage appliquée n'est pas comparable à ce qui est réalisé sur un site réel. En outre, le broyage à 20 mm des déchets a vraisemblablement permis un meilleur réarrangement des composants du déchet (Komilis *et al.*, 1999a) et une amélioration de la densité de placement du déchet. Toutefois, une telle réduction granulométrique n'a pas été suffisante pour contrecarrer l'effet de la géométrie des pilotes.

Les déchets ayant été reconstitués en masse sèche, leur teneur en eau a été ajustée après incorporation dans le pilote en moyenne à  $50,2 \pm 4,5 \%$  pour toutes les modalités par ajout de  $1,02 \pm 0,19 \text{ L/kgMStot}$  d'eau. Cette humidité a été choisie de manière à se situer dans des conditions optimales pour le développement de l'activité biologique. L'ajustement doit se faire de façon équilibrée car une humidité des déchets trop faible génère un retard dans la biodégradation des déchets (Chugh *et al.*, 1998) et une humidité trop importante est inhibitrice pour les réactions de dégradation (Gurljala et Suflita, 1993). Au vue des précédentes études mentionnées dans la littérature, la valeur proposée paraît suffisante afin d'obtenir un taux de biodégradation et une vitesse de production de biogaz importants (Gachet, 2005). Une simulation de pluie a été mise en place sous forme d'un ajout d'eau ponctuel de 0,2 L par semaine. La quantité ajoutée a été définie de manière à permettre la génération de lixiviat sans dessécher le déchet c'est-à-dire en maintenant une humidité optimale.

Sur l'ensemble des pilotes suivis, 3 types de fonctionnement ont été appliqués de manière à tester les conditions d'enfouissement sur le démarrage de la biodégradation et plus particulièrement la mise en place de la méthanogenèse. Les différents modes de fonctionnement et les pilotes associés sont :

- le fonctionnement dit libre pour : C ; A\_L1 ; A\_L3 ; A\_M3 ; A\_H ; B\_2 et B\_1
- l'ajout de flore méthanogène pour : I\_P et I\_S
- le départ dit forcé pour : C\* ; A\*\_L2 ; A\*\_M1 et B\*\_1

Les 4 pilotes utilisés dans le cadre de l'étude statistique (B\*\_2x, B\*\_2y, B\*\_2z et B\*\_2t) fonctionnent également en mode dit forcé.

L'ajout de flore méthanogène constitue une inoculation du système avec une flore adaptée à la production de méthane. Le fonctionnement libre englobe l'ensemble des modalités de prétraitement sans aucune condition particulière appliquée au moment du stockage, contrairement au départ forcé qui consiste en une étape de saturation / désaturation avec du lixiviat au moment de l'enfouissement. En effet, il a été montré que cette étape favorise la mise en place d'une activité biologique au sein d'un massif de déchet particulièrement s'il s'agit d'un déchet reconstitué (François, 2004). Outre l'apport de microorganismes, cette étape contribue à créer des conditions optimales d'humidité au sein du massif de déchet et favorise au préalable le lessivage des composés potentiellement inhibiteurs à forte concentration.

La composition du lixiviat utilisé lors de la saturation / désaturation joue un rôle prépondérant dans l'efficacité de la procédure. Les phénomènes mis en jeu lors du contact entre le déchet non dégradé et le lixiviat sont fortement contrôlés par la quantité de polluants relargable par le déchet et ceux contenues dans le lixiviat utilisé. Une étude antérieure a en effet montré qu'il est possible de prédire le comportement du déchet dans le lixiviat d'inoculation à partir du potentiel de relargage du déchet et de la composition du lixiviat (François, 2004). Ainsi, si le déchet présente une capacité de relargage plus grande que la concentration du lixiviat alors le relargage du déchet sera important et peu perturbé par le lixiviat. Dans le cas contraire (potentiel déchet < concentration lixiviat), le relargage du déchet est augmenté dans le lixiviat par rapport à son potentiel estimé dans une solution non saturée (eau distillée). En cas d'égalité, c'est-à-dire lors de la mise en contact d'un déchet avec un lixiviat de charge organique identique, le relargage des polluants du déchet est limité.

Le lixiviat considéré dans le cadre de cette étude est issu du centre de stockage des déchets ménagers et assimilés de Guitrancourt en phase de méthanogenèse dont l'analyse de quelques paramètres est présentée dans le Tableau LIV. Les données correspondent aux valeurs basses et hautes de concentrations mesurées tout au long de l'étude sur le lixiviat. En effet, la durée du projet et le décalage dans le lancement des pilotes a nécessité plusieurs prélèvements de lixiviats qui ont donc été caractérisés de manière précise à chaque fois. Ces différents prélèvements justifient les variations de valeurs des paramètres mesurés.

Tableau LIV : Gamme de concentration du lixiviat de saturation.

pH	$\chi$	COD	DCO	SUVA	AGV	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Cl <sup>-</sup>
-	mS/cm	mgC/L	gO <sub>2</sub> /L	L/gC/cm	g/L	mg/L	mg/L
7,6-8,3	5,7-9,4	265-510	1,47-5,48	20,3-38,2	0,05-0,14	694-1448	420-644

Les variations observées au cours des 3 années sur les caractéristiques du lixiviat font état d'une évolution vers un état de plus en plus stabilisé du déchet enfoui (Millot, 1986). La matière organique extraite présente ainsi les caractéristiques d'un état avancé de dégradation (Berthe *et al.*, 2008 ; Feuillade *et al.*, 2009) ; un taux d'acides de type humiques (AH\*) de  $32,7 \pm 1,2$  % et un indice SUVA supérieur à 30 L/gC/cm. Un pourcentage de AH\* important (supérieur à 30 %) et un ratio AH\*/AF\* de 1,3 indique une phase d'humification avec formation de macromolécules de stabilité très élevée.

La lixiviation du déchet témoin dans une solution non saturée avec un temps de contact de 24 heures a mis en évidence la capacité du déchet à mobiliser des polluants de la phase solide vers la phase liquide (Partie III - II.3.1). Pour une même espèce, il apparaît que le potentiel de relargage du déchet est supérieur à la concentration de cette espèce dans le lixiviat utilisé. L'étape de saturation / désaturation appliquée ne devrait donc pas avoir d'effet majeur sur la capacité du déchet à être lessivé au cours de son enfouissement. En effet, une solution d'élution peu chargée n'empêche pas le lessivage des espèces (François, 2004).

Le protocole de saturation mis en place consiste à remplir totalement la colonne de déchets avec le lixiviat jusqu'à ce qu'à ce que le volume ajouté dépasse celui du déchet. Après un contact de 2 heures, la désaturation est réalisée par une simple ouverture des vannes de récupération du lixiviat. Environ 24 heures sont nécessaires pour récupérer la plus grande partie du jus de saturation. Le bilan hydrique de cette étape de saturation / désaturation après 24 heures est présenté sur le Tableau LV. Toutefois, la totalité du lixiviat apporté lors de la saturation n'est évacuée qu'au bout de 100 jours d'exploitation ; la simulation de pluie et la production d'un nouveau lixiviat débutent à ce moment là.

Tableau LV : Bilan hydrique de la saturation / désaturation après 24 heures.

Paramètres		C*	B*_1	A*_L2	A*_M1
Humidité initiale	%	54,2	53,3	56,8	55,9
Volume Entrant	L	24,6	24,6	21,8	23,8
Volume Sortant		20,9	19,9	20,2	21,1
Absorption volumique totale	%	15,1	19,2	7,2	11,2
Humidité finale	%	59,1	59,4	58,7	59,3

Les volumes de lixiviat ajoutés sont relativement proches et dépendent essentiellement des caractéristiques du déchet enfoui, notamment de sa capacité au champ. En effet, selon la nature des éléments qui le composent, le déchet est de retenir une quantité d'eau plus ou moins importante

d'où une variation d'humidité. Ainsi la rétention de liquide plus faible pour les déchets A\*\_L2 et A\*\_M1 peut être attribuée au prétraitement aérobie des déchets avant enfouissement. En effet, le déchet ainsi pré-dégradé contient moins de composés biodégradables (catégorie ayant la plus forte capacité de rétention) et plus de plastiques et d'inertes qui sont eux totalement hydrophobes. De même, l'ajout de mâchefers en quantité non négligeable (ici environ 12 %MS) ne devrait pas être favorable à la rétention d'eau du fait de leur caractère très hydrophobe. Néanmoins, le déchet B\*\_1 semble retenir une quantité plus importante de lixiviat que le déchet témoin (C\*). Cette différence est due à une humidité initiale plus faible pour B\*\_1 qui peut donc retenir plus de liquide que le témoin. Une conclusion similaire peut être appliquée au niveau des déchets prétraités car leur humidité initiale est très élevée, ils retiennent peu de liquide. Il apparaît ainsi que plus l'humidité initiale est grande et plus l'absorption volumique totale du massif de déchet sera petite ; un rapport de proportionnalité unit ces deux paramètres ( $r^2=0,98$ ). Après l'étape de saturation / désaturation, l'ensemble des déchets présente un taux humidité semblable et de l'ordre de  $59,1 \pm 0,3$  % pouvant correspondre à la teneur en eau maximale que le déchet est susceptible de retenir.

Un bilan hydrique complet de l'ensemble des casiers est présenté par la suite (Partie III - II.10.3).

L'étape de saturation / désaturation donne également lieu à un lessivage des espèces. Le Tableau LVI indique la quantité d'espèces relarguées dans le lixiviat récupéré après 24 heures. La proportion d'espèces apportées par le lixiviat d'inoculation a été retranchée à la concentration sortante en prenant en compte les volumes injectés et récupérés (Tableau LV).

Tableau LVI : Pertes par lessivage lors de la saturation / désaturation.

Paramètres		C*	B*_1	A*_L2	A*_M1
DCO	gO <sub>2</sub>	155,0	196,0	361,6	93,4
Potentiel CH <sub>4</sub>	NLCH <sub>4</sub>	54	69	127	33
Azote total (Ntot)	gN	- 10,5	- 12,9	- 9,8	- 4,7
AGV	gCH <sub>3</sub> COOH	40,2	54,8	75,5	7,8

La quantité d'espèces relarguées lors de l'étape de saturation / désaturation permet déjà de statuer sur l'effet d'une modalité de prétraitement du déchet par rapport au témoin (C). Au niveau de la matière organique extraite (représentée par la DCO), aucun effet de l'ajout de mâchefers n'est observé contrairement au prétraitement aérobie du déchet avant stockage. L'écart de DCO de 41gO<sub>2</sub> entre C\* et B\*\_1 est assimilable à la quantité de DCO susceptible d'être relarguée par le mâchefer en conditions de lixiviation. En effet, la lixiviation de ce mâchefer a indiqué une capacité de relargage de 1,63 gO<sub>2</sub>/kgMS correspondant à environ 55 gO<sub>2</sub> pour le mélange B\*\_1 dans les conditions de saturation / désaturation (volume sortant de 19,9 L). L'effet du prétraitement aérobie sur le lessivage des espèces organiques est clairement perceptible et permet de mettre en avant le niveau du prétraitement. Un faible niveau de prétraitement génère plus de 2 fois plus de matière organique qu'un déchet non prétraité contrairement à un niveau moyen de prétraitement qui en relargue presque 2 fois moins. Le niveau du prétraitement peut en effet être mis en relation avec la disponibilité de la matière organique : un faible niveau de prétraitement ne dégrade que faiblement la matière organique ce qui la rend plus disponible alors qu'avec un niveau plus élevé la matière organique du déchet est dégradée et évacuée sous forme de lixiviat et de biogaz au cours du prétraitement. Cette perte en matière organique sous forme de DCO correspond également à une perte de potentiel de biogaz sous forme de CH<sub>4</sub> en considérant que 1 kg de DCO dégradé produit toujours la même quantité de méthane soit 0,35 Nm<sup>3</sup>. Ainsi, les différents déchets ont perdu entre 33 et 127 NLCH<sub>4</sub> selon la modalité considérée.

Une interprétation similaire est possible pour les teneurs en AGV relarguées. Les déchets C\* et B\*\_1 libèrent tous deux une quantité importante et équivalente d'AGV. Un niveau moyen de

prétraitement aérobie génère une faible quantité d'AGV par rapport au témoin car la dégradation du déchet au cours du prétraitement s'est effectuée de façon plus complète que pour un prétraitement de niveau faible. En effet, un faible niveau de prétraitement libère beaucoup plus d'AGV que le témoin car la durée du prétraitement n'a pas été suffisamment longue pour dégrader tous les AGV produits au cours du prétraitement. La matière organique du déchet est néanmoins dans des conditions plus propices à une dégradation anaérobie, les premières phases de dégradation sont déjà bien entamées.

Le bilan sur les espèces azotées fait état d'une rétention de ces composés au sein du massif de déchet : le lixiviat sortant est moins chargé que le lixiviat entrant. Une partie de l'azote injectée reste donc emprisonnée dans le pilote. Cette accumulation de l'azote au sein du massif de déchets est un phénomène se produisant souvent dans les centres de stockage fonctionnant en mode bioréacteur (Vigneron *et al.*, 2007). Les 3 modalités de traitement ne se comportent toutefois pas de la même manière ; le mélange de mâchefers retient plus d'azote que le déchet témoin contrairement au déchet prétraité qui permet à l'azote de s'évacuer plus facilement. Le niveau du prétraitement influe également sur la quantité d'azote relarguée : plus le niveau est haut et plus la quantité relarguée est grande.

## II.5. Suivi de la biodégradation du déchet

Pour l'ensemble des pilotes étudiées, un suivi rigoureux de la production de biogaz (quantité produite et composition) et de la composition des lixiviats générés a été effectué de façon mensuelle. La caractérisation des lixiviats comprend des paramètres globaux (pH,  $\chi$ , TA/TAC, AGV, DCO, COD, Ntot, ions, Abs UV, métaux) et un fractionnement selon le caractère hydrophobe de la matière organique. La composition du biogaz comprend les proportions de CH<sub>4</sub>, CO<sub>2</sub>, O<sub>2</sub> et N<sub>2</sub>. L'évolution de tous ces paramètres est présentée en Annexe 7. Ces données seront présentées et discutées par la suite.

### II.5.1. Evolution du déchet au cours des 6 premiers mois

Le suivi rigoureux de la composition des lixiviats et de la production de biogaz dès l'incorporation des déchets dans les pilotes ont mis en évidence des différences de comportement au niveau de la cinétique de biodégradation. Ainsi, la dégradation des déchets des 7 pilotes en mode dit libre mais aussi des modalités inoculées (I\_S et I\_P) et des déchets C\* et B\*\_1 ne semble pas avoir réellement démarrée après plus de 6 mois de stockage. La production cumulée de biogaz (CH<sub>4</sub> + CO<sub>2</sub>) ne dépasse pas 18 NL/kgMStot avec moins de 0,7 NL/kgMStot de méthane (Figure 57).

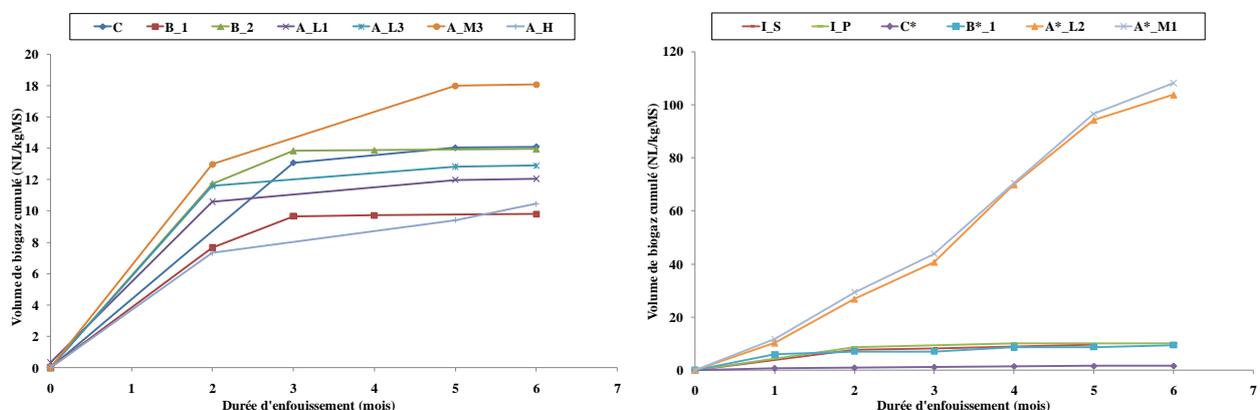


Figure 57 : Production cumulée de biogaz des différents pilotes au cours des 6 premiers mois.

La composition de ce biogaz présente un ratio  $\text{CH}_4/\text{CO}_2$  compris entre 0,1 et 0,5 ce qui est caractéristique des premières phases de dégradation du déchet (Christensen *et al.*, 1989). A l'inverse, les pilotes A\*\_L2 et A\*\_M1 correspondant à une préparation aérobie avec saturation / désaturation au départ ont quant à eux un comportement totalement différent. Leur production de biogaz commence réellement dès le 3<sup>ème</sup> mois avec une cinétique significativement plus forte que celles des autres pilotes. Le ratio  $\text{CH}_4/\text{CO}_2$  est également plus élevé (de l'ordre de 1,2) et se rapproche de celui indiquant une méthanogenèse stable (ratio de 1,5).

A cette étape du suivi de la production de biogaz, aucune conclusion fiable concernant l'impact du mode de fonctionnement ne peut être apportée. En effet, la mise en place d'une étape de saturation / désaturation donne lieu à des comportements pouvant être différents selon la modalité de prétraitement considérée. L'inoculation avec une flore méthanogène ne semble pas permettre une accélération de la cinétique de production de biogaz.

La composition du biogaz et notamment la proportion de méthane permet néanmoins d'apporter de premiers éléments de comparaison. La proportion de  $\text{CH}_4$  dans le biogaz au 6<sup>ème</sup> mois de stockage met en effet en avant une influence du mode de fonctionnement et de la modalité de prétraitement (Figure 58).

La mise en place d'une procédure de saturation désaturation semble être favorable à la production de  $\text{CH}_4$  puisque les 4 modalités concernées présentent un biogaz contenant 4 à 26 fois plus de  $\text{CH}_4$  que la modalité homologue en mode libre. De même, l'ajout d'un inoculum au déchet avant enfouissement génère lors du stockage un biogaz beaucoup plus riche en méthane. Au premier abord, il semblerait que l'ajout de boues de STEP (I\_S) soit plus efficace que l'ajout de boues de vaches (I\_P), la tendance reste néanmoins à confirmer sur le long terme.

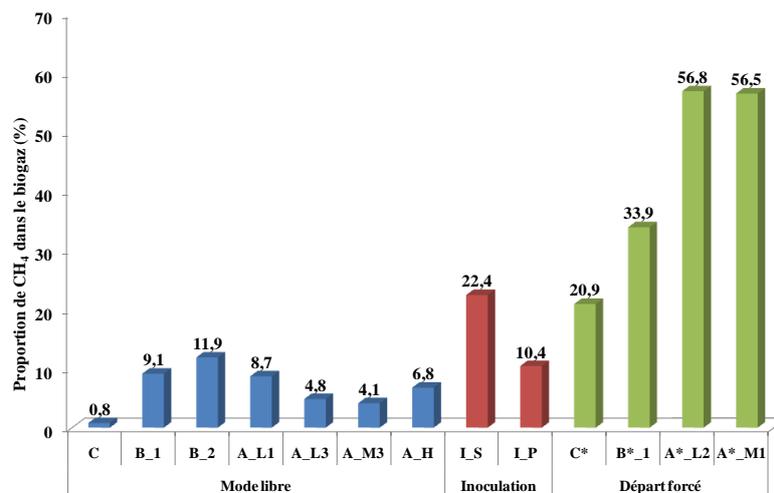


Figure 58 : Proportion de  $\text{CH}_4$  dans le biogaz après 6 mois d'enfouissement.

L'effet de la modalité de prétraitement est également perceptible au travers de la proportion de méthane dans le biogaz. Ainsi, que ce soit en mode libre ou en mode forcé (saturation / désaturation) le co-enfouissement avec des mâchefers génère un biogaz plus riche en  $\text{CH}_4$  que le stockage conventionnel. L'impact de cet ajout est toutefois beaucoup plus important en mode libre qu'en mode forcé, avec une proportion de  $\text{CH}_4$  respectivement 15 et 1,6 fois plus importante que pour une gestion conventionnelle. La mise en place d'un prétraitement aérobie avant stockage génère également un biogaz plus riche en  $\text{CH}_4$ . Comme pour l'ajout de mâchefers, l'impact de la modalité sur la production de  $\text{CH}_4$  est plus important en mode libre. Le niveau du prétraitement semble toutefois avoir moins d'impact sur la proportion de  $\text{CH}_4$  émise : plus le niveau est haut et moins la proportion de  $\text{CH}_4$  émise est importante. Cette observation est en accord avec le principe d'un prétraitement aérobie qui est de réduire les émissions des centres de stockage (Gioannis *et al.*, 2009). La forte proportion de  $\text{CH}_4$  observée lors des premiers mois d'enfouissement est simplement

due à une plus forte cinétique de production de biogaz qui devrait s'estomper à long terme. En effet, avec un prétraitement aérobie, la quantité et de durée de production de biogaz sont modifiée (Bockreis et Steinberg ,2005) ; la production est plus rapide mais moins importante (Lornage *et al.*, 2007).

Les caractéristiques des lixiviats émis, plus particulièrement le suivi du pH (Figure 59), corrobore les conclusions émises lors du suivi du biogaz à savoir une biodégradation du déchet encore inexistante après plus de 6 mois de stockage pour la majorité des pilotes : 7 pilotes en mode libre, 2 pilotes inoculées et les déchets C\* et B\*\_1.

De faibles variations du pH au cours du temps sont perceptibles mais ne permettent pas de différencier les modalités les unes des autres car les écarts sont trop faibles et proches de l'incertitude sur la mesure (0,1 unité). L'ajout de mâchefers confère néanmoins au milieu une légère alcalinité par rapport au témoin qui devrait influencer sur les mécanismes de dégradation (Lo *et al.*, 2009) mais qui à ce stade du suivi n'est pas encore visible. Les valeurs du pH de ces modalités restent ainsi toutes inférieures à 6,5. De telles valeurs (inférieures à 7) sont caractéristiques des premières phases de dégradation (Kjeldsen *et al.*, 2002) ; la biodégradation n'a donc pas réellement commencé. En effet, ces conditions acides ne sont pas favorables à la méthanogenèse et donc à la production de biogaz. En raison d'un blocage en phase acide, la méthanogenèse ne s'est donc pas mise en place pour ces pilotes. Seules les modalités A\*\_L2 et A\*\_M1 se distinguent par un pH plus élevé qui augmente plus significativement jusqu'à 7,7 au 6<sup>ème</sup> mois d'exploitation ; valeur à la limite de l'acidogenèse et de la méthanogenèse (Kjeldsen *et al.*, 2002). Le couplage de la saturation / désaturation et du prétraitement biologique semble donc être favorable à un départ rapide de la biodégradation.

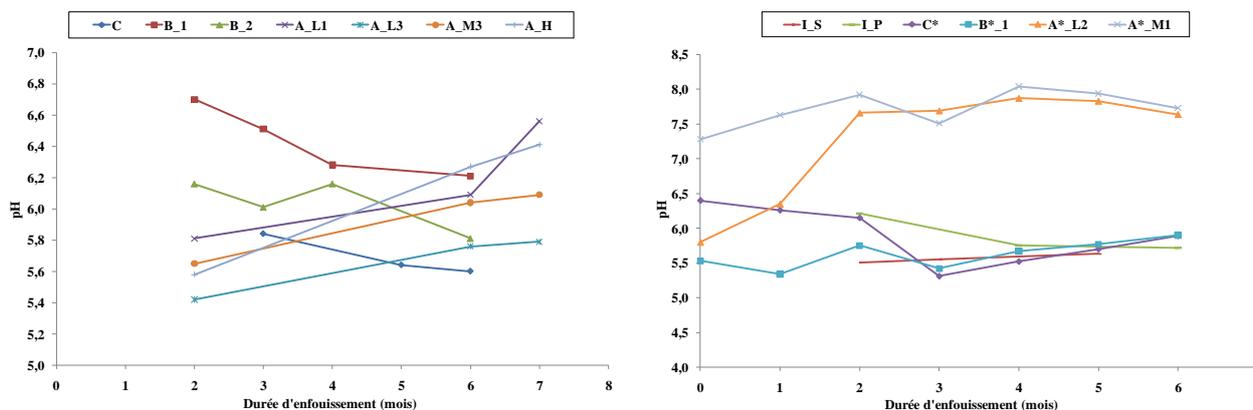


Figure 59 : Evolution du pH dans les différents pilotes au cours des 6 premiers mois.

Les évolutions de la production de biogaz et du pH semblent indiquer la mise en place d'une phase de latence au cours de laquelle certaines espèces comme les AGV ou les ions  $\text{NH}_4^+$  peuvent être présents en quantités telles qu'elles inhibent le système. Les teneurs maximales en espèces inhibitrices au cours des premiers mois d'enfouissement sont présentées dans le Tableau LVII. Elles sont mentionnées sous formes de concentrations (en g/L) et ne permettent donc pas de comparer les différents procédés entre eux car ne tiennent pas compte de la quantité de lixiviat émis mais seulement d'apprécier la qualité des lixiviats émis. Les valeurs mises en gras correspondent à un dépassement de la gamme de valeurs considérées comme inhibitrices dans la littérature et également mentionnée dans le Tableau LVII (Yuen *et al.*, 1995).

Tableau LVII : Teneur maximale en espèces inhibitrices au cours des premiers mois (g/L).

Paramètres		AGV	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Mg <sup>2+</sup>	Na <sup>+</sup>	K <sup>+</sup>
Concentrations inhibitrices		3,0 - 6,0	1,5 - 3,0	2,5 - 4,5	1,0 - 1,5	3,5 - 5,5	2,5 - 4,5
Mode Libre	C	<b>27</b>	<b>2,0</b>	<b>6,1</b>	0,3	1,2	<b>10,0</b>
	B_1	<b>26</b>	<b>1,9</b>	<b>7,8</b>	0,5	1,6	<b>7,0</b>
	B_2	<b>28</b>	<b>2,5</b>	<b>7,9</b>	0,5	2,1	<b>3,4</b>
	A_L1	<b>18</b>	<b>2,0</b>	<b>2,9</b>	0,4	1,1	<b>9,1</b>
	A_L3	<b>22</b>	<b>2,0</b>	<b>3,3</b>	0,2	1,0	<b>16,0</b>
	A_M3	<b>19</b>	1,3	<b>2,8</b>	0,2	1,0	<b>14,5</b>
	A_H	<b>16</b>	1,4	<b>2,7</b>	0,2	0,9	<b>13,0</b>
Inoculation	L_S	<b>22</b>	<b>1,9</b>	<b>2,9</b>	0,3	2,1	<b>5,0</b>
	L_P	<b>27</b>	<b>2,0</b>	<b>5,4</b>	0,4	1,4	<b>4,0</b>
Mode Forcé	C*	<b>17</b>	<b>3,5</b>	<b>11,6</b>	0,7	<b>5,4</b>	<b>6,7</b>
	B*_1	<b>21</b>	<b>4,4</b>	<b>18,2</b>	1,0	<b>6,4</b>	<b>7,0</b>
	A*_L2	<b>7</b>	<b>3,7</b>	<b>2,5</b>	0,6	<b>5,1</b>	<b>5,7</b>
	A*_M1	<b>8</b>	<b>3,8</b>	<b>3,0</b>	0,6	<b>5,4</b>	<b>6,4</b>

Au premier abord, il apparaît que pour toutes les modalités des teneurs critiques en une ou plusieurs espèces inhibitrices ont été mesurées au cours des 6 premiers mois de suivi. L'évolution des concentrations de ces espèces au cours du temps met en avant des différences au niveau du mode de fonctionnement et de la modalité de prétraitement. Ainsi, la saturation / désaturation réalisée au départ (mode forcé) génère un rapide lessivage des espèces qui sont fortement présentes dans le premier lixiviat et à des teneurs inhibitrices. Ces concentrations tendent toutefois à diminuer significativement pendant les 6 mois de suivi et ne sont même plus présentes dans des proportions inhibitrices dès le 3<sup>ème</sup> mois d'enfouissement pour les pilotes A\*\_L2 et A\*\_M1 (Annexe 7). Ces 2 modalités se distinguent en effet des autres par une proportion d'espèces relarguées plus faible que celles des pilotes C\* et B\*\_1 fonctionnant également en mode forcé.

Les pilotes en mode libre ou inoculés au lancement ont des similitudes de comportement et l'effet de l'inoculation n'est pas réellement perceptible. Les teneurs en espèces inhibitrices sont présentes dans des proportions semblables et leur faible évolution de concentration au cours du temps n'indique pas de possible évolution de l'activité biologique notamment du fait qu'elles restent toujours supérieures aux seuils d'inhibition (Annexe 7). Néanmoins, les modalités de prétraitement aérobie se distinguent par des concentrations émises plus faibles et variant selon le niveau du prétraitement ; plus le niveau de prétraitement est haut et plus la teneur en polluant émise est faible. Cette première observation demande à être validée par un suivi des espèces relarguées à plus long terme.

Au niveau des espèces classifiées dans la littérature comme étant inhibitrices, il n'est pas possible de connaître avec précision quelle est l'espèce responsable du blocage en phase acide de la dégradation des déchets. Toutefois, l'importante concentration en AGV mesurée pour l'ensemble des pilotes corrélée au faible pH des lixiviats émis peut être incriminée. En effet, la concentration mesurée est très largement supérieure à la valeur de 6 gCH<sub>3</sub>COOH/L généralement définie comme critique (Aguilar *et al.*, 1995 ; Bolzonella *et al.*, 2003).

## II.5.2. Mise en place d'une étape de saturation / désaturation

Compte tenu de ce blocage en phase acide, les déchets stockés en mode libre et ceux ayant été inoculés ont subi une saturation / désaturation avec du lixiviat au septième mois d'exploitation. Le lixiviat utilisé est le même que lors de la saturation / désaturation des 4 pilotes fonctionnant en mode forcé et dont les caractéristiques sont présentées dans le Tableau LIV. L'objectif attendu de cette étape est de favoriser des conditions optimales pour la mise en place de la méthanogenèse. En effet, il a été montré qu'un tel traitement favorise la mise en place d'une activité biologique au sein d'un massif de déchet particulièrement s'il s'agit d'un déchet reconstitué (François, 2004). En outre, un lessivage des espèces accumulées au sein du massif de déchets et inhibant la biodégradation est envisagé.

La mesure de la concentration en espèces inhibitrices du lixiviat résultant de la saturation a ainsi révélé une libération importante de certaines espèces telles que des AGV et les ions  $K^+$  (Tableau LVIII). Les autres espèces précédemment citées ( $NH_4^+$ ,  $Ca^{2+}$ ,  $Mg^{2+}$  et  $Na^+$ ) n'ont pas été massivement relarguées immédiatement après l'étape de saturation / désaturation ; un temps de latence d'à peu près 2 mois a été nécessaire afin de les évacuer.

Tableau LVIII : Concentration en AGV et en  $K^+$  évacués lors de la saturation / désaturation (g/L) après 6 mois de stockage.

Paramètres	Mode libre							Inoculation	
	C	B_1	B_2	A_L1	A_L3	A_M3	A_H	I_P	I_S
AGV	6,0	7,3	6,4	6,1	4,8	5,3	4,0	7,1	5,1
$K^+$	5,3	3,2	6,1	5,1	4,4	4,8	3,9	3,0	2,6

Pour l'ensemble des modalités, la quantité d'AGV et de  $K^+$  évacués lors de l'étape de saturation / désaturation est cohérente avec l'évolution de leur concentration dans les lixiviats émis au cours de 6 premiers mois d'exploitation (Annexe 7). En effet, les modalités présentant un lixiviat plus chargé en AGV ou en  $K^+$  au cours des 6 mois d'exploitation en libèrent une plus grande quantité lors de la désaturation.

Outre les nombreuses espèces inhibitrices, la saturation / désaturation a permis de lessivé une quantité importante de matière organique représentant une perte non négligeable du potentiel méthanogène pour chaque modalité. Ainsi, selon la modalité considérée 125 à 422 NLCH<sub>4</sub> ont été perdu au cours de la désaturation. Ces pertes sont globalement similaires pour l'ensemble des modalités ( $140 \pm 10$  NLCH<sub>4</sub>) à l'exception de la modalité d'inoculation par boues de STEP (I\_S) et du témoin (C) pour lesquels la perte en CH<sub>4</sub> s'élève respectivement à 422 et 183 NLCH<sub>4</sub>.

Cette étape de saturation / désaturation a également influé sur l'humidité du massif de déchet créant ainsi des conditions plus optimales pour la biodégradation du déchet. En effet, malgré l'apport d'eau par la simulation de pluie certains pilotes avaient une humidité faible pouvant être à l'origine de disfonctionnement. Le bilan hydrique de l'étape de saturation / désaturation après 24 heures est présenté dans le Tableau LIX ; le bilan proposé est identique à celui des pilotes en mode forcé (Tableau LV). L'humidité au sixième mois de suivi est calculée à partir de la proportion d'eau ajoutée et de la quantité de lixiviat émis. Comme lors d'une étape de saturation / désaturation réalisée au départ, le lixiviat injecté n'est totalement évacué qu'après une durée d'environ 100 jours.

Tableau LIX : Bilan hydrique de la saturation / désaturation au septième mois de stockage.

Paramètres		Mode libre							Inoculation	
		C	B_1	B_2	A_L1	A_L3	A_M3	A_H	I_P	I_S
Humidité Initiale	%	48,9	45,8	45,4	46,8	53,7	54,3	46,6	45,6	45,1
Humidité 6 <sup>ème</sup> mois		47,7	44,1	43,9	48,9	54,7	53,7	50,9	48,2	42,3
Volume Entrant	L	24,3	23,4	25,9	25,4	24,9	24,1	24,1	26,0	24,7
Volume Sortant		18,0	18,9	20,3	16,3	12,6	15,1	15,6	20,9	19,7
Absorption volumique totale	%	25,8	19,4	21,6	35,8	49,1	37,5	35,2	19,4	20,0
Humidité Finale		59,0	52,0	52,9	63,2	70,8	69,1	64,9	56,7	51,6

### II.5.3. Comportement du déchet après l'étape de saturation / désaturation

A partir du septième mois d'exploitation, des conditions favorables à la biodégradation du déchet sont perceptibles au travers de l'évolution du pH et de la concentration en AGV pour l'ensemble des pilotes (Figure 60).

Lors de la mise en place de la saturation / désaturation pour les pilotes en mode libre et ceux inoculés d'importants changements dans la composition du lixiviat ont eu lieu (Figure 60-a et Figure 60-c). L'important lessivage au moment de la saturation / désaturation a généré une chute de la concentration en AGV dans les lixiviats émis à partir du 9<sup>ème</sup> mois pour atteindre des teneurs qui ne sont plus inhibitrices et qui continuent de diminuer pour se stabiliser à des valeurs inférieures à 1 gCH<sub>3</sub>COOH/L propices à la méthanogenèse (Kjeldsen *et al.*, 2002). L'évolution du pH suit celle de la concentration en AGV. Le pH des lixiviats issus de ces pilotes a subi une brusque augmentation jusqu'à 7,9 - 8,5 ; conditions plus favorables à l'établissement d'une phase de méthanogenèse. Cette augmentation du pH est toutefois moins importante pour le témoin qui présente une cinétique ralentie par rapport aux autres modalités. L'application d'une modalité de prétraitement semble donc avoir un impact sur la dégradation des déchets. Après avoir rattrapé son retard, le pH du témoin et des autres pilotes s'est stabilisé aux alentours de 7 vers le 14<sup>ème</sup> mois de suivi indiquant une phase de méthanogenèse (Kjeldsen *et al.*, 2002). Un délai de 6 mois a donc été nécessaire pour que l'effet de la saturation désaturation permette une stabilisation des paramètres indicateurs de l'état de dégradation.

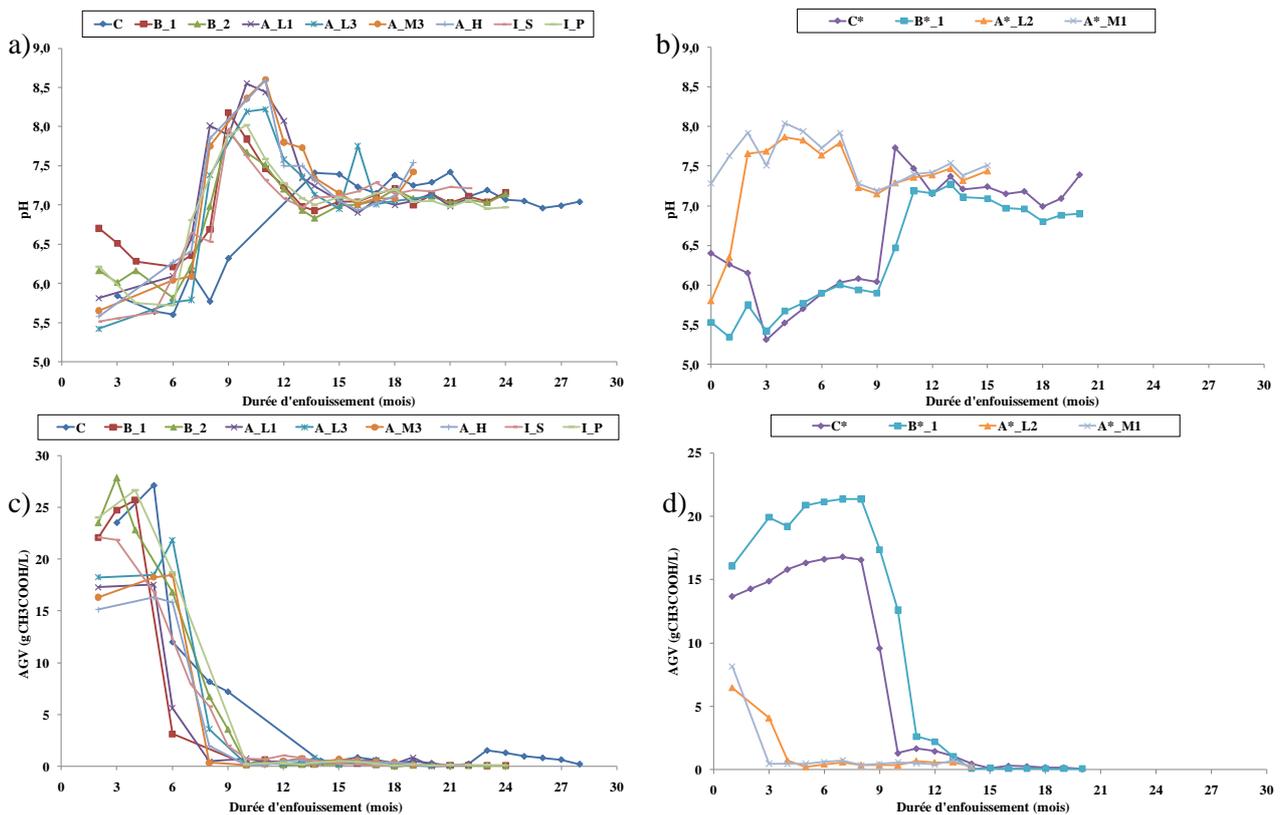


Figure 60 : Evolution du pH et de la concentration en AGV après la saturation / désaturation.

Les déchets des pilotes fonctionnant en mode forcé (C\*, B\*\_1, A\*\_L2 et A\*\_M1) ont également évoluée au cours du temps pour tendre vers un état de biodégradation comparable (Figure 60-b et Figure 60-d). Ainsi, les caractéristiques des lixiviats issus des pilotes A\*\_L2 et A\*\_M1 se sont rapidement stabilisées à des valeurs indiquant une phase de méthanogenèse ; pH supérieur à 7 et concentration en AGV inférieure à 1 gCH<sub>3</sub>COOH/L (Kjeldsen *et al.*, 2002). Les déchets C\* et B\*\_1 qui avaient pourtant subi une saturation / désaturation au départ, présentent cependant une cinétique de stabilisation plus lente. Le pH augmente progressivement jusqu'au 9<sup>ème</sup> mois où un brusque saut de pH d'environ 1,3 unité apparait suite à une chute de la concentration en AGV. Dès cet instant, ces 2 paramètres se stabilisent autour de 7 pour le pH et de moins de 1 gCH<sub>3</sub>COOH/L pour les AGV. La phase d'évolution lente de la biodégradation des déchets C\* et B\*\_1 peut être assimilée à la période d'environ 6 mois après la saturation / désaturation qu'il a fallu aux pilotes fonctionnant en modes libre et inoculé pour se stabiliser. Ces phases pouvant être qualifiées de phases de latence sont comparables à celles mentionnées dans la littérature (François, 2004 ; De Araujo Morais, 2006 ; Vigneron *et al.*, 2007). En effet, plusieurs études indiquent un temps de latence nécessaire au démarrage de la production de biogaz pouvant varier de 60 à 300 jours.

Les deux comportements différents des pilotes fonctionnant en mode forcé (Figure 60-b et Figure 60-d) permettent également de mettre en avant l'effet du prétraitement aérobie sur la cinétique de stabilisation des déchets en conditions d'enfouissement. En effet, les premières étapes de dégradation du déchet ayant eu lieu lors du prétraitement, la mise en place des phases suivantes de dégradation s'effectue plus facilement et donc plus rapidement. L'impact du niveau du prétraitement ou de l'ajout de mâchefers ne peut toutefois pas être déterminé par le suivi de ces paramètres ; une étude plus approfondie est indispensable.

La mise en place de la méthanogenèse se traduit également par l'augmentation de la production de biogaz (Figure 61). Pour l'ensemble des pilotes ayant subi une saturation / désaturation au 6<sup>ème</sup> mois d'exploitation et à l'exception du témoin, une accélération de la cinétique de production de biogaz est observable (Figure 61-a). Cette cinétique augmente encore plus significativement dès le 9<sup>ème</sup> mois d'enfouissement. La production de biogaz du pilote témoin est en effet beaucoup plus faible en termes de quantité et de cinétique de production que celles des autres pilotes. Cette tendance est matérialisée par une modification de la composition du biogaz perceptible au travers de l'augmentation et de l'inversion du rapport  $\text{CH}_4/\text{CO}_2$  qui tend à dépasser l'unité dès le 12<sup>ème</sup> mois de stockage (Figure 61-c). En effet, lors des premières phases de dégradation (acidogenèse) le biogaz produit contient majoritairement du  $\text{CO}_2$  mais quant la méthanogenèse se met en place la teneur en  $\text{CH}_4$  augmente et le  $\text{CO}_2$  diminue créant ainsi un équilibre matérialisé par le rapport  $\text{CH}_4/\text{CO}_2$ . Au-delà de 12 mois, la composition du biogaz présente tous les signes d'une méthanogenèse stable (rapport  $\text{CH}_4/\text{CO}_2$  proche de 1,5). Ces pilotes peuvent être classés en 2 groupes distincts par rapport à leurs cinétiques de production de biogaz après la saturation / désaturation. Ainsi, les modalités B\_1, B\_2 et I\_S présentent une plus forte cinétique que les modalités de prétraitement aérobie (A\_L1, A\_L3, A\_M3 et A\_H) et la modalité d'inoculation I\_P.

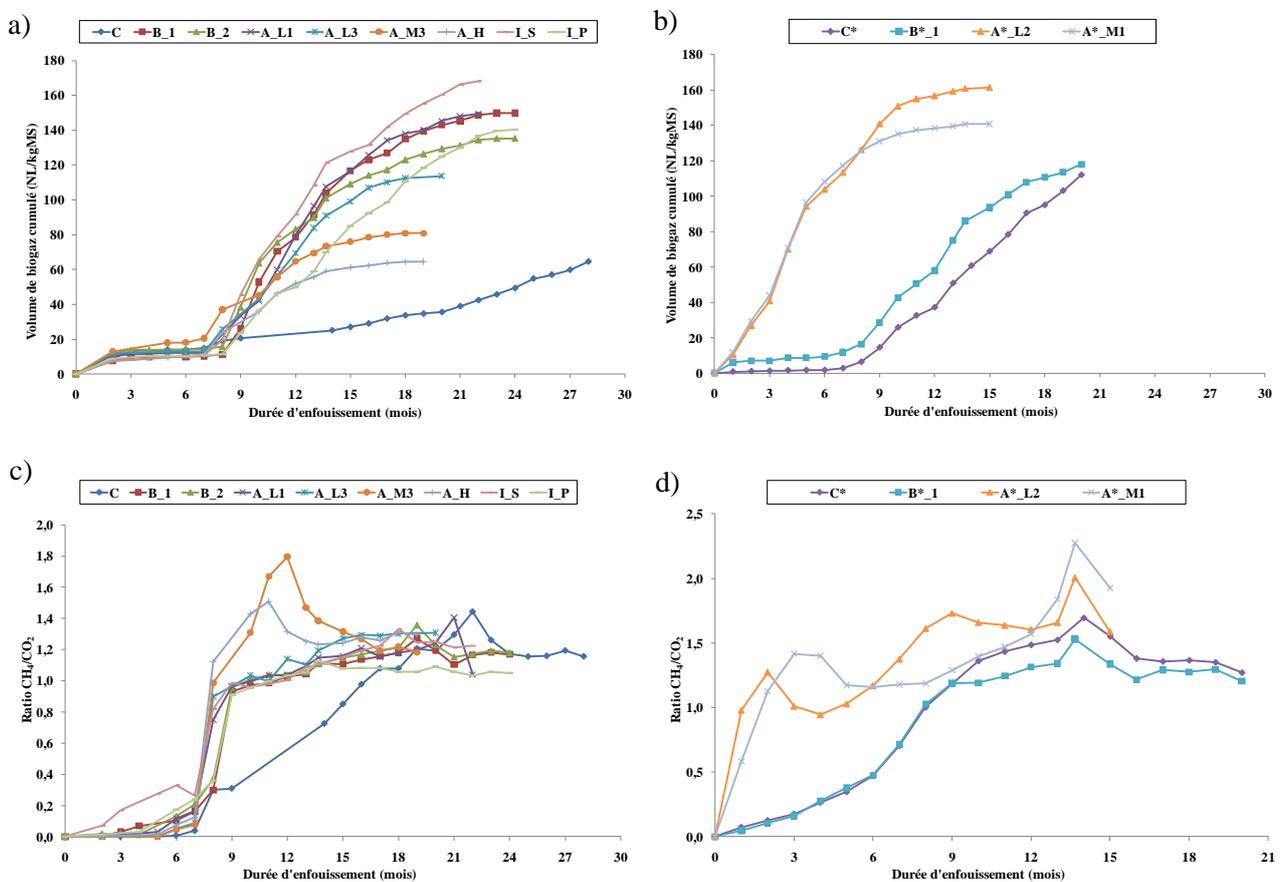


Figure 61 : Production cumulée de biogaz et ratio  $\text{CH}_4 / \text{CO}_2$  des différents pilotes après la saturation / désaturation.

Les pilotes C\* et B\*\_1 fonctionnant en mode forcé présentent des similitudes de comportement. Le démarrage de la production de biogaz ne s'effectue qu'après plus de 7 mois d'exploitation avec une cinétique légèrement plus forte pour B\*\_1 indiquant un possible effet positif de l'ajout de mâchefers (Figure 61 - b et d). Les pilotes A\*\_L2 et A\*\_M1 présentent quant à eux une production immédiate de biogaz avec une cinétique de production largement supérieure à celles de toutes les autres modalités. En outre, aucune différence ne peut être faite au niveau de tous les pilotes ayant

subi un prétraitement aérobie ; l'impact du niveau de prétraitement ne semble pas se traduire par une différence de cinétique.

*L'étude en pilote d'un déchet ménager reconstitué doit donc s'effectuer dans des conditions optimales d'humidité et d'inoculation afin de permettre le démarrage de la biodégradation dans un laps de temps convenable. La mise en place d'une procédure de saturation / désaturation avec du lixiviat mature semble propice au démarrage précoce sans que puisse être ciblé le paramètre d'action le plus influent (ajout d'inoculum par le lixiviat, augmentation de l'humidité, lessivage...). En outre, il apparaît qu'une période d'acclimatation est inévitable avant d'entrer en méthanogenèse. Une étude visant à définir l'impact du moment de saturation / désaturation sur la biodégradation des déchets pourrait s'avérer pertinente afin de réduire la durée des études en pilote tout en optimisant le processus de biodégradation compte tenu des principaux résultats obtenus.*

## II.6. Mobilisation des espèces minérales et organiques

Le stockage des déchets en conditions anaérobies entraîne une libération d'espèces minérales et organiques dont la cinétique d'émission et les concentrations dépendent de la quantité de déchets, de la modalité de prétraitement et du mode de fonctionnement appliqué. L'évolution de l'ensemble des paramètres mesurés tout au long de l'exploitation est présentée en Annexe 7. Les quantités de déchets enfouies et de lixiviats produits n'étant pas identiques pour tous les pilotes, les résultats présentés tiennent compte de la quantité de lixiviat produit et sont exprimés par rapport au kg de Matières Sèches (MS) enfouies (déchet + composé ajouté). L'apport d'espèces minérales et organiques par le lixiviat injecté lors de l'étape de saturation / désaturation a également été pris en considération dans le calcul des quantités produites : la valeur correspondante à la quantité ajoutée a été retranchée à la quantité sortante (Annexe 8).

L'observation de l'ensemble des paramètres mesurés a mis en avant une évolution similaire de la libération des différentes espèces ; tous les paramètres suivent la même tendance au même moment. Sur les 13 pilotes étudiés, 2 comportements distincts apparaissent et sont liés à la date à laquelle l'étape de saturation / désaturation a été appliquée c'est-à-dire après 6 mois d'exploitation (mode libre et modalités d'inoculation - configuration 1) ou au démarrage (mode forcé - configuration 2). En outre, les modalités de même nature c'est-à-dire pour un même composé ajouté ou pour un prétraitement identique mais de niveau différent présentent des cinétiques de relargage similaires pour les différents paramètres mesurés ; les courbes ont des allures analogues.

Ainsi, pour les 9 pilotes de configuration 1, l'évolution des espèces relarguées se fait tout d'abord par une augmentation progressive de la quantité émise jusqu'à l'étape de saturation / désaturation qui génère un brusque lessivage des espèces qui ne sont donc libérées par la suite qu'en plus faibles quantités. La quantité relarguée diminue constamment au cours des mois suivants jusqu'à atteindre un état stabilisé correspondant à une stabilisation des espèces organiques et minérales mobilisées jusqu'à l'arrêt de l'exploitation des pilotes.

En terme de composition des lixiviats émis, il apparaît que certaines espèces comme les phosphates ne sont relargués que lors des tout premiers mois d'enfouissement ce qui est cohérent avec la nature du déchet étudié. En effet, pour un déchet frais les phosphates sont rapidement lessivés ou consommés par les microorganismes présents lors des premières phases de dégradation (François *et al.*, 2006). En outre, le lessivage de toutes les espèces chargées est plus important du fait des faibles pH qui favorisent la solubilisation des espèces ce qui se matérialise par une conductivité très élevée (23 à 30 mS/cm) pour l'ensemble des pilotes. Le fort relargage de la matière organique, exprimée au travers d'une DCO de l'ordre de 50 à 120 gO<sub>2</sub>/L, est caractéristique des premières étapes de dégradation des déchets tel que l'acidogenèse (Kjeldsen *et al.*, 2002).

Des conclusions similaires en terme de composition du lixiviat peuvent être émises pour les 4 pilotes de configuration 2 sachant toutefois qu'ils présentent une évolution légèrement différente.

Une quantité importante d'espèces minérales et organiques est libérée dans le premier lixiviat du fait de la désaturation puis les concentrations émises en ces mêmes composés diminuent significativement. Toutefois, à partir du 4<sup>ème</sup> mois une reprise de la libération de ces espèces est observable pour C\* et B\*\_1 notamment et à moindre échelle pour A\*\_L2 et A\*\_M1. Elle est suivie d'une libération constante des espèces pendant à peu près 5 mois puis les teneurs en polluants émis diminuent jusqu'à la fin de l'exploitation des pilotes. Cette brève reprise du relargage des espèces minérales et organiques entre le 4<sup>ème</sup> et le 9<sup>ème</sup> mois peut être reliée à la procédure de saturation / désaturation imposée et à la phase de latence précédemment évoquée notamment pour les pilotes C\* et B\*\_1. Ainsi, les 4 premiers mois d'exploitation sont nécessaires au déchet afin de restituer la totalité du lixiviat de saturation ne générant pas des conditions propices à la lixiviation des espèces produites d'autant plus que les conditions physicochimiques du milieu (pH faible, concentration en AGV et potentiel redox élevés) ne sont pas propices à la mise en place de la biodégradation du déchet. La reprise de la simulation de pluie au 4<sup>ème</sup> mois engendre la production dès le 5<sup>ème</sup> mois d'un lixiviat plus chargé car provenant de l'infiltration d'une solution non saturée et non plus d'un lixiviat. L'instauration de conditions plus favorables à la biodégradation du déchet (augmentation du pH, chute de la concentration en AGV et du potentiel redox) et le démarrage de la production de biogaz ne sont plus propices à une importante lixiviation des espèces. En effet, le pH plus élevé réduit la solubilité des espèces minérales en favorisant leur précipitation. De même, les concentrations en matière organique (DCO et COD) diminuent du fait de la chute de la teneur en AGV ce qui est le signe d'une entrée en phase de méthanogenèse.

Une identification de ces différentes phases de dégradation est proposée sur la Figure 62 qui représente l'évolution de la concentration en DCO au cours de l'exploitation.

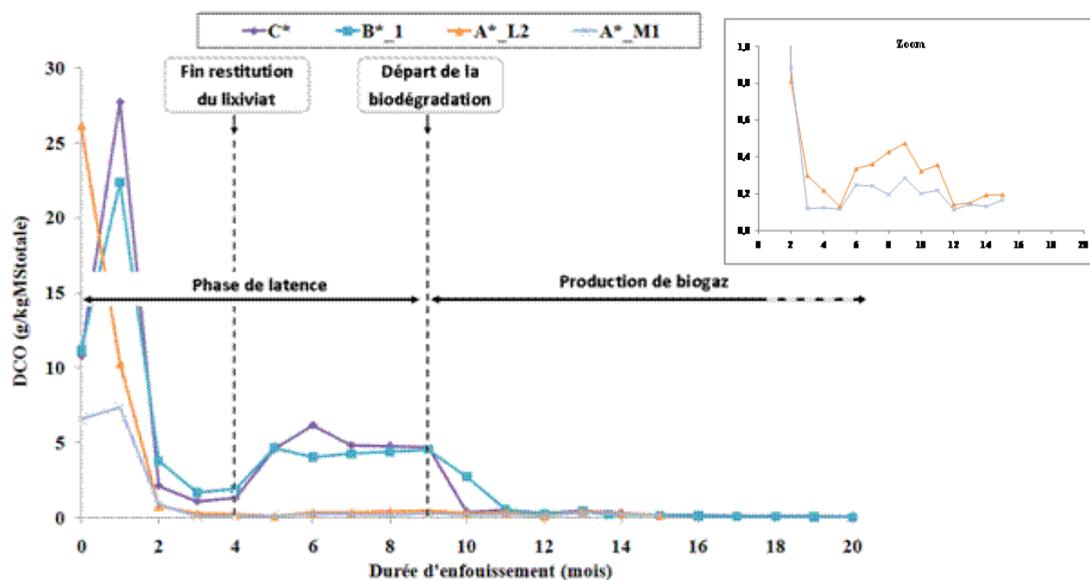


Figure 62 : Identification des phases de dégradation sur le suivi de la DCO.

En outre, pour l'ensemble des 11 pilotes arrêtés sur les 13 suivis, il apparaît une stabilisation de la concentration de tous les polluants émis. Néanmoins, la qualité de ces lixiviats ne respecte pas les critères minimaux imposés pour le rejet d'effluents dans le milieu naturel notamment du point de vue des teneurs en DCO, COD et azote total dont les valeurs seuils sont respectivement de 300, 70 et 30 mg/L (Annexe 5).

*L'observation de l'évolution stricte des paramètres caractéristiques de la dégradation du déchet n'a pas permis de différencier clairement les modalités de prétraitement appliquées. En effet, les cinétiques de libération des différentes espèces mesurées sont semblables d'une modalité à l'autre. Toutefois, le retard de dégradation du déchet témoin (C) et l'effet positif d'un prétraitement aérobie*

*couplé à une saturation / désaturation au départ peuvent être soulignés (A\*\_L2 et A\*\_M1). L'ajout de mâchefers ou d'inoculum n'ont pas, à ce stade de l'exploitation des données, présentés de réels impacts sur la dégradation et la stabilisation des déchets.*

## II.7. Humidité du déchet et production de lixiviat

Malgré une gestion similaire (teneur en humidité initiale et simulation de pluie), les déchets des différents pilotes réagissent différemment et produisent une quantité variable de lixiviat. Le calcul du ratio flux sortant (lixiviat) sur flux entrant (eau ou lixiviat) informe sur le comportement du déchet lors des infiltrations d'eau de pluie. Il permet également d'appréhender l'humidité du massif de déchet. Un ratio inférieur à 1 indique que l'eau ajoutée est conservée au sein du massif de déchet alors qu'au contraire, un ratio supérieur à 1 indique que le déchet s'assèche puisque le volume de lixiviat produit est supérieur à l'eau ajoutée. Les Figure 63 et Figure 64 représentent l'évolution de ce ratio au cours de l'enfouissement ; l'équilibre entrée / sortie (ratio égal à 1) est matérialisée par une ligne.

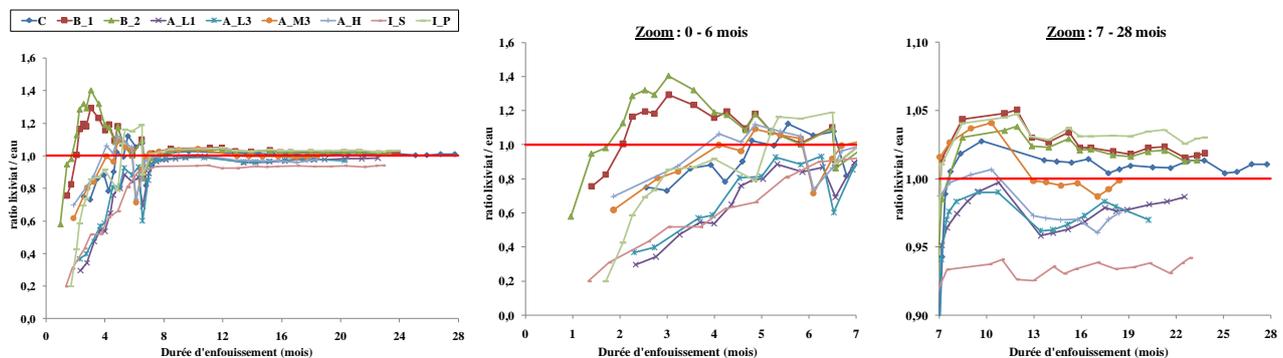


Figure 63 : Evolution du ratio lixiviat produit / eau apportée au cours de l'enfouissement pour les modalités gérés selon la configuration 1.

Lors du premier mois d'enfouissement, le ratio lixiviat / eau est largement inférieur à 1 pour toutes les modalités non saturées / désaturées au départ (configuration 1) (Figure 63). L'humidité initialement ajustée est donc trop faible puisque le déchet conserve l'eau apportée. Jusqu'au 6<sup>ème</sup> mois d'enfouissement, ce ratio augmente mais reste inférieur à 1 sauf pour les modalités contenant des mâchefers (B\_1 et B\_2) pour lesquelles il dépasse largement 1. Pour ces 2 modalités, le déchet produit plus de lixiviat que d'eau injectée du fait de la présence de mâchefers qui n'absorbent pas l'eau injectée. Les modalités de prétraitement aérobie avec un fort niveau de prétraitement (A\_M3 et A\_H) présentent également un ratio lixiviat / eau plus élevé à mettre en relation avec le taux d'humidité initial légèrement plus fort que pour les autres modalités. L'étape de saturation / désaturation au 7<sup>ème</sup> mois induit un changement dans la relation entre l'eau apportée et le lixiviat libéré. Un niveau de stabilisation représenté par un ratio lixiviat / eau constant aux environs de 1 s'instaure ; cette stabilisation s'effectue toutefois à des valeurs différentes selon les pilotes.

L'évolution de ce ratio peut aisément être reliée à celle de la biodégradation du déchet elle-même liée à l'étape de saturation / désaturation. En effet, la stabilisation du ratio lixiviat / eau correspond au démarrage de la production de biogaz (Figure 61) et au brusque changement des caractéristiques du lixiviat (Figure 60). En outre, dès l'instauration d'une activité biologique, plus le ratio lixiviat / eau est faible et plus les conditions sont favorables à la biodégradation car le système présente une teneur en humidité supérieure du fait qu'il retienne l'eau ; la cinétique de production de biogaz est donc plus forte. Cependant, les déchets B\_1 et B\_2 font exception du fait du caractère totalement hydrophobe des mâchefers qui modifie la capacité de rétention du mélange déchets + mâchefers.

Pour les modalités ayant été saturées / désaturées au départ (configuration 2), le ratio lixiviat / eau est toujours supérieur à 1 ; il augmente au cours des 3 premiers mois car la désaturation se poursuit puis se stabilise rapidement (Figure 64). Les pilotes C\* et B\*\_1 étant en cours d'exploitation car n'ayant pas encore atteint un niveau de stabilisation de la production de biogaz, il est difficile de relier l'état de la biodégradation avec le ratio lixiviat / eau. Ce lien semble toutefois se valider pour les modalités de prétraitement aérobique (A\*\_L2 et A\*\_M1) car sur l'ensemble des paramètres mesurés (pH, concentration en AGV, ou production de biogaz) un démarrage de la biodégradation semble être attendu plus rapidement pour A\*\_M1 en accord avec un ratio lixiviat / eau toujours plus faible.

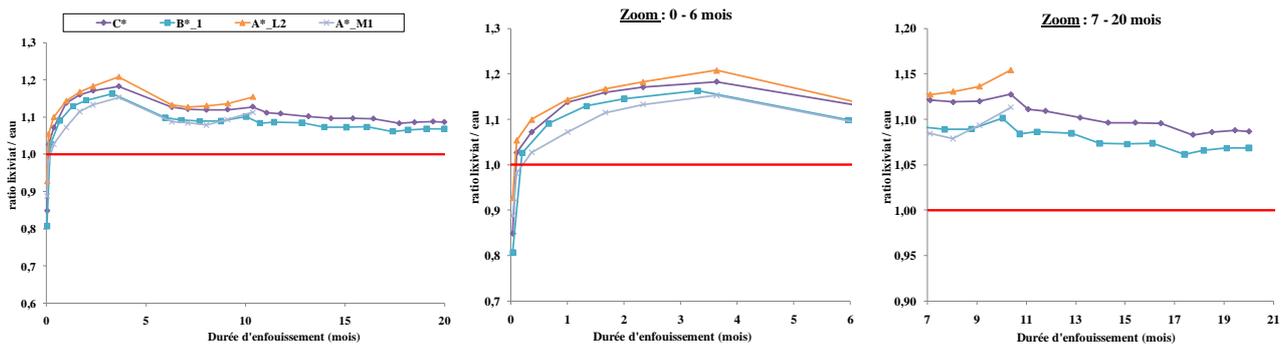


Figure 64 : Evolution du ratio lixiviat produit / eau apportée au cours de l'enfouissement pour les modalités gérés selon la configuration 2.

*L'ensemble des observations quant au comportement du massif de déchets vis-à-vis de l'eau injectée lors de la simulation de pluie ou au cours de la saturation / désaturation met en avant un effet significatif de l'humidité du massif de déchet sur la biodégradation du déchet. Ainsi, un ratio lixiviat / eau faible indique des conditions d'humidité adaptées favorisant la mise en place d'une méthanogenèse stable.*

## II.8. Évaluation de l'effet d'une modalité de traitement par l'étude de la matière organique

Utilisée seule, la caractérisation des lixiviats par la mesure de paramètres globaux ne permet pas d'évaluer l'état de dégradation du déchet ou de discuter de son état de stabilisation dans la mesure où, même s'ils n'évoluent plus significativement, des réactions continuent de se produire au sein du massif de déchets. De ce fait, une étude plus approfondie de la matière organique extraite est réalisée par le biais d'un fractionnement en fonction du caractère hydrophobe des molécules organiques afin d'évaluer le degré d'avancement de la transformation de la matière organique du système.

### II.8.1. Matière organique initialement mobilisée

La proportion de matière organique libérée dans le premier lixiviat peut s'exprimer au travers de la concentration en COD.

Les modalités gérées selon la configuration 1 (non saturées / désaturées au départ) produisent un lixiviat fortement chargé en matière organique et correspondant à une phase d'acidogenèse (Kjeldsen *et al.*, 2002). Les modalités contenant des mâchefers (B\_1 et B\_2) et les modalités

d'inoculation (I\_S et I\_P) génèrent un lixiviat dont la concentration en substances organiques est similaire et de l'ordre de 30 gC/L. le déchet témoin libère une quantité plus importante de matière organique (48 gC/L) à mettre en relation avec la date de production de ce premier lixiviat. En effet, l'ensemble de ces modalités à l'exception du témoin ont produit leur premier lixiviat après 2 mois de stockage contre 3 mois pour le témoin. Le transfert du déchet à la phase liquide a donc été favorisé par un temps de contact plus long. Un impact de ces modalités de prétraitement ne peut donc pas être clairement établi ; seules les modalités de prétraitement aérobie se dégagent. Ainsi, le prétraitement aérobie de plus faible niveau (A\_L1) génère un lixiviat 2 fois plus chargé que les modalités non prétraitées biologiquement du fait du prétraitement, qui par sa durée (et donc son niveau), a simplement rendu plus disponible la matière organique mais ne l'a pas totalement dégradé. L'augmentation du niveau de prétraitement induit la production d'un lixiviat de moins en moins chargé ce qui est en accord avec le principal objectif de ce prétraitement qui est de réduire la proportion de matière organique à enfouir et qui n'est donc plus libérée dans le lixiviat.

Les pilotes fonctionnant selon la configuration 2 (mode forcé) libèrent une quantité plus importante de matière organique dans le premier lixiviat (40 à 100 gC/L selon la modalité) car il correspond au lixiviat de désaturation, étape au cours de laquelle un lessivage important des espèces organiques a eu lieu.

Les modalités de prétraitement et le mode de gestion influencent également la répartition de la matière organique libérée dans le premier lixiviat (Figure 65). Les caractéristiques de cette matière organique (indice SUVA, ratio AH\*/AF\*, concentration en AGV et proportion de SH\*) sont présentées dans le Tableau LX.

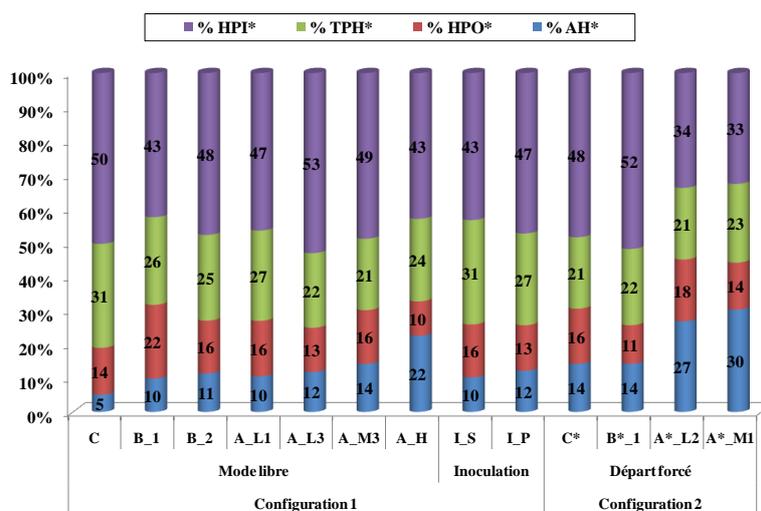


Figure 65 : Répartition de la matière organique extraite du premier lixiviat.

Pour les modalités gérées selon la configuration 1, la matière organique initialement relarguée semble contenir une quantité non négligeable de molécules de type AH\* ; entre 5 et 22% selon les modalités (Figure 65). Toutefois, la composition du lixiviat met en avant un indice SUVA faible (inférieur à 1,3 L/gC/cm) et une forte concentration en AGV (15 à 24 gCH<sub>3</sub>COOH/L) indiquant que les molécules présentes sont très peu aromatiques ce qui est cohérent avec une phase d'acidogenèse (Tableau LX). Les molécules extraites ne sont donc pas des AH\* mais sont assimilées comme tel par le protocole de fractionnement utilisé. Décrites dans la littérature, ces molécules correspondent à des AH\* dit de décomposition qui sont très peu stables (ratio AH\*/AF\* élevé) et sont donc amenées à disparaître au cours de la dégradation (Berthe *et al.*, 2008).

En outre, les modalités prétraitées présentent des caractéristiques quelque peu différentes de celles du témoin (C) avec une teneur en AH\* 2 à 4 fois plus grande (10 à 22 % contre 5 % pour le témoin) et une proportion de SH\* également plus importante (25 à 32 % contre 19 % pour le témoin). Certains travaux ont mis en évidence l'absence des premières phases de dégradation et donc de la libération d'AH\* de décomposition lors de l'enfouissement de déchets prétraités notamment par prétraitement biologique aérobie poussé. Toutefois, dans le cas présent, la forte concentration en AGV de l'ensemble des modalités et l'indice SUVA faible indique la présence de molécules très peu ou pas aromatiques. Ainsi, les différences entre les modalités au premier mois d'enfouissement ne semblent pas réellement significatives compte tenue de la durée d'enfouissement. Ainsi, aucun impact significatif de la modalité de prétraitement ne peut être mis en avant par le biais de la caractérisation de ce premier lixiviat.

Tableau LX : Caractéristiques de la matière organique libérée dans le premier lixiviat.

Paramètres		SUVA L/gC/cm	AGV gCH <sub>3</sub> COOH/L	AH*/AF* -	SH* %
Mode Libre	C	1,0	24	0,37	19
	B_1	0,9	22	0,45	32
	B_2	0,7	23	0,73	27
	A_L1	0,7	17	0,64	27
	A_L3	0,8	18	0,91	25
	A_M3	1,2	16	0,89	30
	A_H	1,2	15	2,21	32
Inoculation	I_S	1,3	22	0,65	26
	I_P	1,0	24	0,90	26
Mode Forcé	C*	6,7	2	0,87	31
	B*_1	6,2	3	1,25	26
	A*_L2	8,5	4	1,47	45
	A*_M1	12,1	1	2,18	44

ratio AH\*/AF\* correspond à %AH\* / %HPO\*

SH\* correspond à %AH\* + %HPO\*

Les modalités saturées / désaturées au départ (configuration 2) génèrent un premier lixiviat dont les caractéristiques sont proches de celles d'un lixiviat provenant d'un déchet en phase stable de méthanogenèse c'est-à-dire une forte proportion de AH\* (supérieur à 10 %) et un ratio AH\* / AF\* supérieur à 0,5 (Berthe *et al.*, 2008). Cette composition est liée au fait que ce premier lixiviat correspond au lixiviat de désaturation et que l'étape de saturation a été faite par un lixiviat issu d'un déchet en phase d'humification. Ainsi, un apport important de matière organique humifiée est réalisée par le lixiviat de saturation qui contient 32,7 % de AH\* et un SUVA de plus de 30 L/gC/cm. En outre, pour les modalités de prétraitement aérobie (A\*\_L2 et A\*\_M1), les caractéristiques du premier lixiviat présentent un état d'humification plus important qui pourrait témoigner d'un état de dégradation déjà avancé des déchets lors de leur enfouissement et qui engendrerait la libération de substances organiques aromatiques dès le premier lixiviat produit. En effet, les lixiviats issus des pilotes A\*\_L2 et A\*\_M1 ont un indice SUVA, un ratio AH\*/AF\* et une proportion de SH\* légèrement supérieurs à ceux du témoin (C) ou de la modalité contenant des mâchefers (B\*\_1). Toutefois, il n'est pas possible de distinguer clairement l'impact du niveau de prétraitement car les différences de caractéristiques entre ces 2 modalités sont trop faibles et que l'apport de matière organique par le lixiviat de saturation est très important.

## II.8.2. Evolution des caractéristiques de la matière organique

L'état de la matière organique au cours de l'enfouissement est appréhendé au travers de l'indice SUVA qui a été calculé pour tous les lixiviats issus des pilotes (Figure 66 et Figure 67).

Malgré une augmentation constante au cours des 6 premiers mois d'enfouissement, l'indice SUVA reste faible (inférieur à 2 L/gC/cm) pour l'ensemble des modalités non saturées / désaturées au départ (configuration 1) (Figure 66). Cette très faible et peu significative évolution de l'indice SUVA peut être mise en relation avec le blocage en phase acide de l'ensemble des pilotes lors des premiers mois de stockage. En effet, aucune biodégradation du déchet et donc aucun changement important dans la structure de la matière n'a pu avoir lieu car les conditions fortement acides ne sont pas favorables à la mise en place d'une activité biologique méthanogène.

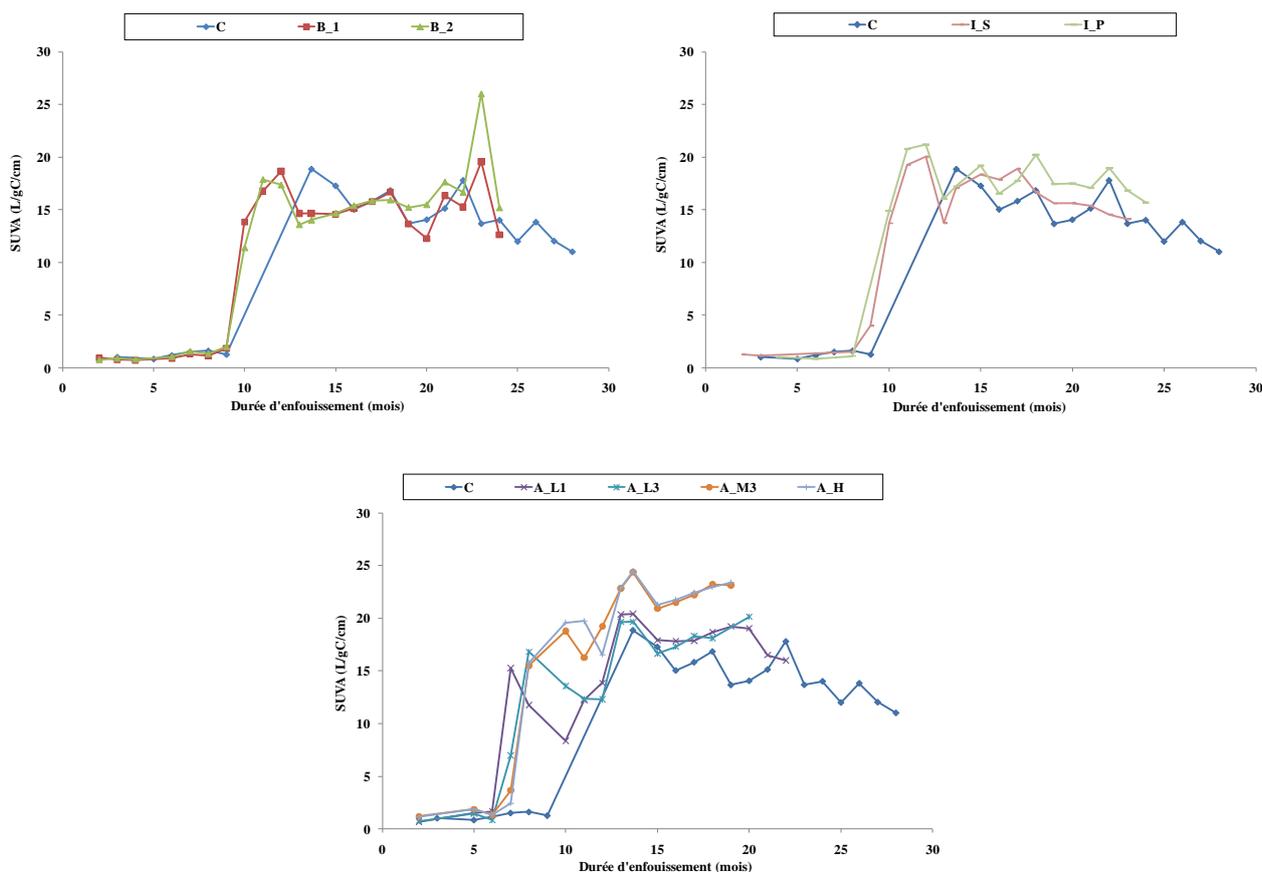


Figure 66 : Evolution de l'indice SUVA du lixiviat au cours de l'enfouissement pour les pilotes de configuration 1.

La mise en place de la saturation / désaturation au 6<sup>ème</sup> mois marque un changement dans l'évolution de l'indice SUVA pour toutes les modalités puisqu'il augmente significativement. Cette hausse de l'indice SUVA se fait pour certaines modalités après une phase de latence plus ou moins longue. Ainsi, elle est de 3 mois pour le déchet témoin, les modalités mâchefers (B\_1 et B\_2) et les modalités d'inoculation (I\_S et I\_P) alors qu'aucune phase de latence n'est observée pour les modalités de prétraitement aérobique avant enfouissement (A\_L1, A\_L3, A\_M3 et A\_H). Cette phase de latence au cours de laquelle l'indice SUVA reste faible est liée à la forte concentration en AGV initialement présente qui diminue entre le 6<sup>ème</sup> et le 9<sup>ème</sup> mois mais qui reste encore importante (entre 7 et 10 gCH<sub>3</sub>COOH). Dès qu'ils ont totalement été évacués, l'indice SUVA augmente fortement passant de valeurs inférieures à 2 L/gC/cm à des valeurs supérieures à 15 L/gC/cm. Suite à cette hausse et pour toutes les modalités, 3 à 5 mois sont nécessaires afin de stabiliser la valeur de l'indice SUVA et de pouvoir noter une évolution caractéristique d'un état de dégradation et de

maturité du déchet. Cette durée correspond au temps nécessaire pour que le massif de déchet évacue la totalité du lixiviat ajouté lors de la saturation ; ce phénomène se traduisant par une chute de l'indice SUVA. Dès l'instauration d'une méthanogenèse stable, l'indice SUVA se stabilise pour les modalités B\_1, B\_2, I\_S, I\_P et A\_L1 alors qu'il est bien supérieur pour les modalités de prétraitement aérobie A\_L3, A\_M3 et A\_H et continue même à augmenter sans atteindre une réelle stabilisation. La durée de l'expérimentation semble trop courte afin que le déchet puisse amorcer une phase d'humification poussée. Toutefois, l'impact d'un prétraitement aérobie de niveau assez élevé peut donc être mis en avant par rapport à une autre modalité de traitement ou à une gestion conventionnelle. En outre, le comportement du témoin (C) reste atypique tout comme sa production de biogaz puisque l'indice SUVA ne cesse de diminuer suite à l'étape de saturation / désaturation au 6<sup>ème</sup> mois. Ce déchet semble donc être dans un état de dégradation inférieur aux autres modalités de traitement.

Pour les modalités saturées / désaturées au départ (configuration 2), l'évolution de l'indice SUVA met en avant 2 comportements distincts au cours des 3 premiers mois d'enfouissement correspondant au temps nécessaire au déchet pour évacuer le lixiviat de la saturation (Figure 67).

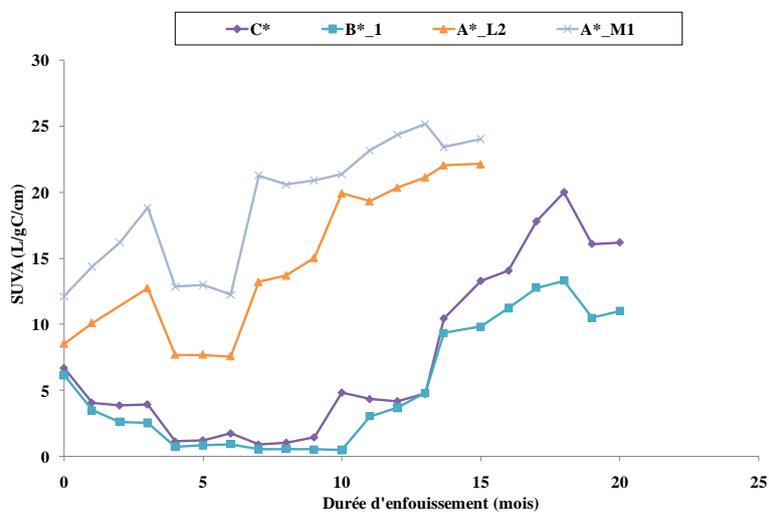


Figure 67 : Evolution de l'indice SUVA du lixiviat au cours de l'enfouissement pour les pilotes de configuration 2.

Ainsi, l'indice SUVA augmente pour les modalités A\*\_L2 et A\*\_M1 alors qu'il diminue pour C\* et B\*\_1 en étant toujours plus faible pour A\*\_L2 et A\*\_M1. Compte tenu des observations précédemment émises, l'augmentation de l'indice SUVA pour A\*\_L2 et A\*\_M1 peut être mise en relation avec un état de dégradation plus avancé du déchet avant enfouissement et un départ plus rapide de la biodégradation en conditions anaérobies car les conditions physicochimiques au sein du massif de déchets (pH, Eh, concentration en AGV...) peuvent être considérées comme adéquates. La brève chute de l'indice SUVA entre les mois 4 et 6 pour ces 2 modalités plus faiblement observée pour C\* et B\*\_1, est consécutive à la reprise de la simulation de pluie qui ne permet plus la libération des espèces issues du déchet ni du lixiviat de saturation. Les espèces sont plus aromatiques du fait du prétraitement qui a amorcé la transformation des substances organiques. Dès lors (6<sup>ème</sup> mois), l'indice SUVA ne cesse d'augmenter pour se stabiliser au cours des 2 derniers mois de suivi. Toutefois, 2 mois de suivi représentant un indice SUVA stable paraissent insuffisants afin de conclure à un état de stabilité du système. Pour les modalités C\* et B\*\_1, l'augmentation de l'indice SUVA n'a lieu qu'après le 9<sup>ème</sup> mois d'enfouissement, soit dès la chute de la concentration en AGV et le démarrage de la production de biogaz. La baisse de l'indice SUVA au 19<sup>ème</sup> mois pourrait être liée à une stabilisation du système qui reste à confirmer lors de prochains mois car la production de biogaz n'est pas achevée et ces pilotes sont encore en cours d'exploitation.

Comme il a été montré lors de l'exploitation des données des pilotes ELIA (Partie III - I.1.3), l'évolution de l'indice SUVA est corrélable aux étapes de biodégradation du déchet c'est-à-dire à la production de biogaz (Feuillade *et al.*, 2009).

L'évolution de la répartition de la matière organique extraite et notamment la proportion de AH\* suit celle de l'indice SUVA. En effet, l'indice SUVA indique la présence de molécules organiques aromatiques et hydrophobes qui sont généralement plus présentes lorsque l'état de dégradation du déchet augmente (Kang *et al.*, 2002). Un fractionnement de cette matière organique tout au long de l'enfouissement a été effectué pour les modalités C\*, B\*\_1, A\*\_L2 et A\*\_M1 (Figure 68), le ratio AH\*/AF\* et la proportion de SH\* ont également été calculés (Figure 69).

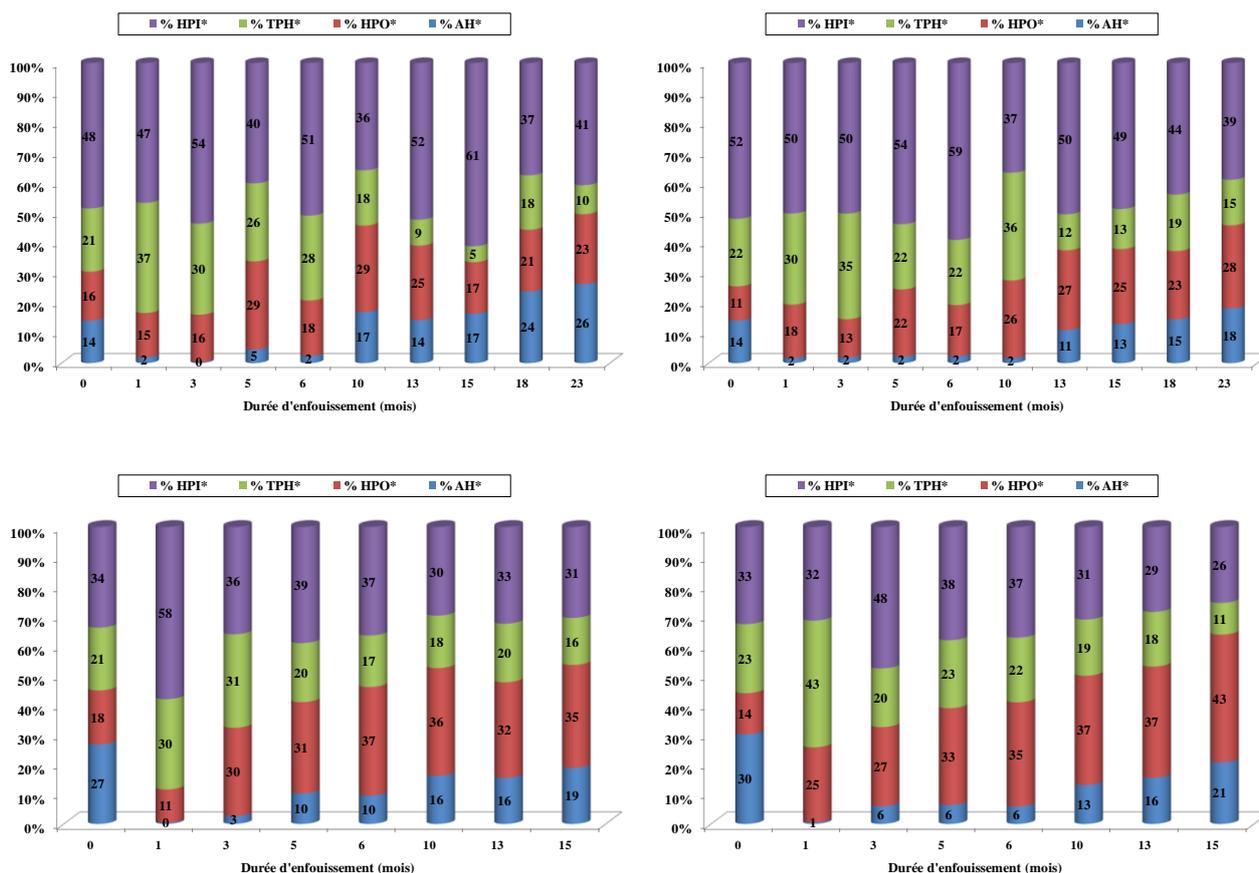


Figure 68 : Evolution de la répartition de la matière organique au cours du temps pour les pilotes C\*, B\*\_1, A\*\_L2 et A\*\_M1.

Au cours des 3 premiers mois d'enfouissement, le lixiviat issu des pilotes C\* et B\*\_1 est un lixiviat jeune contenant peu d'AH\* et où les composés non humiques de type HPI\* et TPH\* prédominent à près de 80%. Cette composition est caractéristique d'une phase d'acidogenèse au cours de laquelle des composés non aromatiques (AGV, alcools...) sont libérés. Jusqu'au 10<sup>ème</sup> mois de stockage, les caractéristiques de la matière organique extraites des différents lixiviats n'évoluent pratiquement pas. La phase de latence précédemment observée lors du suivi des paramètres globaux du lixiviat et de la production de biogaz s'applique également au processus de transformation de la matière organique. En effet, les conditions physicochimiques du milieu (pH acide, potentiel redox élevé...) ne sont pas propices à la transformation de composés organiques.

A partir du 10<sup>ème</sup> mois, les proportions d'AH\* et de SH\* augmentent significativement au cours du temps traduisant l'entrée dans une phase d'humification ou tout du moins dans une phase de pré-humification. En effet, la proportion de composés non humiques (HPI\* et TPH\*) diminuent

progressivement au profit de molécules présentant un caractère beaucoup plus humifié (SUVA plus élevé). La stabilité de ces molécules exprimée au travers du ratio  $AH^*/AF^*$  augmente également.

Toutefois, au-delà de 23 mois d'enfouissement, un état de stabilité ne s'est toujours pas instauré car les caractéristiques de la matière organique continuent à évoluer dans le sens d'une augmentation de la proportion de substances humifiées. L'état de dégradation du déchet ne cesse donc de changer ce qui est en accord avec une production de biogaz encore relativement important au 23<sup>ème</sup> mois de suivi ; respectivement 0,88 et 0,54 NL/kgMStotale pour C\* et B\*\_1.

Dans le cas des déchets prétraités biologiquement avant enfouissement (A\*\_L2 et A\*\_M1), cette première phase de latence n'apparaît pas ou très brièvement selon le niveau du prétraitement ; elle a probablement eu lieu au cours de l'étape de prétraitement aérobie. En outre, plus le prétraitement aérobie est poussé c'est-à-dire plus la réduction de la matière organique facilement biodégradable est importante et plus l'entrée en phase d'humification du déchet sera rapide c'est-à-dire moins la phase de latence sera observée. Ainsi, dès le 3<sup>ème</sup> mois d'enfouissement, la proportion de  $SH^*$  augmente progressivement et la teneur en  $HPO^*$  devient rapidement supérieure à celle de  $HPI^*$  traduisant le début d'une phase d'humification (Berthe *et al.*, 2008 ; Feuillade *et al.*, 2009).

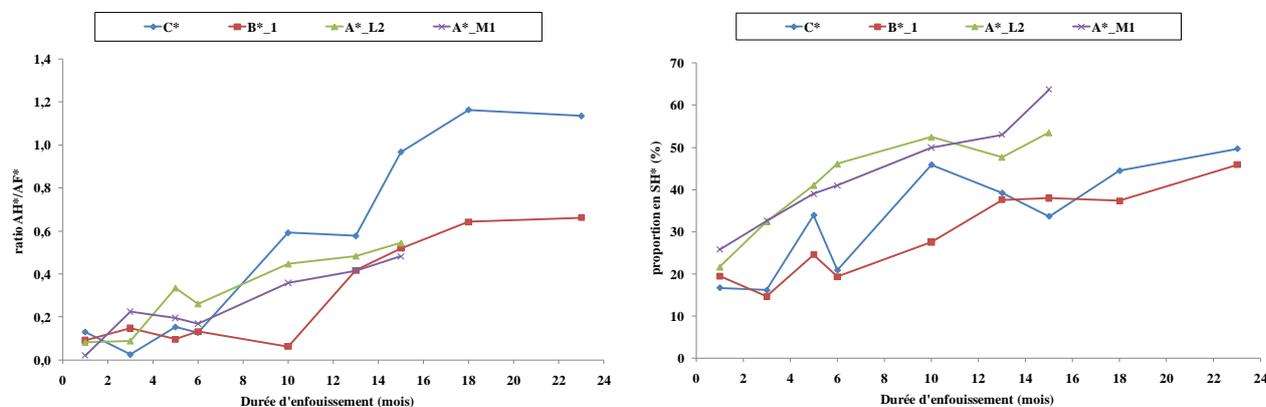


Figure 69 : Evolution des caractéristiques de la matière organique (ratio  $AH^*/AF^*$  et  $SH^*$ ) au cours du temps pour les pilotes C\*, B\*\_1, A\*\_L2 et A\*\_M1.

Au terme de l'exploitation de ces pilotes c'est-à-dire après 15 mois d'enfouissement, un état de stabilité n'est pas réellement atteint car la matière organique extraite contient une proportion toujours plus forte de substances humifiées. Même si ces molécules présentent des caractéristiques de stabilité (ratio  $AH^*/AF^* > 0,5$  et  $SH^* > 30\%$ ), un état stable c'est-à-dire non évolutif n'est pas atteint.

### II.8.3. Etat de la matière organique lors de l'excavation

La répartition de la matière organique extraite du dernier lixiviat donnée par le fractionnement selon le caractère hydrophobe pour l'ensemble des pilotes est présentée sur la Figure 70. Pour les pilotes encore en cours d'exploitation (C, C\* et B\*\_1) car ils produisent encore du biogaz, le point d'analyse le plus proche de la date d'arrêt des autres modalités est pris comme référence soit respectivement après 28, 15 et 15 mois de suivi. Les caractéristiques de cette matière organique (indice SUVA, ratio  $AH^*/AF^*$  et proportion de  $SH^*$ ) sont présentées dans le Tableau LXI.

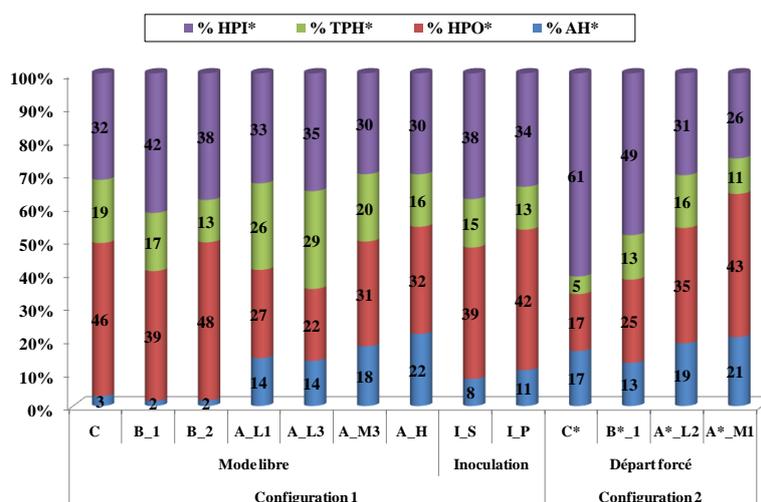


Figure 70 : Répartition de la matière organique extraite du dernier lixiviat.

Quelque soit le moment de saturation / désaturation, la mise en place d'une étape de traitement biologique aérobie avant enfouissement permet d'atteindre un état d'humification beaucoup plus important que lors d'une gestion conventionnelle (C ou C\*). En effet, les derniers lixiviats produits ont des caractéristiques qui peuvent être considérées comme issues d'un déchet dont la dégradation se situe entre une phase de pré-humification et d'humification c'est-à-dire une proportion de SH\* supérieur à 30%, un taux de HPI\* inférieur à 50% et un indice SUVA supérieur à 20.

Tableau LXI : Caractéristiques de la matière organique libérée dans le dernier lixiviat.

Paramètres		Durée (mois)	SUVA L/gC/cm	HPI* %	AH*/AF* -	SH* %
Mode Libre	C	28	11	32	0,07	49
	B_1	24	13	42	0,04	41
	B_2	24	15	38	0,04	50
	A_L1	22	16	33	0,54	41
	A_L3	20	20	35	0,63	35
	A_M3	19	23	30	0,57	49
	A_H	19	23	30	0,67	54
Inoculation	I_S	23	14	38	0,21	48
	I_P	24	16	34	0,26	53
Mode Forcé	C*	15	13	61	0,97	34
	B*_1	15	10	49	0,52	38
	A*_L2	15	22	31	0,54	54
	A*_M1	15	24	26	0,48	64

ratio AH\*/AF\* correspond à %AH\* / %HPO\*

SH\* correspond à %AH\* + %HPO\*

L'inoculation du déchet (I\_S et I\_P) permet également d'atteindre un niveau de stabilisation et d'humification supérieur au témoin du fait de l'apport d'une flore méthanogène adaptée qui agit sur l'étape de méthanogenèse. En effet, dès le démarrage de la biodégradation, la cinétique de production de biogaz est plus importante pour les modalités d'inoculation (Figure 61). Cette phase précédant la maturation des substances organiques, son optimisation induit une stabilisation plus rapide de la matière.

Au contraire, l'ajout de mâchefers (type 1 ou type 2) même s'il influe sur la cinétique de production de biogaz ne semble pas générer un lixiviat présentant des molécules organiques plus humifiées que lors d'un enfouissement classique ; les proportions en AH\*, SH\* et l'indice SUVA sont relativement proches.

L'application d'une étape de saturation / désaturation dès l'enfouissement semble également favoriser les processus d'humification au sein du massif de déchet en plus de permettre le démarrage de la biodégradation. En effet, pour une modalité similaire gérée selon les 2 configurations, un meilleur état de stabilisation est atteint lorsque la saturation / désaturation a lieu au départ. Une hypothèse quant à l'apport d'inoculum lors de l'étape de saturation / désaturation peut être émise. Ainsi, la saturation / désaturation à l'état initial permettrait de lessiver les espèces facilement mobilisables tout en apportant au système les microorganismes indispensables à la biodégradation du déchet et à la mise en place de conditions optimales pour les processus d'humification qui suivent la méthanogenèse. Lorsque l'étape de saturation / désaturation n'est pas réalisée au départ, elle a pour principal objectif de lessiver les espèces ayant bloqué la biodégradation du déchet en inhibant le métabolisme des microorganismes présents. Même si les espèces inhibitrices sont évacuées, le système reste fragilisé et le processus complexe d'humification a du mal à se mettre en place. Seules les modalités de prétraitement aérobique avant enfouissement donnent lieu à un état humifié et stabilisé quelque soit le moment de saturation / désaturation car une partie de la dégradation des substances organiques a déjà eu lieu lors de l'étape de prétraitement.

*L'évolution des caractéristiques de la matière organique extraite au cours de l'enfouissement corrobore les observations précédemment faites lors du suivi des paramètres globaux du lixiviat et de la production de biogaz. Toutefois, le suivi approfondi de la matière organique permet de mettre en avant que la stabilité induite par un arrêt de la production de biogaz et par un lixiviat de moins en moins chargé ne correspond pas à un réel état de stabilité de la matière enfouie.*

## II.9. Mobilisation d'espèces métalliques

Une étude approfondie de la charge métallique des lixiviats émis a été réalisée sur les modalités contenant des mâchefers (B\_1, B\_2 et B\*\_1) afin de les comparer aux données concernant les témoins (C et C\*). De part leur composition, les mâchefers contiennent une part importante d'espèces métalliques (Tableau LXII). Trois espèces métalliques ont été ciblées dans le cadre de cette étude du fait de leur prédominance dans les déchets ou dans les mâchefers : cuivre, nickel et plomb.

Tableau LXII : Proportion d'éléments métalliques dans le déchet et les mâchefers.

Paramètres		Déchet (C ; C*)	Mâchefers type A (dans B_1 ; B*_1)	Mâchefers type B (dans B_2)
Cu	mg/kgMS	2768 ± 228	231 ± 10	128 ± 8
Ni		124 ± 52	16 ± 1	12 ± 1
Pb		34 ± 9	53 ± 2	38 ± 2

Au cours du suivi des pilotes, la mobilisation de ces 3 espèces dans le lixiviat a suivi les mêmes évolutions avec toutefois des proportions différentes. Ainsi, le nickel est relargué en quantités environ 5 fois supérieures au cuivre alors que le plomb est faiblement libéré (2 fois moins que le cuivre). L'ordre de grandeur relativement faible des concentrations mesurées ( $\mu\text{g/L}$ ) est compris dans les gammes de valeurs généralement retrouvées dans la littérature (Christensen *et al.*, 2001).

Les quantités mobilisées ne sont pas directement proportionnelles à la quantité de métaux initialement présents dans le mélange déchets + mâchefers (Tableau LXII).

Une quantité plus importante de nickel que de cuivre est libérée alors que la composition initiale mentionne une plus grande teneur en cuivre qu'en nickel. Au contraire, le plomb peu présent dans le déchet, n'est retrouvé qu'en faible quantité dans le lixiviat même dans les modalités contenant des mâchefers. Le nickel semble donc être plus facilement lessivable que les deux autres éléments métalliques ce qui est en accord avec la hiérarchisation de solubilité des éléments métalliques indiquée dans la littérature : Ni > Zn, Cu, Mn, Cr > Pb, Fe, Cd (Flyhammar et Håkansson, 1999). Les conditions opératoires d'analyse sont également à prendre en considération pour différencier le comportement à la lixiviation des ces espèces métalliques. En effet, la quantification de ces métaux a été réalisée sur un lixiviat filtré à 0,45 µm, fraction au sein de laquelle le Ni est fortement présent contrairement au Cu et au Pb qui se situent plutôt dans une fraction supérieure 0,45 µm (Øygaard *et al.*, 2007). En outre, l'hétérogénéité de la matrice déchet semble avoir un impact hautement significatif sur l'évaluation de la teneur en métaux au vu de la grande dispersion des résultats observée.

Seuls les comportements du cuivre et du nickel au cours de la dégradation sont présentés dans le Tableau LXIII car le plomb est rapidement présent dans des concentrations inférieures au seuil de détection (3 µg/L). Les concentrations retrouvées dans les lixiviats sont ramenées au volume de lixiviat produit et à la masse totale stockée (déchets + mâchefers) ; la part d'éléments métalliques apportés par le lixiviat lors de l'étape de saturation / désaturation a également été prise en considération.

La répartition du cuivre et du nickel au cours de l'enfouissement des déchets dépendent essentiellement des phases de dégradation mais également de la présence de substances organiques et minérales libérées dans le lixiviat. Il est ainsi possible de relier la mobilisation du cuivre aux conditions physicochimiques du milieu et au type de molécules organiques présentes. En effet, selon leur mobilité, leur poids moléculaire apparent, leur polarité ou leur aromaticité, les interactions du cuivre avec la matière organique influent sur sa capacité de relargage. Au cours des 6 premiers mois d'enfouissement la présence de molécules organiques faiblement humifiées de type acides fulviques favorise la mobilisation du cuivre (Bozkurt *et al.*, 1999).

Les conditions de pH acide et de haut potentiel redox des premières phases de dégradation (0 - 6 mois) sont favorables à une libération importante de cuivre et de nickel pour l'ensemble des modalités testées ; les métaux sont effectivement très solubles en milieu acide. L'étape de saturation / désaturation, quel que soit le moment où elle est réalisée (au départ ou à 6 mois) permet de lessiver une quantité importante de cuivre et de nickel. L'effet de flushing observé pour les espèces organiques et minérales s'applique donc aussi aux éléments métalliques. Le lessivage des différentes espèces notamment des AGV a engendré une modification des conditions du milieu perceptible au travers d'une augmentation du pH et d'une baisse significative du potentiel redox qui entraîne une solubilisation plus difficile des espèces métalliques. Dès lors, la quantité de cuivre et de nickel libérée ne cesse de diminuer jusqu'à atteindre une valeur inférieure à la limite de détection (2 µg/L). De plus, l'humification de la matière organique au cours de l'enfouissement et donc l'augmentation de la taille des molécules organiques favorise la complexation avec le cuivre. De part leur taille, ces complexes ne peuvent vraisemblablement pas se retrouver dans la fraction inférieure à 0,45 µm qui a été prise en considération (Lagier *et al.*, 2001).

L'ajout de mâchefers influe peu sur la cinétique de mobilisation des espèces métalliques mais modifie les quantités libérées (B\_1 et B\_2 versus C ; B\*\_1 versus C\*). Ainsi, l'ajout d'un composé contenant une proportion non négligeable de métaux (Tableau LXII) augmente significativement la quantité de cuivre et de nickel relarguée. Toutefois, il convient de noter que l'ajout de mâchefers ne confère pas au mélange une réserve de métal supérieure à celle du déchet seul (Tableau LXII).

Tableau LXIII : Gamme de valeurs de la teneur en cuivre des lixiviats.

Paramètres			Configuration 1			Configuration 2			
			C	B_1	B_2	C*	B*_1		
Durée de suivi des pilotes		mois	28	24	24	20	20		
<b>Cu</b>	Capacité initiale du déchet		g/kgMStot	2,77	2,49	2,50	2,77	2,50	
	Lixiviat	saturation / désaturation initiale					131,0	225,7	
		concentration mesurée : 1 - 6 mois		µg/kgMStot	8,6 - 29,2	5,7 - 31,3	7,1 - 36,9	7,9 - 2,3	19,8 - 4,1
		saturation / désaturation à 6 mois			211,2	243,2	259,3		
		concentration mesurée : 6 mois - fin			22,6 - < LD	28,3 - < LD	35,7 - < LD	3,2 - < LD	8,5 - < LD
		CUMUL TOTAL		mg/kgMStot	120	132	168	134	149
	%Cu évacué			<b>4,3 %</b>	<b>5,3 %</b>	<b>6,7 %</b>	<b>4,8 %</b>	<b>6,0 %</b>	
<b>Ni</b>	Capacité initiale du déchet		g/kgMStot	0,124	0,112	0,113	0,124	0,113	
	Lixiviat	saturation / désaturation initiale					209,4	258,1	
		concentration mesurée : 1 - 6 mois		µg/kgMStot	40,8 - 91,4	30,3 - 66,5	36,9 - 73,1	40,5 - 4,2	51,8 - 5,1
		saturation / désaturation à 6 mois			139,6	167,4	222,1		
		concentration mesurée : 6 mois - fin			80,2 - < LD	61,2 - < LD	67,4 - < LD	2,6 - < LD	3,4 - < LD
		CUMUL TOTAL		mg/kgMStot	18,0	17,7	26,0	18,3	17,6
	%Ni évacué			<b>14,5 %</b>	<b>15,8 %</b>	<b>23,1 %</b>	<b>14,8 %</b>	<b>15,6 %</b>	

LD : Cu = 2 µg/L ; Ni = 2 µg/L

La légère modification des conditions physicochimiques du milieu et notamment de l'humidité du massif de déchet lors de l'ajout de mâchefers semble donc permettre une libération plus importante d'éléments métalliques. En outre, malgré une proportion de cuivre et de nickel plus importante dans le mâchefer de type A (pour B\_1 et B\*\_1) que dans le mâchefer de type B (pour B\_2), le mélange B\_2 libère une quantité plus importante de métal que le mélange B\_1 (ou B\*\_1). Cette observation est cohérente avec une capacité de relargage plus grande pour le mâchefer de type B que pour le type A (Partie II - II.2.3).

En négligeant quelque peu l'hétérogénéité du système et en considérant la proportion théorique de métaux présents dans le déchet initial et dans les mâchefers, il est possible d'estimer la part lessivée au cours de l'exploitation des casiers (Tableau LXIII). Ainsi, pour l'ensemble des modalités testées, le pourcentage de cuivre relargué dans le lixiviat même s'il est relativement faible (< 7 %) et qu'il reste est en accord avec les proportions mentionnées dans la littérature reste important (Baccini *et al.*, 1987 ; François, 2004). En effet, la majorité des espèces métalliques et principalement le cuivre, le plomb, le fer, le zinc et le cadmium restent piégés au sein du massif de déchets (Mårtensson *et al.*, 1999). Le nickel quant à lui présente une capacité de lixiviation plus importante malgré une teneur initiale plus faible dans le déchet initial ou dans le mélange déchet + mâchefers (entre 14,5 et 23,1 %). Les conditions d'exploitation en pilote ont donc favorisées la mobilisation des espèces métalliques.

## II.10. Bilan comparatif des modalités de prétraitement

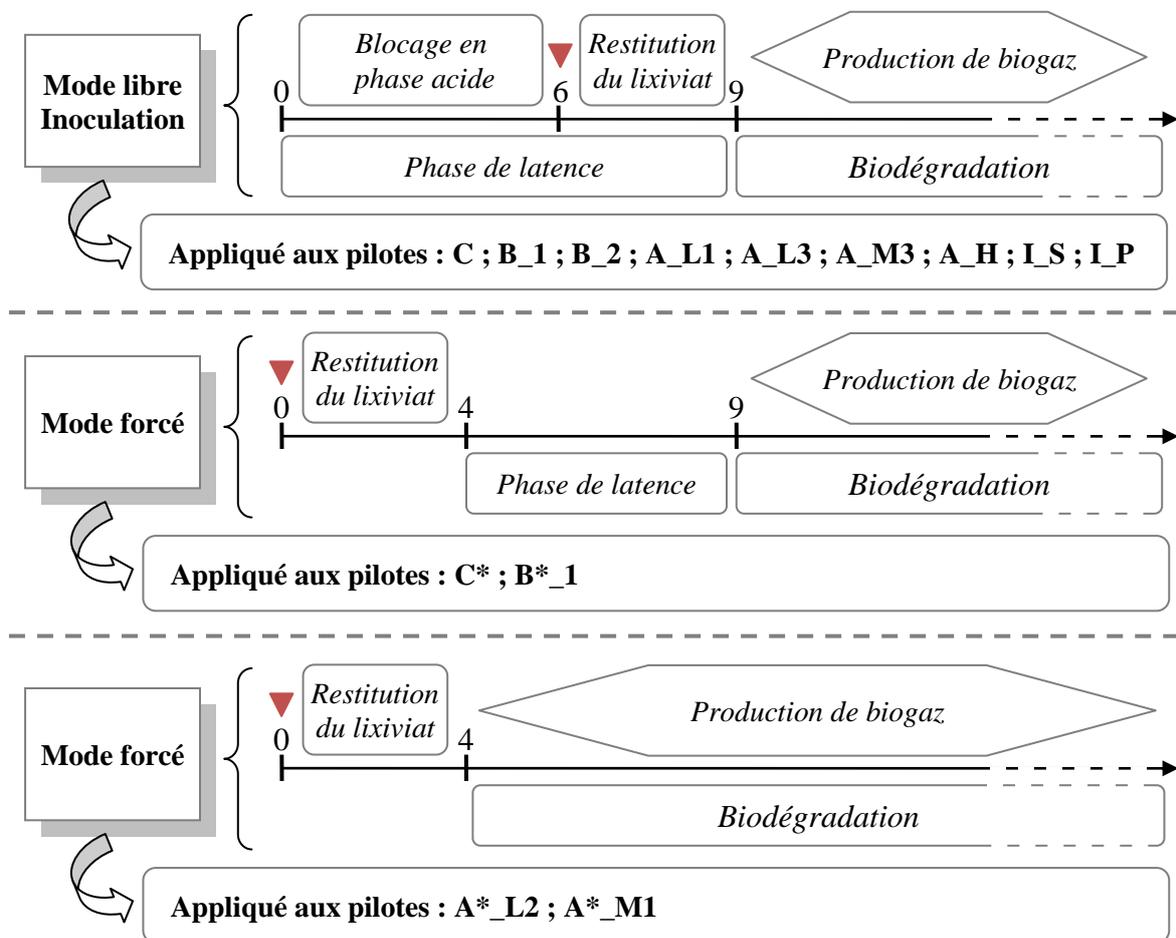
La démarche initialement définie (Figure 20) a été appliquée à l'ensemble des pilotes suivis. Les bilans proposés ont été réalisés à la fin de l'exploitation des pilotes. Toutefois, il convient de noter que la durée d'exploitation diffère selon la modalité car elle est déterminée par l'état de stabilisation de la production de biogaz. Elle est similaire pour la majorité des pilotes (environ 24 mois) à l'exception des modalités A\*\_L2 et A\*\_M1 pour lesquelles la cinétique de production de biogaz a été la plus forte ; la stabilisation a donc été plus rapide (15 mois). Le pilote témoin (C) dont la dégradation est très en retard par rapport aux autres modalités est encore en exploitation après 28 mois de suivi ; il présente une cinétique de production de biogaz encore loin de la stabilisation tout comme les pilotes C\* et B\*\_1 qui après 20 mois de suivi n'ont pas atteint un niveau de stabilisation (Figure 61).

### II.10.1. Comportement en conditions de stockage

Le suivi des 17 pilotes et leur gestion selon 2 modes de fonctionnement distincts ont permis de mettre en évidence différents comportements liés à la modalité de prétraitement mais également au mode de gestion. Ces différents comportements des déchets en conditions d'enfouissement et leurs applications aux modalités de prétraitement ont été schématisés sur la Figure 33.

Le stockage des déchets en mode libre n'a pas généré de réel démarrage de la biodégradation après 6 mois d'enfouissement et ce malgré des conditions de gestion (température, simulation de pluie...) analogues à ce qui se passe sur site. L'absence de microorganismes ciblés comme acteurs de la biodégradation en conditions anaérobies n'explique pas ce retard de biodégradation puisque la dégradation des modalités d'inoculation (I\_S et I\_P) n'a également pas eu lieu dans ce même laps de temps. Le blocage en phase acide observé lors du suivi de ces pilotes a pu être corrélé avec des conditions d'humidité insuffisantes qui n'ont pas permis de lixivier les espèces inhibitrices générées par le déchet. La mise en place d'une étape de saturation / désaturation au 6<sup>ème</sup> mois ayant engendré un fort lessivage des espèces inhibitrices, la biodégradation du déchet matérialisée au travers de la production de biogaz a débuté. Toutefois, une nouvelle période de latence correspondant au temps nécessaire au déchet pour restituer la totalité du lixiviat de saturation a été observée soit environ 3 mois. En outre, l'impact de la modalité de prétraitement est apparu comme relativement difficile à déterminer au niveau de l'évolution des composés relargués dans le lixiviat du fait du fort lessivage

des espèces au cours de l'étape de saturation / désaturation. La comparaison des cinétiques de production de biogaz des différentes modalités permet néanmoins de mettre en avant l'effet positif de l'ajout de mâchefers, quelle que soit leur nature, (B\_1 et B\_2) ainsi que l'inoculation par des boues de STEP (I\_S).



▼ étape de saturation / désaturation

Figure 71 : Schématisation du comportement des déchets en conditions d'enfouissement.

L'application d'une étape de saturation / désaturation dès l'incorporation des déchets dans le pilote modifie significativement ce comportement. Ainsi, un fort lessivage des espèces se produit initialement, elles sont donc moins susceptibles de créer un blocage du système. Toutefois, le démarrage de la production de biogaz et donc de la biodégradation du déchet ne s'effectue qu'au 9<sup>ème</sup> mois indiquant une phase de latence similaire à celle observée pour les pilotes saturés / désaturés en cours d'enfouissement. Les modalités A\*\_L2 et A\*\_M1 ayant également eu une procédure de saturation / désaturation au départ ainsi qu'un prétraitement aérobique avant enfouissement de niveau bas (< 10 %) et de niveau moyen (entre 10 et 20 %), présentent un comportement légèrement différent des modalités C\* et B\*\_1. En effet, la phase de latence est beaucoup plus courte pour ces 2 modalités puisque le démarrage de la production de biogaz s'effectue plus rapidement et que la stabilisation des paramètres mesurés dans les lixiviats émis a lieu dès le 4<sup>ème</sup> mois. Pour ces 2 modalités, la phase de latence semble donc être réduite à la phase de restitution du lixiviat (0 - 4 mois). Une modalité de prétraitement biologique aérobique avant stockage apparaît donc comme tout à fait positive sur la cinétique de biodégradation du déchet en conditions d'enfouissement.

La comparaison des différentes modalités de prétraitement avec le témoin correspondant au mode de gestion considéré met en avant un impact du prétraitement sensiblement plus important en mode libre qu'en mode forcé. Toutefois, il est nécessaire de nuancer cette observation avec le fait que le témoin en mode libre (C) présente une cinétique de dégradation relativement lente par rapport à ce qui est généralement mentionné dans la littérature.

## II.10.2. Flux de biogaz et de lixiviat émis

La comparaison des différentes modalités de traitement s'effectue également au travers des flux totaux d'émission de lixiviat (Tableau LXIV) et de biogaz (Tableau LXV) tout au long du procédé de traitement. Les flux proposés sont ramenés à 1 kilogramme de matière sèche entrant dans la filière de traitement, c'est-à-dire avant tout prétraitement ou ajout correspondant à une modalité particulière. Les flux de production de lixiviat présentés dans le Tableau LXV tiennent compte de la quantité évacuée lors de l'étape de saturation / désaturation.

Le processus de lixiviation est régi par deux principaux paramètres qui sont, d'une part, la stabilité de la matière organique contenue dans le déchet qui joue un rôle important dans la mobilisation des différents composés et, d'autre part, la quantité d'eau qui transite au travers du déchet et qui joue le rôle de vecteur du lessivage des déchets.

Tableau LXIV : Flux de production de lixiviat.

Paramètres	Durée mois	DCO	dont DCO	AGV	dont AGV	Ntot	dont Ntot	
		totale	perdu <sup>1</sup>	totaux	perdu <sup>1</sup>	totale	perdu <sup>1</sup>	
		gO <sub>2</sub> /kgMS		gCH <sub>3</sub> COOH/kgMS		gN/kgMS		
Mode Libre	C	28	115	44	25	9	3,3	- 0,7
	B_1	24	79	27	15	10	2,1	0
	B_2	24	76	31	19	9	2,0	- 0,3
	A_L1	22	91	32	19	8	3,2	- 0,2
	A_L3	20	118	40	23	5	3,8	- 0,6
	A_M3	19	129	35	30	8	4,5	- 0,4
	A_H	19	95	24	21	4	3,7	- 0,2
Inoculation	I_S	23	125	92	19	11	4,7	2,2
	I_P	24	89	25	16	7	2,6	0,3
Mode Forcé	C*	20	71	11	17	3	3,0	- 0,7
	B*_1	20	70	14	20	4	3,2	- 0,9
	A*_L2	15	45	24	9	5	3,2	- 0,6
	A*_M1	15	21	6	5	0,5	3,0	- 0,3

<sup>1</sup> perte au cours de l'étape de saturation / désaturation

Au cours de la filière complète de traitement (prétraitement + enfouissement), du lixiviat n'a été produit qu'au moment de l'enfouissement du fait du procédé de prétraitement aérobique utilisé qui ne génère pas de lixiviat. Une quantité importante de polluants de type organique et minéral a ainsi été libérée et peut être, dans un premier temps, reliée à la granulométrie du déchet étudié. En effet, le broyage permet un meilleur contact entre les microorganismes, les nutriments et la matière organique du fait de l'augmentation de la surface spécifique des déchets et donc facilite le processus de lixiviation des espèces (Barlaz *et al.*, 1990). L'hydrolyse des macromolécules organiques est facilitée augmentant ainsi la biodisponibilité de la matière organique.

La durée d'exploitation varie en fonction du temps nécessaire pour atteindre un état stabilisé de la production de biogaz. Par conséquent, la quantité de lixiviat produite et donc sa composition diffère selon les modalités. Néanmoins, il apparaît lors du suivi des lixiviats que la majorité des composés organiques et minéraux sont émis au cours des premiers mois d'enfouissement (Partie III - II.6), la durée d'enfouissement a donc peu d'impact sur la quantité totale émise. Cette libération massive de composés au cours des premiers mois s'effectue principalement lors de l'étape de saturation / désaturation avec toutefois une proportion plus importante de composés libérés lorsque la saturation / désaturation s'effectue au bout de 6 mois. Les premières phases d'hydrolyse et d'acidogenèse ayant eu lieu ont ainsi permis de dégrader la matière organique initialement présente dans le déchet la rendant facilement mobilisable par lessivage lors de la saturation / désaturation. Au contraire, au niveau des espèces azotées, une rétention de l'azote est observée lors de la désaturation. En effet, l'azote est un composé bien souvent peu ou pas dégradé en anaérobiose ; les déchets excavés et soumis à un test de lixiviation mobilisent encore beaucoup d'azote. Ainsi, pour une même modalité, les quantités émises lorsque la saturation / désaturation a lieu au cours de l'enfouissement sont plus importantes qu'en mode forcé (saturation / désaturation au départ).

L'ajout d'inoculum (I\_S ou I\_P) semble fortement favoriser la libération de composés organiques mais également azotés lors de l'étape de saturation / désaturation, notamment dans le cas de l'ajout de boues de STEP qui contiennent initialement une quantité importante d'azote (2,2 gN/L) et de matière organique (19,7 gO<sub>2</sub>/L). La forte mobilisation d'azote lors de la désaturation peut donc provenir non pas de l'azote du déchet mais de l'azote apportée par les boues de STEP. En effet, l'azote contenu dans une boue est facilement lessivable.

Pour les modalités contenant des mâchefers (B\_1, B\_2 et B\*\_1), l'émission de composés organiques est plus faible que pour la modalité témoin correspondante (C ou C\*). Cette observation est cohérente avec le principe d'un ajout de composés faiblement chargés en matière organique et peu lessivables. En effet, en 24 heures de contact les mâchefers libèrent 1,6 à 3,5 gO<sub>2</sub>/kgMS selon le type considéré (A ou B) contre 37,5 gO<sub>2</sub>/kgMS pour le déchet seul. Selon le même principe, certaines espèces minérales fortement présentes dans les mâchefers se retrouvent en quantité significative dans les lixiviats issus des pilotes contenant des mâchefers. Cette observation est en accord avec leur capacité de relargage estimée dans une solution non saturée. Ainsi, le calcium et les sulfates sont mobilisables respectivement à hauteur de 3,0 à 8,7 et 2,9 à 12,4 g/kgMS selon le type de mâchefer (A ou B). De plus, selon le mode de fonctionnement (configuration 1 ou configuration 2), les différences observées ne sont pas significatives car les pilotes émettent des quantités similaires de polluants tant de type organique que minéral. La modalité B\*\_1 présente toutefois une quantité plus importante d'AGV évacués au cours de la dégradation qui peut être mise en relation avec un meilleur démarrage de la biodégradation (ratio CH<sub>4</sub>/CO<sub>2</sub> rapidement plus élevé) par rapport aux autres modalités (Figure 61).

Pour les modalités dont le déchet a subi un prétraitement aérobique avant enfouissement (A\_L1, A\_L3, A\_M3, A\_H, A\*\_L2 et A\*\_M1), les émissions de polluants par lixiviation ne semblent pas pouvoir être reliées au niveau du prétraitement appliqué. En effet, pour les modalités gérées selon la configuration 1 (saturation / désaturation au 6ème mois), l'augmentation du niveau de prétraitement engendre une augmentation de la quantité de polluants organiques et minéraux libérés. Le déchet de haut niveau de prétraitement (A\_H) fait exception à cette observation ; les quantités évacuées sont de l'ordre d'un niveau de prétraitement faible (A\_L1 ou A\_L3). En modifiant les conditions physicochimiques du milieu (pH acide, potentiel redox élevé...), le blocage en phase d'acidogenèse au cours des premiers mois de dégradation a donc vraisemblablement modifié la disponibilité et l'aptitude à être lixiviés des composés organiques. Une hiérarchisation franche des modalités de traitement par prétraitement aérobique ne peut donc pas être établie par simple comparaison des flux de polluants émis par lixiviation. Néanmoins, le comportement des 2 modalités de prétraitement aérobiques ayant fonctionnées selon la configuration 2 (saturation / désaturation au départ) est totalement différent. Il fait apparaître une diminution significative de tous les flux de polluants émis avec l'augmentation du niveau du prétraitement. En effet, une partie du substrat carboné initialement présent est convertie en CO<sub>2</sub> au cours de l'étape de dégradation aérobique. Cette

conversion est proportionnelle au niveau du prétraitement et donc à la quantité de composés organiques restants dans le déchet et susceptibles d'être lixivées.

Le comportement des différentes modalités de traitement et donc leurs impacts sur la dégradation des déchets peuvent également être appréhendés au travers de la quantité totale de biogaz produit ainsi que de sa composition (Tableau LXV). La quantité de biogaz présentée correspond à la somme du CH<sub>4</sub> et du CO<sub>2</sub> produits.

Le potentiel de CH<sub>4</sub> perdu lors de l'étape de saturation / désaturation n'est pas pris en compte dans le calcul de la quantité totale de biogaz du fait que son estimation n'est que purement théorique ; il est toutefois indiqué à titre comparatif. Quelle que soit la modalité considérée, le potentiel de CH<sub>4</sub> perdu lors de l'étape de saturation / désaturation est beaucoup moins important lorsque cette étape a lieu dès l'enfouissement, 2 à 8 NLCH<sub>4</sub>/kgMS contre 8 à 15 NLCH<sub>4</sub>/kgMS pour une saturation / désaturation après 6 mois de stockage. Au démarrage, seules les molécules facilement mobilisables de type HPI\* peuvent être lessivées alors qu'après quelques mois d'enfouissement la dégradation a déjà eu lieu, et même si elle s'est effectuée dans des conditions peu optimales, elle a permis d'hydrolyser une quantité importante de composés organiques facilement lessivables.

La stabilisation de la production de biogaz ayant été prise comme critère d'arrêt des pilotes, la durée d'exploitation n'est pas considérée comme influente dans l'estimation de la quantité produite mais donne une indication sur l'impact des modalités de traitement sur la production de biogaz. Ainsi, à l'exception des modalités encore en cours d'exploitation (C, C\* et B\*\_1), la durée moyenne de stockage est de l'ordre de 15 - 24 mois. La mise en place d'un prétraitement aérobie avant enfouissement permet de réduire la durée de production de biogaz, cette durée tendant même à diminuer avec l'augmentation du niveau du prétraitement. Les autres modalités de traitement, ajout de mâchefers ou inoculation, engendrent également une production de biogaz sur un temps plus court (24 mois) par rapport à la modalité témoin correspondante (plus de 28 mois). Cette faible différence peut être considérée comme significative compte tenu de l'échelle expérimentale considérée (pilote 68 L).

Même s'ils produisent encore du biogaz, les 2 pilotes témoin (C et C\*) présentent un comportement significativement différent pouvant être relié à leur mode de fonctionnement. Cette différence de comportement est essentiellement liée au blocage en phase acide, lors des premiers mois de dégradation pour le pilote C, qui a induit un retard important dans la dégradation matérialisable au travers d'une cinétique de production de biogaz relativement lente par rapport au témoin géré selon la configuration 2 (C\*) mais également par rapport à toutes les autres modalités. Après 28 mois de suivi, sa production de biogaz est 1,7 fois inférieure au témoin C\* avec 2,7 fois moins de CH<sub>4</sub> produit alors que C\* n'est en exploitation que depuis 20 mois. L'enfouissement d'un déchet reconstitué selon une gestion conventionnelle permet donc d'abattre seulement 17 et 45 % du potentiel BMP suivant la configuration 1 ou 2.

L'ajout de mâchefers (B\_1 et B\_2) ou d'inoculum (I\_S et I\_P) permet de générer une quantité beaucoup plus importante de biogaz (2,2 à 2,6 fois plus important que pour C selon la modalité) et dont la proportion de CH<sub>4</sub> est également supérieure (environ 46 % contre 40 % pour C). Le potentiel BMP estimé a été atteint à une hauteur plus importante, de 47 % à 56 %. Il convient de noter que dans le cas de la modalité d'inoculation par ajouts de boues de STEP (I\_S), une quantité non négligeable de CH<sub>4</sub> a été perdue lors de l'étape de saturation / désaturation (32 NLCH<sub>4</sub>/kgMS) modifiant ainsi de 50 à 73 % la proportion du BMP initial dégradé. Lorsqu'elle est gérée selon la configuration 2 (saturation / désaturation au départ), la modalité contenant des mâchefers de type A (B\*\_1) présente également une aptitude particulière à produire une quantité plus importante de biogaz (132 NLCH<sub>4</sub>/kgMS contre 112 NLCH<sub>4</sub>/kgMS pour le témoin C\*) avec une cinétique de production plus élevée.

Tableau LXV : Flux de production de biogaz.

Paramètres		Durée mois	Biogaz total NL/kgMS	CH <sub>4</sub> total NLCH <sub>4</sub> /kgMS	CH <sub>4</sub> perdu désaturation NLCH <sub>4</sub> /kgMS	CO <sub>2</sub> total		% BMP entrant <sup>1</sup>		% BMP enfoui <sup>2</sup>	
						NLCO <sub>2</sub> /kgMS	% prétraitement	% produit	% total <sup>3</sup>	% produit	% total <sup>4</sup>
Mode Libre	C	28	65	24	15	41		17	28		
	B_1	24	168	79	9	89		56	62		
	B_2	24	151	69	11	83		48	56		
	A_L1	22	168	66	11	102	26	46	54	50	58
	A_L3	20	150	48	14	102	44	33	43	38	50
	A_M3	19	164	26	12	138	72	18	27	31	45
	A_H	19	209	19	8	190	87	14	19	28	40
Inoculation	I_S	23	171	71	32	100		50	73		
	I_P	24	143	66	9	77		47	53		
Mode Forcé	C*	20	112	64	4	48		45	48		
	B*_1	20	132	68	5	64		48	51		
	A*_L2	15	186	80	8	106	34	56	62	58	64
	A*_M1	15	195	63	2	132	57	45	46	60	62

<sup>1</sup> proportion de CH<sub>4</sub> produit par rapport au BMP du déchet initial<sup>2</sup> proportion de CH<sub>4</sub> produit par rapport au BMP du déchet prétraité<sup>3</sup> proportion du CH<sub>4</sub> total (produit + perte par désaturation) par rapport au BMP du déchet initial<sup>4</sup> proportion du CH<sub>4</sub> total (produit + perte par désaturation) par rapport au BMP du déchet prétraité

Un impact positif de l'ajout de mâchefers sur les mécanismes anaérobies de dégradation des déchets est donc observé conformément à ce qui est généralement mentionné dans la littérature (Fang *et al.*, 1998 ; Lo *et al.*, 2009). Cet effet peut être lié à l'alcalinité du milieu conférée par la présence de mâchefers qui influe sur l'activité enzymatique des microorganismes présents permettant de rentrer plus rapidement en phase de méthanogenèse (Boni *et al.*, 2007). Toutefois, même si le suivi rigoureux des lixiviats a mis en évidence de légères différences d'alcalinité pour les modalités contenant des mâchefers, d'autres hypothèses peuvent être développées. Ainsi, la porosité du mâchefer et donc son importante surface spécifique pourrait favoriser le développement de clusters microbiens à sa surface (Muller et Rubner, 2006). Au sein de cet espace privilégié, les microorganismes seraient donc protégés des conditions souvent acides du milieu (Boulanger *et al.*, 2009a).

Les modalités témoin n'étant pas encore stabilisées, il est difficile de comparer la production de biogaz des pilotes contenant des déchets ayant subi un prétraitement aérobie avant enfouissement car deux comportements se distinguent selon le niveau du prétraitement aérobie. Ainsi, à l'instant t de ce bilan, il semblerait que les modalités de faible prétraitement aérobie (A\_L1, A\_L3 et A\*\_L2) engendrent lors de l'enfouissement une quantité de biogaz supérieure à celle de la modalité témoin correspondante (C ou C\*) ; respectivement 141 et 105 NLCH<sub>4</sub>/kgMS pour A\_L1 et A\_L3 contre 65 NLCH<sub>4</sub>/kgMS pour C et 150 NLCH<sub>4</sub>/kgMS pour A\*\_L2 contre 112 NLCH<sub>4</sub>/kgMS pour C\*. Le biogaz généré est également plus riche en CH<sub>4</sub> (46 à 53 % selon les modalités contre 40 à 43 % pour C et C\*). L'augmentation du niveau du prétraitement aérobie, c'est-à-dire du taux d'abattement en carbone, induit une quantité de biogaz de moins en moins importante et de moins en moins riche en méthane. Néanmoins, pour toutes les modalités de prétraitement aérobie, la proportion du potentiel BMP atteinte est presque toujours supérieure à celle du témoin (sauf pour A\_H).

Ces différentes observations sont en accord avec l'objectif de stabilisation des déchets au cours du prétraitement dans le but de réduire significativement la production de biogaz. L'étape de prétraitement aérobie a en effet donné lieu à une émission gazeuse importante sous forme de CO<sub>2</sub> du fait de la conversion du carbone organique initialement présent dans le déchet et qui n'est donc plus disponible pour être dégradé en conditions anaérobies.

L'ensemble de ces conclusions demandent toutefois à être revalidées lorsque la production de biogaz des modalités témoins (C et C\*) aura atteint un état stabilisé.

### II.10.3. Bilan massique et hydrique du procédé de traitement

Au cours des phases de prétraitement aérobie et de stockage, les quantités de solide et de liquide (eau et lixiviat) entrant et sortant ont été mesurées afin de réaliser les bilans hydrique et massique présentés dans le Tableau LXVI. La durée de stockage étant différente pour tous les pilotes, les valeurs proposées en tiennent compte et sont exprimées pour une durée d'1 mois.

Rapportés à la quantité d'eau ajoutée, les déchets inoculés par des boues de STEP (I\_S) ou des bouses de vaches (I\_P) tendent à retenir légèrement plus le liquide injecté et ce malgré un apport d'humidité supplémentaire lors de l'ajout de ces inoculum respectivement de 0,08 et 0,52 L/kgMStot pour I\_S et I\_P. Cette différence de comportement par rapport à la modalité témoin (C) peu être mise en relation avec une forte production de biogaz qui a tendance à augmenter la température au sein du massif de déchet et donc à l'assécher ; aucune mesure de la température ni de la teneur en eau du biogaz n'ont toutefois été réalisées.

Au contraire, la production de lixiviat est plus grande pour les déchets ayant subi un prétraitement aérobie avant enfouissement ; plus le niveau du prétraitement est élevé et plus le déchet génère de lixiviat. Ces observations sont en accord avec la composition du déchet suite à l'étape de prétraitement aérobie et avec la production de biogaz au cours du stockage. Ainsi, la dégradation des composés organiques sous forme de CO<sub>2</sub> au cours du prétraitement tend à faire diminuer la proportion de composés biodégradables hydrophiles et la plus faible production de biogaz au cours du stockage assèche moins le déchet

Tableau LXVI : Bilan hydrique et massique.

Paramètres		Prétraitement	Stockage					
		Perte de masse	Durée d'enfouissement	Teneur en eau initiale	Liquide ajouté (eau + lixiviat)	Lixiviat évacué	Teneur en eau finale	Perte de masse
		%MS	(mois)	%	L/kgMStot/mois	L/kgMStot/mois	%	%MS
Mode Libre	C		28	48,9	0,15	0,15	<i>en cours</i>	
	B_1		24	45,8	0,12	0,13	52,0	35
	B_2		24	45,4	0,12	0,12	53,9	41
	A_L1	5	22	46,8	0,17	0,17	51,0	24
	A_L3	10	20	53,7	0,21	0,21	53,6	12
	A_M3	24	19	54,3	0,24	0,24	55,0	12
	A_H	48	19	46,6	0,18	0,19	48,0	16
Inoculation	I_S		23	45,6	0,15	0,14	55,7	35
	I_P		24	45,1	0,13	0,12	55,0	39
Mode Forcé	C*		20	54,2	0,15	0,16	<i>en cours</i>	
	B*_1		20	53,3	0,13	0,15	<i>en cours</i>	
	A*_L2	8	15	56,8	0,16	0,18	54,7	8
	A*_M1	17	15	55,9	0,17	0,20	54,2	8

Les modalités d'ajout de mâchefers et ce quelle que soit leur origine (B\_1 ou B\_2) présentent une forte production de lixiviat malgré une production de biogaz importante du fait de la présence de mâchefers à hauteur de 12 % qui ne stockent pas l'eau injectée.

L'excavation des déchets a révélé une augmentation de la teneur en eau du déchet pour les modalités dont l'humidité initiale était inférieure à 50 % alors qu'elle reste quasiment stable lorsqu'elle était initialement fixée à une valeur de l'ordre de 55 %. La matrice considérée (déchet reconstitué) semble donc présenter un optimum d'humidité assimilable à sa capacité maximale de rétention de l'ordre de 55 %. De plus, cette valeur est cohérente avec les conditions optimales de dégradation mentionnées dans la littérature (Reinhart *et al.*, 2002 ; Gachet, 2005).

L'évaluation de la perte de masse ayant eu lieu au cours de l'enfouissement permet également d'appréhender le taux de dégradation de la matière enfouie. Les modalités témoin (C et C\*) étant encore en cours d'exploitation, il est difficile de comparer l'impact des différents prétraitements par rapport à une référence. Ainsi, l'ajout de mâchefers (B\_1 et B\_2) ou d'inoculum (I\_S et I\_P), quelle que soit leur nature, induit une perte de masse sensiblement similaire et de l'ordre de 35 - 40 %. Au contraire, la perte de masse lors de l'enfouissement est plus faible (8 à 24 %) lorsque le déchet a été prétraité au préalable ce qui est cohérent du fait d'une perte de masse déjà significative (5 à 48 %) au cours du traitement aérobic. Au cours de l'enfouissement, une corrélation entre perte de masse et niveau de prétraitement c'est-à-dire taux d'abatement en carbone ne semble pas pouvoir être émise. Toutefois, il apparaît que la perte de masse totale du procédé de traitement (prétraitement + enfouissement) augmente avec le niveau du prétraitement, ce qui est en accord avec les flux de biogaz et la quantité de lixiviats générés qui sont plus importants lorsque le déchet est fortement prétraité (niveau haut).

## II.11. Etude approfondie des modalités les plus performantes

Le suivi du biogaz produit, de la composition des lixiviats générés, ainsi que les bilans massiques et hydriques de l'ensemble des pilotes ont permis de mettre en avant l'effet de certaines modalités au détriment d'autres moins performantes. Ainsi, la mise en place d'un prétraitement aérobic avant enfouissement ou l'ajout de mâchefers mettent en avant des performances supérieures en terme de stabilisation et/ou de production de biogaz.

Une étude plus approfondie de ces modalités a donc été réalisée afin de mieux connaître l'aptitude de ces déchets à se dégrader et de confirmer les résultats précédents. Les déchets A\*\_L2 et B\_1 ont été choisis, ils correspondent respectivement à un déchet ayant subi un prétraitement aérobic de niveau bas (< 10 % de perte en carbone) et à un déchet auquel 12 % en masse sèche de mâchefers de type A ont été rajoutés. En effet, l'ajout de mâchefers de type A (B\_1) permet de produire avec une meilleure cinétique un biogaz plus riche en CH<sub>4</sub> et en quantité plus importante par rapport à une gestion conventionnelle. De même, la mise en place d'un prétraitement aérobic optimise la production de biogaz sans en augmenter significativement la quantité produite ; seule la proportion de CH<sub>4</sub> est favorisée. Même si le suivi rigoureux des différentes modalités de prétraitement aérobie a mis en avant un meilleur impact pour un prétraitement de niveau supérieur, la modalité A\*\_L2 a été choisie car elle représente un bon compromis entre dégradation optimisée des déchets enfouis et coût de l'étape de prétraitement.

### II.11.1. Lixiviation des déchets

Le protocole de lixiviation développé au cours de cette étude a été appliqué sur les déchets avant qu'ils ne soient introduit dans les pilotes : 120 heures de contact avec des analyses sur les phases liquide, solide et gazeuse toutes les 24 heures. Compte tenu des conclusions apportées lors de

l'étude du déchet témoin, aucun test BMP n'a été réalisé à la suite de la lixiviation. Toutes les données obtenues au cours de la lixiviation des déchets A\*\_L2 et B\_1 sont systématiquement comparées au déchet témoin (C) dont les données issues de la lixiviation figurent Partie III - II.3.1.

### II.11.1.1 Evolution du déchet au cours de la lixiviation

Pour l'ensemble des 3 déchets étudiés (C, A\*\_L2 et B\_1), l'immersion dans une solution non saturée donne lieu à une transformation du déchet qui se matérialise dans la phase liquide au travers de la chute du pH et de l'augmentation de la concentration en AGV au cours de la lixiviation (Figure 72). Le suivi de la composition du ciel gazeux met également en avant une biodégradation du déchet au cours de la lixiviation puisqu'il fait état d'un appauvrissement en oxygène et d'une production de CO<sub>2</sub> (Figure 72). Les conditions aérobies du test deviennent rapidement anaérobies puisque la proportion d'O<sub>2</sub> dans la phase gazeuse devient inférieure à 2 % dès 48 heures de lixiviation pour les 3 déchets. Malgré ces conditions d'anaérobiose, la teneur en CH<sub>4</sub> de la phase gazeuse reste très faible (inférieure à 1%) et ne permet pas de différencier les modalités les unes des autres.

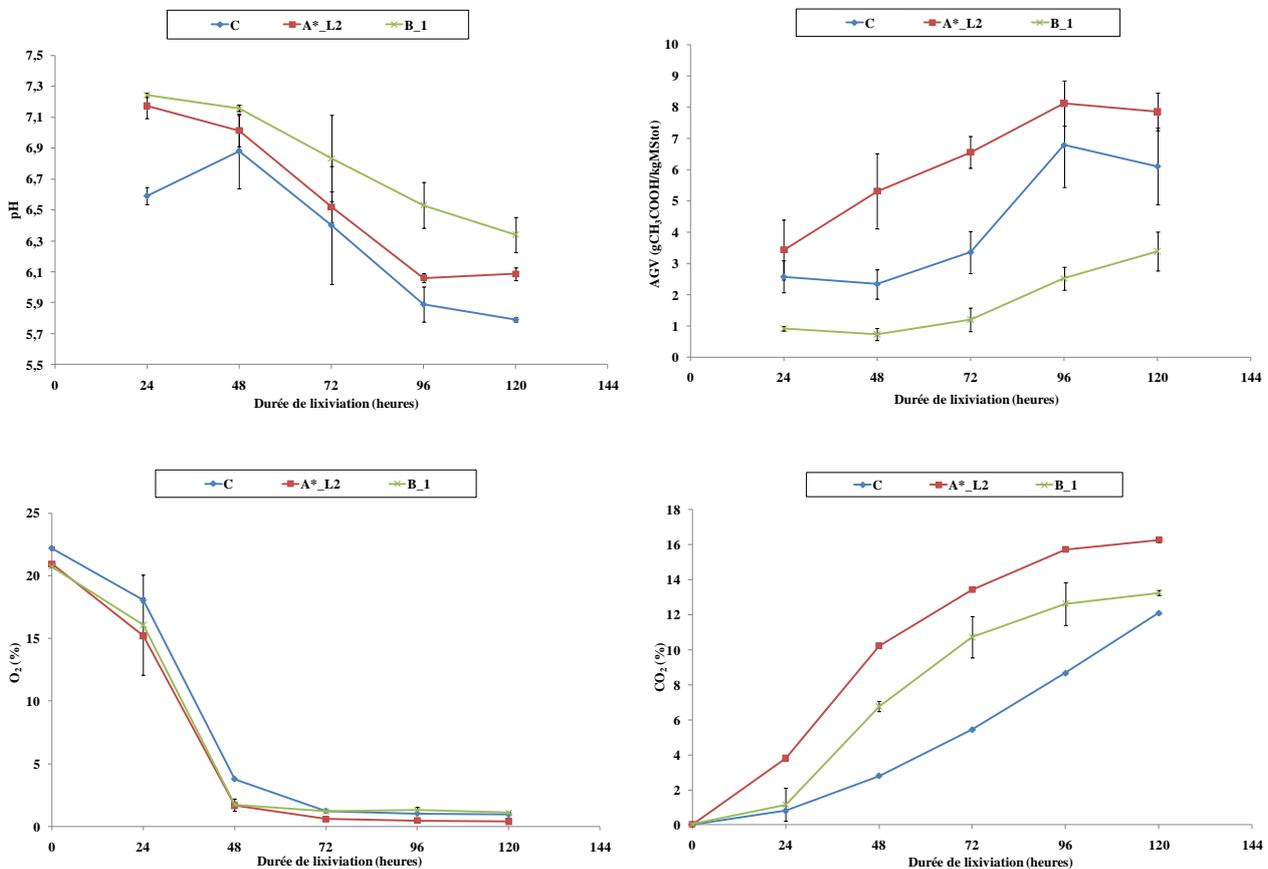


Figure 72 : Evolution du déchet au cours de la lixiviation (pH, AGV, %O<sub>2</sub> et %CO<sub>2</sub>).

Le déchet contenant des mâchefers (B\_1) génèrent une phase liquide légèrement moins acide que les autres modalités du fait que les mâchefers, de par leur composition, confèrent au milieu une alcalinité. La proportion d'AGV libérée après 24 heures de contact est également moins importante que pour les autres modalités. Toutefois, même si la proportion totale d'AGV libérés au cours des 120 heures de lixiviation reste inférieure à celle des autres modalités, la quantité produite entre 24 et 120 heures augmente de plus de 70 % alors que la hausse n'est que de 56 % pour les déchets C et A\*\_L2. La forte capacité de ce déchet à se dégrader sous forme de CO<sub>2</sub> au cours de la lixiviation corrobore cette augmentation de la concentration en AGV. En effet, la production de CO<sub>2</sub> s'effectue

dès les premiers jours de lixiviation et avec une cinétique nettement supérieure à celle d'un déchet reconstitué standard (C).

Le déchet ayant subi un prétraitement biologique aérobie avant enfouissement (A\*\_L2) libère dans la phase liquide une quantité beaucoup plus importante d'AGV que les autres modalités et dont la proportion ne cesse d'augmenter tout au long des 120 heures de lixiviation. La conversion de la matière organique du déchet en CO<sub>2</sub> est également plus importante pour ce déchet puisque la cinétique de production de CO<sub>2</sub> est beaucoup plus forte que celle du déchet témoin ou de la modalité contenant des mâchefers. L'application d'un prétraitement aérobie semble donc favoriser la mise en place de la biodégradation du déchet. En effet, ce type de prétraitement amorce la dégradation de la matière organique et la rend donc plus accessible permettant ainsi un démarrage rapide de la biodégradation.

### II.11.1.2 Mobilisation d'espèces minérales et organiques

La lixiviation des différents déchets engendre un relargage important d'espèces minérales et organiques dans la phase liquide tout au long de la lixiviation. L'évolution de ces espèces au cours de la lixiviation traduit également un état de biodégradation du déchet. En effet, la majorité des paramètres mesurés sur la phase liquide (conductivité, COD, DBO<sub>5</sub>, Eh, ions...) présente une évolution caractéristique d'une phase de dégradation du déchet au cours de la lixiviation. L'évolution des espèces minérales et organique libérées dans la phase liquide au cours de lixiviation s'exprime au travers de la proportion de composés ionique et de la DCO (Figure 73).

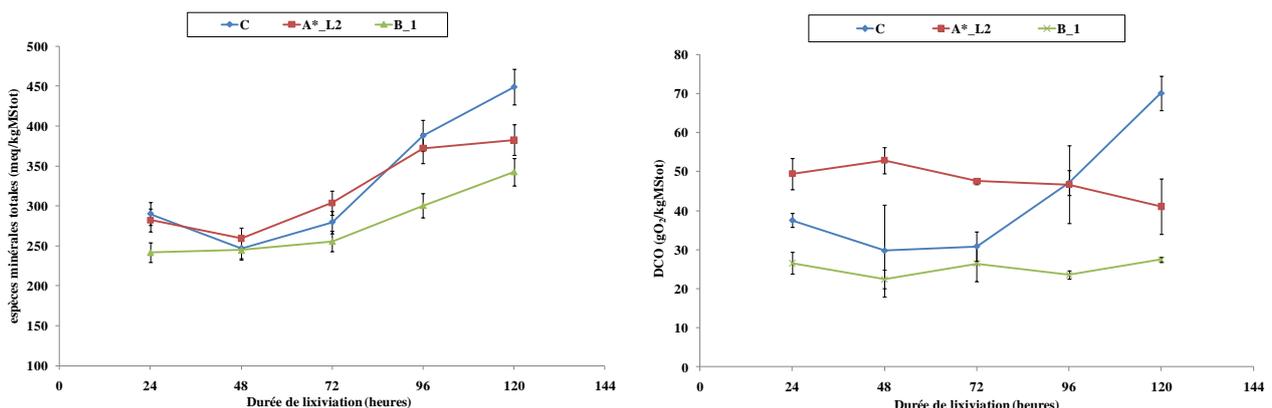


Figure 73 : Proportion d'espèces minérales et organiques relarguées au cours de la lixiviation.

Les espèces minérales sont relarguées progressivement au cours de la lixiviation du fait de la diminution du pH qui facilite la solubilisation des espèces chargées. En terme de composition de ce flux d'espèces minérales, peu de différences sont observables entre les 3 déchets testés si ce n'est une plus grande capacité à libérer des espèces minérales pour le déchet témoin (C). Connaissant la capacité du déchet et celle du mâchefer utilisé à relarguer des espèces minérales (Partie II - II.2.3), le mélange (B\_1) aurait du libérer une quantité équivalente voire supérieure à celle du déchet seul. L'écart observé est vraisemblablement lié à l'hétérogénéité des deux matrices concernées. Dans le cas du déchet prétraité (A\*\_L2), la quantité d'espèces minérales libérées par rapport au témoin est similaire du fait que le système de prétraitement aérobie utilisé ne génère pas de production de lixiviat et donc limite la perte en éléments minéraux.

La lixiviation des différents déchets testés engendre également la libération d'une forte quantité de matière organique dès les 24 premières heures de contact, signe d'un déchet frais facilement mobilisable en solution. Le déchet prétraité (A\*\_L2) semble avoir une plus grande capacité à être lixivié (19 gC/kgMStot) que les autres déchets (12 gC/kgMStot pour le témoin) car la matière organique qui le compose a été rendu plus disponible par un prétraitement de niveau faible (< 10 %

de perte en C). Au contraire le déchet contenant des mâchefers (B\_1) libère moins de matière organique au cours des premières heures de lixiviation du fait de l'ajout de mâchefers (12 %MS) qui relarguent une quantité négligeable de matière organique (0,3 gC/kgMStot) par rapport au déchet qui est donc présent en plus faible proportion dans le mélange (88 %MS).

Au cours de la lixiviation et malgré les conditions de biodégradation régnant au sein de la phase liquide, le déchet témoin (C) continue à libérer une quantité de plus en plus importante de matière organique contrairement au mélange contenant des mâchefers (B\_1) pour lequel un équilibre semble s'être instauré entre la quantité dégradée et la proportion lixiviée. En effet, la biodégradation du déchet contenant des mâchefers semble être de plus grande intensité (cinétique de production de CO<sub>2</sub> plus forte) et la teneur en substances organiques dans la phase liquide reste constante. Une tendance contraire est observée pour le déchet prétraité. Ainsi, les fortes conditions de biodégradation de ce déchet induisent une diminution de la quantité de matière organique dans la phase liquide qui ne peut être compensée par la lixiviation du déchet. En effet, il dispose d'une moins grande quantité de matière organique disponible puisque le prétraitement aérobie a déjà permis de réduire de plus de 18 % sa proportion de matière organique (Tableau LXVII).

La teneur en azote du déchet (NTK) met en avant une diminution de la quantité d'azote du déchet au cours de la lixiviation pour les déchets A\*\_L2 et B\_1 alors qu'elle tend à augmenter dans le cas du témoin. Compte tenu des incertitudes de mesures observées, il ne semble pas possible d'élaborer de conclusions en lien avec la composition de la phase liquide ou gazeuse en fin de lixiviation. En outre, l'étude de la composition du ciel gazeux ne prenait pas en compte les teneurs en NH<sub>3</sub> et NO<sub>2</sub> potentiellement émises lors de la lixiviation.

Tableau LXVII : Caractéristiques du déchet à l'état initial et après 120 heures de lixiviation.

Paramètres		C		A*_L2		B_1	
		initial	120 h	initial	120 h	initial	120 h
MO	%	63,8 ± 2,2	60,5 ± 1,2	51,9 ± 1,5	42,9 ± 2,7	56,0 ± 1,2	50,5 ± 2,2
RH	-	0,31	0,26	0,20	0,62	0,21	0,65
NTK	gN/kgMStot	8,0 ± 1,6	12,6 ± 2,4	12,0 ± 1,1	8,5 ± 3,0	6,3 ± 0,4	3,1 ± 1,2

*RH correspond au ratio AH\*s / AF\*s*

La lixiviation a ainsi généré une perte en matière organique d'environ 5, 17 et 10 % de la teneur initiale respectivement pour les déchets témoin (C), prétraités (A\*\_L2) et le mélange contenant des mâchefers (B\_1). Cette tendance est cohérente avec la proportion de CO<sub>2</sub> mesurée dans la phase gazeuse après 120 heures de lixiviation. Les caractéristiques de la matière organique restante et représentées au travers du ratio RH (AH\*s / AF\*s) font également état d'un changement dans l'état de dégradation du déchet car le ratio RH augmente après la lixiviation pour tendre vers un état de maturité plus élevé bien qu'encore très faible (ratio RH inférieur à 1). La structure des molécules organique du déchet a donc changé au cours de la lixiviation.

### II.11.1.3 Caractérisation de la matière organique extraite dans la phase liquide

Le phénomène de biodégradation du déchet ayant lieu tout au long de la lixiviation est également perceptible au travers des caractéristiques de la matière organique relarguée dans la phase liquide. Ainsi, il apparaît que la matière organique initialement relarguée du déchet témoin est légèrement plus biodégradable que celles issue des deux modalités de traitement testées. Après 24 heures de lixiviation la phase liquide présente une DBO ultime de 22 ; 21 et 12,9 mgO<sub>2</sub>/kgMStot et un ratio DBO<sub>5</sub>/DCO de 0,35 ; 0,25 et 0,35 respectivement pour les déchets C, A\*\_L2 et B\_1. Cette

observation est en accord avec la composition initiale du déchet reconstitué et avec la nature des modalités de traitement. En effet, le déchet prétraité et le mélange contenant des mâchefers se composent d'une part importante de composés non biodégradables. Les mâchefers de part leur origine ne sont effectivement pas biodégradables et l'étape de prétraitement biologique donne lieu à une concentration de substances non biodégradables telles que les plastiques ou le verre puisque la matière organique biodégradable a été transformée principalement en CO<sub>2</sub> au cours de la phase de prétraitement aérobie.

Après 120 heures de contact, la phase liquide issue de la lixiviation du déchet témoin présente une biodégradabilité inférieure à celle des autres modalités (DBO ultime et rapport DBO<sub>5</sub>/DCO plus faibles) (Tableau LXVIII).

Tableau LXVIII : Caractéristiques de la matière organique extraite après 120 heures de lixiviation.

Paramètres		C	A*_L2	B_1
DBO ultime	mgO <sub>2</sub> /kgMStot	7,0 ± 0,1	21,4 ± 0,4	12,9 ± 0,2
DBO <sub>5</sub> /DCO	-	0,06 ± 0,01	0,28 ± 0,11	0,45 ± 0,09
DCO/COD	mgO <sub>2</sub> /mgC	3,2 ± 0,4	2,4 ± 0,8	3,2 ± 0,2
SUVA	L/cm/gC	6,0 ± 0,8	10,3 ± 1,0	12,0 ± 1,2
AH*/AF*	-	0,24 ± 0,02	0,41 ± 0,01	0,68 ± 0,03
SH*	%	20,9 ± 0,6	21,0 ± 0,6	24,5 ± 0,7

*ratio AH\*/AF\* correspond à %AH\* / %HPO\**

*SH\* correspond à %AH\* + %HPO\**

La plus forte biodégradation observée pour le déchet prétraité et pour le mélange de mâchefers a donc permis d'extraire une quantité toujours plus importante de matière organique biodégradable au fur et à mesure qu'elle a été consommée. Le suivi du rapport DBO<sub>5</sub>/DCO corrobore cette hypothèse puisqu'il reste constant tout au long de la lixiviation pour A\*\_L2 et B\_1 indiquant que la biodégradabilité de la phase liquide n'évolue pas.

Le rapport DCO/COD a également peu évolué au cours de la lixiviation pour les 3 déchets testés même s'il montre un état de stabilité légèrement plus grand pour le déchet A\*\_L2 (rapport DCO/COD plus faible). Cette différence de stabilité est vraisemblablement due à l'étape de prétraitement aérobie du déchet qui en commençant la dégradation du déchet a permis à un processus d'humification de se mettre en place plus rapidement.

Le fractionnement selon le caractère hydrophobe donne également des informations sur le degré de stabilité et de biodégradabilité de la matière organique extraite (Figure 74).

Pour les trois déchets, la matière organique initialement relarguée se compose principalement de molécules peu aromatiques caractérisées par un SUVA faible (inférieur à 10 L/gC/cm) et une proportion de SH\* également faible (Tableau LXVIII). L'état d'humification des molécules extraites par lixiviation semble augmenter légèrement au cours du temps pour les déchets prétraités (A\*\_L2) et le mélange de mâchefers (B\_1) ce qui est en accord avec les observations précédentes. Ainsi, les conditions de biodégradation régnant au sein de la solution d'élution pourraient permettre la transformation des composés les plus hydrophiles (HPI\* et TPH\*) en composés plus hydrophobes (AH\* et HPO\*). Cependant, même si le déchet prétraité semble avoir une plus grande capacité à se dégrader lors de son immersion dans une solution non saturée par rapport aux autres déchets et notamment au mélange de mâchefers, aucune différence significative n'apparaît sur la répartition de la matière organique extraite. Une durée de 120 heures est en effet trop courte afin que de réels processus de transformation de la matière organique ne s'établissent.

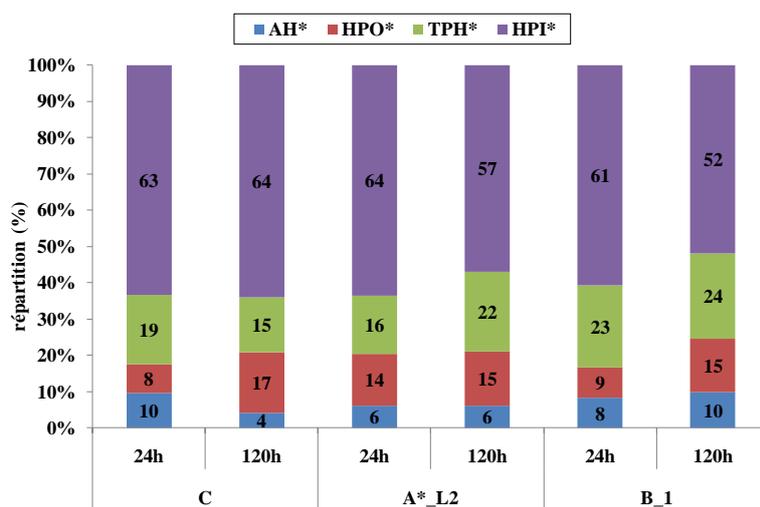


Figure 74 : Répartition de la matière organique extraite après 24 et 120 heures de lixiviation.

#### II.11.1.4 Bilan de la lixiviation

La mise en contact d'un déchet ménager reconstitué avec une solution non saturée, quelque soit la modalité de prétraitement qui lui est appliquée en amont, engendre donc un démarrage de la biodégradation. L'impact de la modalité de prétraitement sur la production de biogaz et les caractéristiques globales de la phase liquide sont en accord avec ce qui a été observé lors du suivi de ces déchets stockés en conditions d'enfouissement. En effet, si les conditions physicochimiques du milieu le permettent, l'ajout de mâchefers ou la mise en place d'une étape de prétraitement biologique aérobie avant stockage favorise la cinétique de production de biogaz.

L'ensemble des paramètres mesurés que se soit sur la phase liquide, solide ou gazeuse ont mis en évidence un démarrage rapide de la biodégradation du déchet lorsque celui-ci subit un prétraitement biologique aérobie en amont. L'effet tampon lié à l'ajout de mâchefers semble également pouvoir avoir un impact sur la dégradation des déchets en conditions d'enfouissement mais qui reste moindre.

#### II.11.2. Bilan complet du traitement du déchet A\*\_L2

La modalité de prétraitement aérobie de faible niveau ayant subi une étape de saturation / désaturation au départ (A\*\_L2) est apparue comme relativement pertinente et a donc été choisie afin de réaliser un bilan complet de la filière de traitement. Ce bilan s'effectue notamment au travers d'un bilan carbone (Tableau LXIX) ; aucune analyse de N<sub>2</sub>O et NH<sub>3</sub> dans le biogaz n'ayant été réalisée, un bilan azote n'est pas réalisable. Les pourcentages de perte présentés sont calculés par rapport à la teneur en carbone initialement présente dans le déchet considéré (entrant ou excavé). Le déchet témoin (C\*) sert de référence à chaque étape du procédé de traitement même s'il est encore en cours d'exploitation à ce jour (20 mois de suivi).

La mise en place d'un prétraitement aérobie de faible niveau avant enfouissement engendre une perte en carbone de 5,8 % intégralement évacué sous forme de CO<sub>2</sub> dans le biogaz. L'écart observé entre la teneur en carbone après prétraitement (6,4 %) et la proportion de carbone perdu par émission de CO<sub>2</sub> (5,8 %) est due aux différentes incertitudes expérimentales tout au long de la quantification de cette perte. Au moment de l'enfouissement, la quantité de carbone à dégrader est donc significativement plus faible pour A\*\_L2 par rapport à celle de C\* ; l'objectif majeur de réduction de la charge organique biodégradable avant enfouissement imposé par les nouvelles réglementations est donc respecté.

Après 20 et 15 mois de stockage en conditions simulées d'enfouissement pour C\* et A\*\_L2 et selon le même mode de gestion (configuration 2 - saturation / désaturation au départ), les émissions sous forme gazeuse sont plus importantes pour le pilote A\*\_L2 et ce malgré une réduction de la charge biodégradable sous forme de CO<sub>2</sub> au cours du prétraitement. Pour les 2 modalités, ces émissions gazeuses s'effectuent majoritairement sous forme de CH<sub>4</sub> avec toutefois une plus grande proportion pour C\*, 57 % contre 53 % pour A\*\_L2.

Tableau LXIX : Bilan carbone de la filière de traitement en matière sèche (en gC).

Paramètres		C*	A*_L2
Carbone initial (gC)		4796	4743
Prétraitement	Gaz (CO <sub>2</sub> )		274
	<i>perte</i>		5,8 %
	Lixiviat (COT)		0
	<i>perte</i>		0 %
Carbone entrant (gC)		4796	4025
<i>% perte lié au prétraitement</i>			6,4 %
Stockage	Gaz (CO <sub>2</sub> + CH <sub>4</sub> )	861	1142
	<i>perte</i> *	18,0 %	28,4 %
	Lixiviat (COT)	230	114
	<i>perte</i> *	4,8 %	2,8 %
Carbone restant (gC)		<i>en cours</i>	1389
<i>%perte lié au stockage</i> *			65,5 %
<b><i>pertes totales</i></b>			<b>70,7 %</b>

\* *perte par rapport à l'entrant en pilote (après prétraitement)*

Au cours de la biodégradation et par l'intermédiaire de la simulation de pluie et de l'étape de saturation / désaturation, la lixiviation des déchets induit une perte non négligeable de composés carbonés ; correspondant respectivement à 4,8 et 2,8 % du potentiel enfoui pour C\* et A\*\_L2. Le déchet prétraité présente ainsi une plus faible capacité à être lixivié que le déchet témoin et ce malgré une proportion de carbone lessivée lors de l'étape de saturation / désaturation plus grande (6,0 gC/kgMS contre 4,4 gC/kgMS pour C\*). Cette observation peut être mise en relation avec l'application d'une étape de prétraitement aérobie, qui même si elle facilite la mobilisation des composés organiques au cours des premiers mois de dégradation (0 - 3 mois), a abaissé le potentiel disponible et donc mobilisable au cours de l'enfouissement (Figure 62). Le déchet témoin (C) présente en effet un potentiel de lixiviation plus important (Tableau LXX).

En outre, quelque soit la modalité considérée, la perte de carbone au cours du procédé complet de traitement (prétraitement + stockage) s'effectue par voie gazeuse avec près de 30 % de perte gazeuse sur l'ensemble du procédé pour A\*\_L2 et 18 % pour C\* lors de l'enfouissement.

Le bilan complet de la modalité A\*\_L2 comprend également les résultats obtenus lors de la procédure de lixiviation auquel il a été soumis à l'état initial (Partie III - II.3.1) et à l'état final c'est-à-dire après excavation (Tableau LXX). L'application de la procédure de lixiviation précédemment optimisée aux différentes étapes du procédé vise d'une part à évaluer les capacités du déchet à remobiliser des espèces polluantes et d'autre part à appréhender son état de dégradation et de stabilisation.

A l'état initial, c'est-à-dire avant enfouissement ( $C^*$ ) et après prétraitement ( $A^*_L2$ ), une quantité importante de composés carbonés sont lixiviables dans un milieu non saturé indiquant un fort potentiel de dégradation. Après 120 heures de contact, le déchet prétraité présente une plus faible capacité à être lixivié que le déchet témoin du fait d'un démarrage de l'activité biologique au sein de la solution qui a consommé la matière organique présente dès 24 heures de contact (Partie III-II.11.1.1 - Figure 72). La comparaison de la quantité libérée après 24 heures de contact, moment où il n'y a pas encore d'activité biologique, met en évidence une plus grande capacité de relargage du déchet prétraité par rapport au déchet témoin de l'ordre de 295 gC contre 180 gC pour le témoin (Partie III- II.11.1.1 - Figure 73).

Tableau LXX : Proportions d'espèces lixiviées en 120 heures avant et après traitement.

Paramètres	Lixiviation initiale		Lixiviation finale	
	gC	% perte	gC	% perte
$C^*$	334	6,6 %	<i>en cours</i>	
$A^*_L2$	262	5,2 %	45	3,2 %

Après excavation, le déchet prétraité présente encore une aptitude relativement importante à libérer des espèces carbonées. Ainsi, en 24 heures de lixiviation 98 gC peuvent être mobilisés soit 7 % du potentiel restant dans le déchet après enfouissement. Au cours de la lixiviation, le déchet excavé est également entré dans une phase de biodégradation matérialisée par un changement de composition de la phase liquide (chute du pH, production d'AGV, diminution de la concentration en COD...) et par une modification de la composition du ciel gazeux (Figure 75). En effet, une augmentation de la proportion de  $CO_2$  et un appauvrissement en  $O_2$  sont observés signe de la mise en place d'une activité biologique.

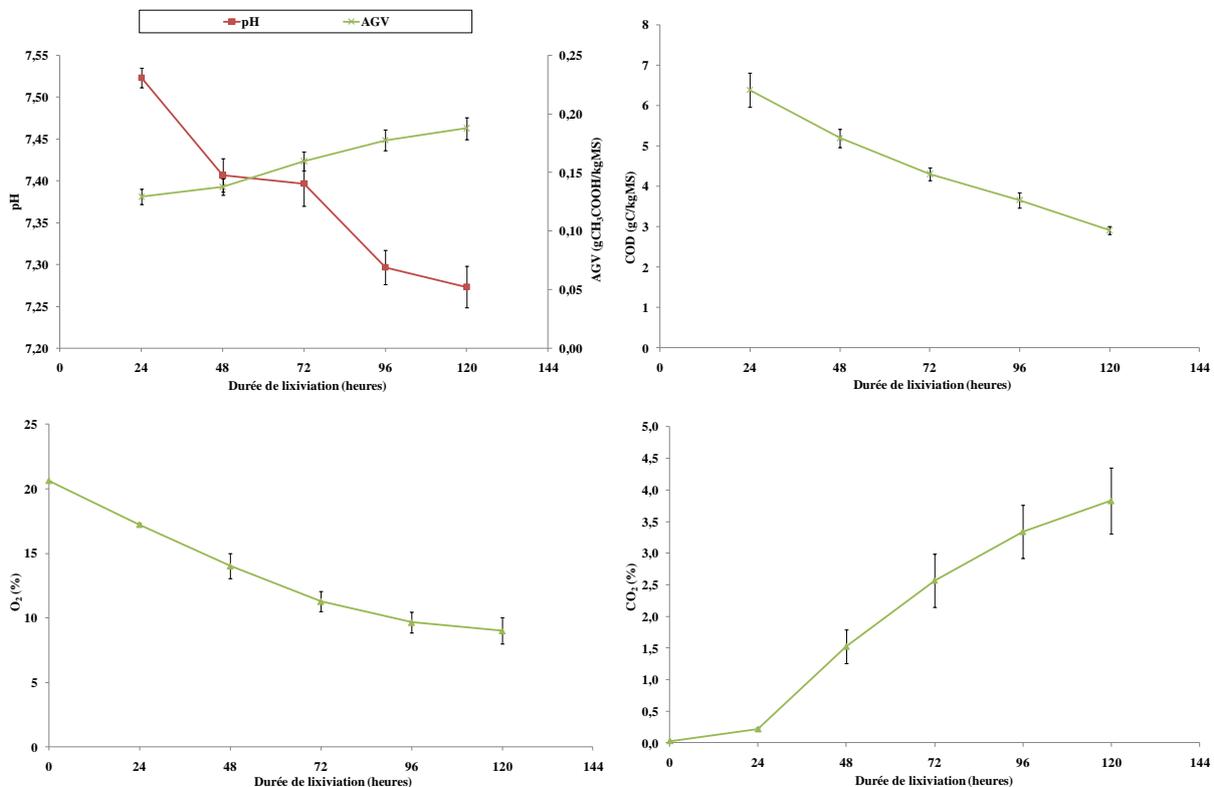


Figure 75 : Evolution du déchet excavé  $A^*_L2$  au cours de la lixiviation.

## II.12. Etat de stabilité des modalités de traitement testées

Malgré une production de biogaz stabilisé et l'émission d'un lixiviat dont les caractéristiques n'évoluent quasiment plus, le test de lixiviation appliqué sur le déchet excavé montre que l'état de stabilité n'est pas réel. De plus, la matière organique résiduelle continue à évoluer dans le sens d'un état de plus en plus humifié. Une modification des conditions de gestion du centre de stockage (infiltration d'eau, entrée d'air...) pourrait donc conduire à un bouleversement du système et donc à des émissions inattendues et non contrôlées de biogaz et / ou de lixiviat. Le potentiel de biodégradation d'un déchet avant traitement et son état de stabilité au cours de l'enfouissement sont le plus souvent estimé au travers de tests de potentiel méthanogène (BMP). Les résultats de ces tests non normalisés sont soumis à l'heure actuelle à de nombreuses interrogations quant à leur aptitude à retranscrire l'état réel de dégradation des déchets. Il est donc nécessaire de définir des paramètres et / ou des méthodologies clés destinés à appréhender l'état de dégradation d'un déchet.

Ainsi, différents déchets issus de modalités ayant subies un prétraitement aérobie avant enfouissement sont comparés afin de vérifier la validité des critères de stabilité couramment établis mais également d'appréhender la capacité du déchet considéré à entrer dans une phase active de biodégradation (Tableau LXXI). De plus, cette étude comparative s'effectue dans le cadre d'une étude multi-échelle : casier 23 m<sup>3</sup> du projet ELIA et pilotes 68 L du projet BIOPTIME. Il convient toutefois de noter que même si la matrice étudiée est différente (déchet réel pour ELIA et déchet reconstitué pour BIOPTIME), une comparaison reste possible car ces 2 matrices sont assimilables à un déchet français moyen.

Tableau LXXI : Paramètres caractéristiques de l'état de dégradation des déchets.

Nom	Etat	Echelle	Modalité de traitement
C*i	initial	68 L	témoin : gestion conventionnelle
C*f	en cours		
C1	excavé	23 m <sup>3</sup>	
A*_L2i	initial	68 L	prétraitement aérobie de faible niveau (<10% de perte en C)
A*_L2f	excavé		
C3	excavé	23 m <sup>3</sup>	prétraitement aérobie avec 24,5 % de perte en C
C4	excavé		prétraitement aérobie avec 36,3 % de perte en C

L'état de stabilité d'un déchet peut ainsi être appréhendé au travers de la mesure de l'indice SUVA et de la proportion de substances de type humique (SH\*) qu'il contient. Ces paramètres peuvent être déterminés à partir du lixiviat généré en cours de dégradation ou sur la phase liquide générée lors de la lixiviation d'un déchet excavé.

Dans les deux cas, l'ensemble de ces paramètres ont été appliqués aux déchets choisis dans le but de comparer leur état de dégradation (Tableau LXXII). Le test de lixiviation appliqué correspond à celui qui a été développé au cours de ce travail de thèse (Partie II - VI.1).

Tableau LXXII : Paramètres caractéristiques de l'état de dégradation des déchets.

Paramètres	Durée mois	Dernier lixiviat produit		120 heures de lixiviation	
		SUVA L/gC/cm	SH* %	SUVA L/gC/cm	SH* %
C*i				6	21
C*f	20	13	34	<i>en cours</i>	
C1	70	26	56	18	53
A*_L2i				10	21
A*_L2f	15	22	54	8	55
C3	67	54	64	27	58
C4	64	56	66	35	69

SH\* correspond à %AH\* + %HPO\*

La lixiviation des différents déchets a également mis en avant la mise en place d'une biodégradation du déchet correspondant au démarrage ou à la reprise d'une activité biologique selon que le déchet soit à son état initial ou qu'il ait été excavé (Figure 76).

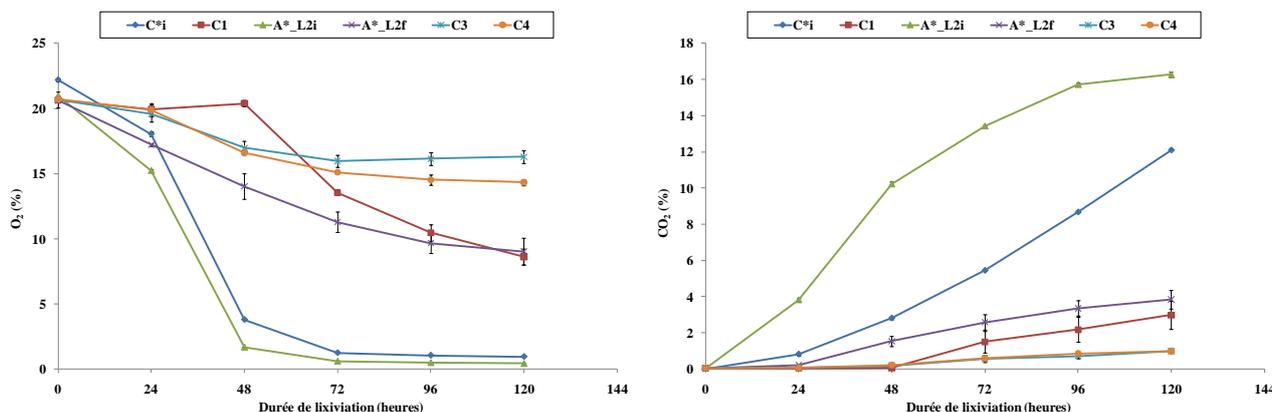


Figure 76 : Evolution de la composition du ciel gazeux (%CO<sub>2</sub> et %O<sub>2</sub>) au cours de la lixiviation.

Au vue des caractéristiques de la matière organique extraite du dernier lixiviat produit mais également de celle issue de la phase liquide après 120 heures de contact, les déchets C3 et C4 ont atteint un état stabilité avancé. En effet, la valeur de l'indice SUVA largement supérieure à 30 L/gC/cm et la forte proportion de SH\* (supérieure à 50 %) indique une phase d'humification (Berthe *et al.*, 2008 ; Feuillade *et al.*, 2009). La très faible modification du ciel gazeux lors de la lixiviation va également dans ce sens puisqu'elle indique la très faible présence voire l'absence d'activité biologique.

Pour une modalité de prétraitement aérobie de plus faible niveau (A\*\_L2f), une durée de 15 mois ne semble pas suffisante afin d'atteindre un état stabilisé. Les caractéristiques des molécules organiques extraites du dernier lixiviat produit indiquent plutôt une phase de pré-humification (SUVA entre 10 et 30 L/gC/cm et SH\* inférieur à 50 %). La reprise d'une activité biologique matérialisée au travers de l'augmentation de la proportion de CO<sub>2</sub> dans le ciel gazeux confirme cet état encore instable de la dégradation du déchet A\*\_L2f. En outre, le déchet C1, qui n'a pas subi de prétraitement avant enfouissement, présente un état de dégradation légèrement supérieur à celui du déchet prétraité A\*\_L2f. La lixiviation a révélé la reprise d'une activité biologique légèrement moins importante et la présence dans la phase liquide de molécules organiques semblant être plus humifiées (SUVA plus élevé). Pour ces 2 modalités de traitement, la production de biogaz lors de

l'enfouissement s'était arrêtée alors que cette étude en conditions de lixiviation montre qu'ils n'étaient pas stabilisés.

A l'état initial, la mise en place d'un prétraitement aérobique avant enfouissement semble favoriser la mise en place d'une activité biologique du fait de la plus grande disponibilité de la matière organique qui a déjà subi les premières phases de dégradation lors du prétraitement. Cette observation étant en accord avec la libération plus importante de composés organiques dans la phase liquide ; substances organiques présentant un état de dégradation plus avancé (Tableau LXXII).

*Un lien entre les caractéristiques de la matière organique et l'aptitude du déchet à entrer dans un état de biodégradation peut donc être fait. Ainsi, le test de lixiviation développé s'avère être un bon indicateur de l'état de dégradation des déchets notamment au travers du suivi de l'évolution de la composition du ciel gazeux et des caractéristiques de la matière organique libérée dans la phase liquide (indice SUVA et proportion de SH\*). De plus, ces différentes comparaisons confirment à nouveau que l'arrêt de la production de biogaz n'est pas un critère suffisamment pertinent afin de définir l'état de stabilité d'un massif de déchets.*

# CONCLUSION GENERALE

---

La mise en place d'une étape de préparation ou de prétraitement du déchet avant enfouissement semble être une solution afin de satisfaire les exigences environnementales, réglementaires et économiques actuelles. Ces nouveaux modes de gestion font ainsi l'objet de plus en plus d'études que ce soit à l'échelle laboratoire, à l'échelle pilote ou directement sur site. Les critères couramment utilisés dans ces études afin de caractériser l'état de dégradation et de stabilité des déchets enfouis présentent toutefois des limites donnant lieu à des interrogations quant à la validité des conclusions proposées.

L'objectif premier de ce travail de thèse consistait en une comparaison de différentes modalités de prétraitement des déchets ménagers et assimilés destinés à accélérer la dégradation des déchets en conditions d'enfouissement, permettant ainsi d'atteindre plus rapidement un état stabilisé. La nécessité de caractériser toujours mieux l'effet d'un mode de traitement a conduit au développement d'un protocole de lixiviation adapté à la matrice déchet et destiné à mettre en évidence des différences de comportement entre les modalités testées notamment au niveau de l'appréciation de l'état de stabilité. Un tel test est configuré pour être un compromis entre « maximum de mobilisation » et « minimum de biodégradation ». Une durée de lixiviation de 120 heures sans renouvellement de la solution d'élution est apparue comme pertinente pour répondre à ces critères. Ce temps de contact est suffisant pour mettre en avant une modification de la composition du ciel gazeux indiquant la mise en place d'une activité biologique et pouvant donc être reliée à un potentiel de biodégradation dans le cas d'un déchet frais ou à un degré de stabilité dans le cas d'un déchet déjà dégradé.

La démarche expérimentale suivie était basée sur une étude comparative des effets de 21 modes de gestion des déchets ménagers et assimilés à 2 échelles différentes : 23 m<sup>3</sup> et 68 L.

Dans le cadre du projet ELIA, 3 modes de traitement ont été comparés à une gestion conventionnelle : le concept de bioréacteur (recirculation du lixiviat) et 2 niveaux de prétraitement mécanique et biologique aérobie. Le suivi du biogaz, des lixiviats émis et l'étude approfondie des déchets excavés au travers d'une caractérisation bio-physicochimique classique et de l'application du protocole de lixiviation optimisé ont permis de conclure quant à l'efficacité des modes de gestion appliqués. Ainsi, la mise en place d'une étape de prétraitement biologique avant enfouissement permet une stabilisation préalable du déchet qui ne cesse donc de « s'humifier » tout au long du stockage. Ainsi, après 5,5 années d'enfouissement, la matière organique relarguée présente des caractéristiques indiquant un état « d'humification » avancé : taux important d'AH\* (>35 %) et indice SUVA élevé (>50 L/cm<sup>2</sup>/gC). En outre, la production de biogaz lors du stockage est très faible par rapport à une gestion conventionnelle. L'ensemble des objectifs attendu d'un tel prétraitement est donc respecté. Au niveau du casier fonctionnant en mode bioréacteur, la

singularité de son fonctionnement au cours de l'exploitation ne permet pas de tirer de franches conclusions. Toutefois, il apparaît que la mise en place d'une recirculation du lixiviat favorise la production de biogaz mais ne confère pas au système un meilleur état de stabilité qu'une gestion conventionnelle. En effet, la lixiviation du déchet excavé issu de ce casier a mis en avant une importante reprise de l'activité biologique en milieu non saturé.

L'exploitation en pilotes 68 L des modalités de prétraitement testées dans le cadre du projet BIOPTIME ont également mis en avant des différences significatives de comportement. Il convient tout d'abord de noter que le suivi rigoureux du biogaz produit et des lixiviats générés tel qu'il a été instauré a permis de trouver rapidement des solutions aux dysfonctionnements observés lors du suivi des pilotes 68 L et opter pour la mise en place d'une étape de saturation / désaturation avec du lixiviat mature. En effet, même dans le cas où un ajout d'inoculum avait été effectué, un blocage en phase acide a été observé dès le 6<sup>ème</sup> mois d'exploitation. Ce blocage lors des premières phases de dégradation traduit la difficulté de gestion et d'exploitation d'un tel dispositif expérimental.

Des 5 modalités de traitement testées, 2 ont montré un réel impact sur l'amélioration de la dégradation des déchets en conditions de stockage : l'ajout de mâchefers et la mise en place d'un prétraitement aérobique avant enfouissement. Ils permettent, l'un comme l'autre, d'améliorer la cinétique de production de biogaz tout en augmentant significativement la quantité produite. Dans le cas d'un déchet prétraité biologiquement avant enfouissement, une accélération de la stabilité du massif de déchets est également observée car les premières phases de dégradation (hydrolyse et acidogénèse) n'apparaissent pas ou que très brièvement selon le niveau du prétraitement appliqué. Il convient toutefois de noter que dans le cadre de cette étude un réel état de stabilité n'a pas pu être observé du fait de la courte durée de chaque expérimentation ; 15 à 28 mois selon la modalité. L'application du protocole de lixiviation optimisé sur un déchet excavé ayant subi préalablement à l'enfouissement un prétraitement aérobique avec un faible taux d'abattement en carbone (< 10 %) a ainsi révélé une possible reprise de l'activité biologique au cours de la lixiviation.

Pour les 2 programmes de recherche sur lesquels s'appuie ce travail de thèse, l'ensemble des protocoles expérimentaux mis en place et optimisés pour l'ensemble des matrices considérées (déchet, lixiviat ou biogaz) et notamment le test de lixiviation tel qu'il a été développé ont permis de déterminer l'impact des modalités testées sur la dégradation des déchets en conditions d'enfouissement. Le protocole de lixiviation a ainsi prouvé son intérêt et son efficacité.

En outre, l'approche multi-paramètres a permis d'identifier les indicateurs les plus pertinents pour évaluer l'avancement de la dégradation ou un état de stabilisation. Ainsi, le fractionnement des composés organiques selon leur caractère hydrophobe associé à une mesure de l'indice SUVA révèle un intérêt particulier. L'indice SUVA, mesure facile et rapide à mettre en œuvre semble donc être un paramètre pour lequel toute l'attention doit être apportée.

Les modalités jugées comme pertinentes à l'échelle 68 L pourront donc être transférées à plus grande échelle : échelle semi-industrielle de 1 m<sup>3</sup>. En effet, le projet BIOPTIME est un projet multi-échelle qui se décompose en 3 principales étapes dépendantes les unes des autres variant selon la taille de l'installation utilisée (Partie II - I.2 - Figure 19). Une étude approfondie du phénomène de

transfert d'échelle pourra alors être menée de manière à vérifier la représentativité de certains phénomènes observés à l'échelle 68 L. L'étude d'une même modalité de prétraitement en batch, en pilote ou sur site, peut donner des résultats identiques ou totalement différents selon l'échelle à laquelle elle est réalisée. En outre, une meilleure évaluation de la faisabilité industrielle d'un tel procédé (prétraitement + stockage) pourra ainsi être appréhendée notamment du point de vue de sa mise en œuvre technique et économique. Des aspects plus physiques et mécaniques tels que la pression et la perméabilité pourront être pris en compte.



# REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

---

A
---

Adani F., Genevini P., Tambone, F. 1995. A new index of organic matter stability. *Compost Science & Utilization*, 3(2), 25-37.

Adani F., Lozzi P., Genevini P. 2001. Determination of biological stability by oxygen uptake on municipal solid waste and derived products. *Compost Science and Utilization*, 9(2), 163-178.

Adani F., Tambone F., Gotti A. 2004. Biostabilization of municipal solid waste. *Waste Management*, 24(8), 775-783.

ADEME, 1993. Méthode de caractérisation des ordures ménagères. Connaître pour agir - Manuel de base. Ademe Editions, Paris.

ADEME, 1999a. La composition des ordures ménagères en France (données et références). Ademe Editions, Paris.

ADEME, 1999b. Les installations de stockage des déchets ménagers et assimilés : techniques et recommandations. Ademe Editions, Paris.

ADEME, 2006. Gestion des déchets organiques en France : le point sur les filières de gestion biologique avec retour au sol. Ademe Editions, Paris.

ADEME, 2008. Mâchefers d'incinération des ordures ménagères. Etat de l'art et perspectives. Ademe Editions, Paris.

ADEME, 2009. Les déchets en chiffres en France. Ademe Editions, Paris.

ADEME, 2010. Composition des ordures ménagères et assimilées en France - Résultats de la campagne nationale de caractérisation 2007. Ademe Editions, Paris.

Agdag O.N., Sponza D.T. 2007. Co-digestion of mixed industrial sludge with municipal solid wastes in anaerobic simulated landfilling bioreactors. *Journal of Hazardous Materials*, 140(1-2), 75-85.

Aguilar A., Casas C., Lema J.M., 1995. Degradation of volatile fatty acids by differently enriched methanogenic cultures: Kinetics and inhibition. *Water Research*, 29(2), 505-509.

Aguilar-Juarez O. 2000. Analyse et modélisation des réactions biologiques aérobies au cours de la phase d'exploitation d'un casier d'un centre d'enfouissement technique. Thèse de doctorat, INSA de Toulouse.

Ait Baddi G., Albuquerque J.A. [et al]. 2004. Chemical and spectroscopic analyses of organic matter transformations during composting of olive mill wastes. *International Biodeterioration & Biodegradation*, 54(1), 39-44.

Allen M., Braithwaite A., Hills C. 1997. Trace organic compounds in landfill gas at seven U.K. waste disposal sites. *Environmental Science and Technology*, 31(4), 1054-1061.

Altas L. 2009. Inhibitory effect of heavy metals on methane-producing anaerobic granular sludge. *Journal of Hazardous Materials*, 162(2-3), 1551-1556.

Angelidaki I., Alves M. [et al.]. 2009. Defining the biomethane potential (BMP) of solid organic wastes and energy crops: A proposed protocol for batch assays. *Water Science and Technology* 59 (5), 927-934.

Antizar-Ladislao B., Lopez-Real J., Beck A.J. 2006. Investigation of organic matter dynamics during in-vessel composting of an aged coal-tar contaminated soil using fluorescence excitation-emission

spectroscopy. *Chemosphere*, 64(5), 839-847.

Aragón A., García M.G. [et al.]. 2000. Maximum compactibility of Argentine soils from the Proctor test - The relationship with organic carbon and water content. *Soil and Tillage Research*, 56(3-4), 197-204.

Aran C., 2001. Modélisation des écoulements de fluides et des transferts de chaleur au sein des déchets ménagers. Application à la réinjection de lixiviat dans un centre de stockage. Thèse de doctorat, Institut national polytechnique de Toulouse.

Arickx S., Van Gerven T. [et al.]. 2007. Influence of treatment techniques on Cu leaching and different organic fractions in MSWI bottom ash leachate. *Waste Management*, 27(10), 1422-1427.

Arm M. 2004. Variation in deformation properties of processed MSWI bottom ash: Results from triaxial tests. *Waste Management*, 24(10), 1035-1042.

Augenstein D., Yazdani R. [et al.]. 2005. Yolo County, California controlled landfill program: a summary of results since 1994. In *Proceedings Sardinia, 10th International Waste Management and Landfill Symposium*, Cagliari, Italy.

## B

Babyranidevi S., Bhojar R. 2003. Feasibility of some treatments for improving the composting of municipal solid waste. *Indian Journal of Environmental Health*, 45(3), 231-234.

Baccini P., Henseler G. [et al.]. 1987. Water and element balances of municipal solid waste landfills. *Waste Management & Research*, 5(4), 483-499.

Backer U., Peiffer S. 1997. Heavy-metal ion complexation by particulate matter in the leachate of solid waste: A multi-method approach. *Journal of Contaminant Hydrology*, 24(3-4), 313-344.

Banks C., Lo H. 2003. Assessing the effects of municipal solid waste incinerator bottom ash on the decomposition of biodegradable waste using a completely mixed anaerobic reactor. *Waste Management and Research*, 21(3), 225-234.

Bari Q., Koenig A. 2001. Effect of air recirculation and reuse on composting of organic solid waste. *Resources, Conservation and Recycling*, 33(2), 93-111.

Barlaz M., Ham R., Schaefer D. 1990. Methane production from municipal refuse: A review of enhancement techniques and microbial dynamics. *Critical Reviews in Environmental Control*, 19(6), 557-584.

Barlaz M.A., Ham R.K., Schaefer D.M. 1992. Microbial, chemical and methane production characteristics of anaerobically decomposed refuse with and without leachate recycling. *Waste Management & Research*, 10(3), 257-267.

Barrena R., d'Imporzano G. [et al.]. 2009. In search of a reliable technique for the determination of the biological stability of the organic matter in the mechanical-biological treated waste. *Journal of Hazardous Materials*, 162(2-3), 1065-1072.

Baun D., Christensen T. 2004. Speciation of heavy metals in landfill leachate: A review. *Waste Management and Research*, 22(1), 3-23.

Bayard R., De Araújo Morais J. [et al.]. 2010. Assessment of the effectiveness of an industrial unit of mechanical-biological treatment of municipal solid waste. *Journal of Hazardous Materials*, 175(1-3), 23-32.

Beck-Friis B., Pell M. [et al.]. 2000. Formation and emission of N<sub>2</sub>O and CH<sub>4</sub> from compost heaps of organic household waste. *Environmental Monitoring and Assessment*, 62(3), 317-331.

Belevi H., Baccini P. 1989. Long-term behavior of municipal solid waste landfills. *Waste Management & Research*, 7(1), 43-56.

Benbelkacem H., Bayard R. [et al.]. 2010. Effect of leachate injection modes on municipal solid waste degradation in anaerobic bioreactor. *Bioresource Technology*, 101(14), 5206-5212.

Benson C., Barlaz M.A. [et al.]. 2007. Practice review of five bioreactor/recirculation landfills. *Waste Management*, 27(1), 13-29.

- Bergersen O., Bøen A., Sørheim R. 2009. Strategies to reduce short-chain organic acids and synchronously establish high-rate composting in acidic household waste. *Bioresource Technology*, 100(2), 521-526.
- Bertanza G, Cavallari S. [et al.]. 2001. Characterization of waste extracted from MSW landfills: correlation between waste stabilization and characteristics of landfill emissions. In *Proceedings Sardinia, 8th International Waste Management and Landfill Symposium*, Cagliari, Italy.
- Berthe C. 2006. Etude de la Matière Organique contenue dans des lixiviats issus de différentes filières de traitement des déchets ménagers et assimilés. Thèse de doctorat, Université de Limoges.
- Berthe C., Redon E., Feuillade G. 2008. Fractionation of the organic matter contained in leachate resulting from two modes of landfilling: An indicator of waste degradation. *Journal of Hazardous Materials*, 154(1-3), 262-271.
- Berthe L., Druilhe C. [et al.]. 2007. Coupling a respirometer and a pycnometer, to study the biodegradability of solid organic wastes during composting. *Biosystems Engineering*, 97(1), 75-88.
- Bezama A., Aguayo P. [et al.]. 2007. Investigations on mechanical biological treatment of waste in South America: Towards more sustainable MSW management strategies. *Waste Management*, 27(2), 228-237.
- Bhattacharyya J., Kumar S., Devotta S. 2008. Studies on acidification in two-phase biomethanation process of municipal solid waste. *Waste Management*, 28(1), 164-169.
- Bilgili M.S., Demir A., Özkaya B. 2007. Influence of leachate recirculation on aerobic and anaerobic decomposition of solid wastes. *Journal of Hazardous Materials*, 143(1-2), 177-183.
- Bilgili M.S., Demir A., Varank G. 2009. Evaluation and modeling of biochemical methane potential (BMP) of landfilled solid waste: A pilot scale study. *Bioresource Technology*, 100(21), 4976-4980.
- Binner E., Zach A. 1999. Biological reactivity of residual wastes and dependence on the duration of pretreatment. *Waste Management and Research*, 17(6), 543-554.
- Bockreis A., Steinberg I. 2005. Influence of mechanical-biological waste pre-treatment methods on the gas formation in landfills. *Waste Management*, 25(4), 337-343.
- Bogner J. 1990. Controlled study of landfill biodegradation rates using modified BMP assays. *Waste Management and Research*, 8(5), 329-352.
- Bolea E., Gorris M.P. [et al.]. 2006. Multielement characterization of metal-humic substances complexation by size exclusion chromatography, asymmetrical flow field-flow fractionation, ultrafiltration and inductively coupled plasma-mass spectrometry detection: A comparative approach. *Journal of Chromatography A*, 1129(2), 236-246.
- Bolzonella D., Battistoni P. [et al.]. 2003. Anaerobic digestion of organic solid waste: Process behaviour in transient conditions. *Water Science and Technology* 48 (4), 1-8.
- Boni M.R., Leoni S., Sbaiffoni S. 2007. Co-landfilling of pretreated waste: Disposal and management strategies at lab-scale. *Journal of Hazardous Materials*, 147(1-2), 37-47.
- Bouchez T., Barina G. [et al.]. 2005. Towards a new generation of bioactive storage centres. *Techniques - Sciences - Methodes*, (7-8), 66-77.
- Boulanger A., Ait Baddi G. [et al.]. 2009a. Codisposal of bottom ashes with municipal solid waste: an unexpected effect on methanogenesis. In *Proceedings Sardinia, 12th International Waste Management and Landfill Symposium*, Cagliari, Italy.
- Boulanger A., Ait Baddi G. [et al.]. 2009b. Comparing the effect of different waste preparation methods to enhance municipal solid waste methanisation kinetics and yield. In *Proceedings Sardinia, 12th International Waste Management and Landfill Symposium*, Cagliari, Italy.
- Bozkurt S., Moreno L., Neretnieks I. 1999. Long-term fate of organics in waste deposits and its effect on metal release. *The Science of The Total Environment*, 228(2-3), 135-152.
- Bozkurt S., Moreno L., Neretnieks I. 2000. Long-term processes in waste deposits. *The Science of The Total Environment*, 250(1-3), 101-121.
- Brunori C., Balzamo S., Morabito R. 2001. Comparison between different leaching tests for the evaluation of

metal release from fly ash. *Analytical and Bioanalytical Chemistry*, 371(6), 843-848.

Buivid M., Wise D., Blanchet M. 1981. Fuel gas enhancement by controlled landfilling of municipal solid waste. *Resource Recovery and Conservation*, 6(1), 3-20.

Burton S., Watson-Craik I. 1998. Ammonia and nitrogen fluxes in landfill sites: Applicability to sustainable landfilling. *Waste Management and Research*, 16(1), 41-53.

Businelli M., Altieri R. [et al.]. 1999. Complexation capacity of dissolved organic matter from pig slurry: A gel filtration and dialysis study. *Water, Air, and Soil Pollution*, 113(1-4), 385-394.

<b>C</b>
----------

Calace N., Liberatori A. [et al.]. 2001. Characteristics of different molecular weight fractions of organic matter in landfill leachate and their role in soil sorption of heavy metals. *Environmental Pollution*, 113(3), 331-339.

Cao J., Lam K.M., [et al.]. 2004. The effect of pH, ion strength and reactant content on the complexation of Cu<sup>2+</sup> by various natural organic ligands from water and soil in Hong Kong. *Chemosphere*, 54(4), 507-514.

Castaldi P., Albertu G. [et al.]. 2005. Study of the organic matter evolution during municipal solid waste composting aimed at identifying suitable parameters for the evaluation of compost maturity. *Waste Management*, 25(2), 209-213.

Changa C., Wang P. [et al.]. 2003. Assessment of the reliability of a commercial maturity test kit for composted manures. *Compost Science and Utilization*, 11(2), 125-143.

Chaspoul F., Le Droguene M.F. [et al.]. 2008. A role for adsorption in lead leachability from MSWI bottom ASH. *Waste Management*, 28(8), 1324-1330.

Chen J., Gu B. [et al.]. 2002. Spectroscopic characterization of the structural and functional properties of natural organic matter fractions. *Chemosphere*, 48(1), 59-68.

Chen Y. 2003. Nuclear magnetic resonance, infra-red and pyrolysis: Application of spectroscopic methodologies to maturity determination of composts. *Compost Science and Utilization*, 11(2), 152-168.

Chen Y., Cheng J., Creamer K. 2008. Inhibition of anaerobic digestion process: A review. *Bioresource Technology*, 99(10), 4044-4064.

Chèvre N., Brazzale A.R. [et al.]. 2005. Modeling the concentration-response function of the herbicide dinoseb on *Daphnia magna* (survival time, reproduction) and *Pseudokirchneriella subcapitata* (growth rate). *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 62(1), 17-25.

Chiampo F., Conti R., Cometto D. 1996. Morphological characterisation of MSW landfills. *Resources, Conservation and Recycling*, 17(1), 37-45.

Chian E.S., DeWalle F.B. 1976. Sanitary landfill leachates and their treatment. *ASCE J Environ Eng Div*, 2(2), 411-431.

Cho E., Tameda K. [et al.]. 2009. Toxicological evaluation of the chemical oxidation methods for landfill stabilization. *Waste Management*, 29(3), 1006-1011.

Christensen J.B., Jensen D.L., Christensen T.H. 1996. Effect of dissolved organic carbon on the mobility of cadmium, nickel and zinc in leachate polluted groundwater. *Water Research*, 30(12), 3037-3049.

Christensen J.B., Jensen D.L. [et al.]. 1998. Characterization of the dissolved organic carbon in landfill leachate-polluted groundwater. *Water Research*, 32(1), 125-135.

Christensen T.H., Stegmann R. 1989. *Basic Biochemical Processes in Landfills. Sanitary landfilling: process, technology and environmental impact. Sanitary landfilling: Process, Technology and Environmental Impact*, Academic Press.

Christensen T.H., Kjeldsen P. [et al.]. 1994. Attenuation of landfill leachate pollutants in aquifers. *Critical Reviews in Environmental Science and Technology*, 24(2), 119-202.

- Christensen T.H., Kjeldsen P. [et al.]. 2001. Biogeochemistry of landfill leachate plumes. *Applied Geochemistry*, 16(7-8), 659-718.
- Chugh S., Clarke W. [et al.]. 1998. Effect of recirculated leachate volume on MSW degradation. *Waste Management and Research*, 16(6), 564-573.
- Clemens J., Cuhls C. 2003. Greenhouse gas emissions from mechanical and biological waste treatment of municipal waste. *Environmental Technology*, 24(6), 745-754.
- Coates J., Cole K.A. [et al.]. 2002. Diversity and ubiquity of bacteria capable of utilizing humic substances as electron donors for anaerobic respiration. *Applied and Environmental Microbiology*, 68(5), 2445-2452.
- Conte P., Piccolo A. 1999. Conformational arrangement of dissolved humic substances. Influence of solution composition on association of humic molecules. *Environmental Science and Technology*, 33(10), 1682-1690.
- Conte P., Spaccini R., Piccolo A. 2004. State of the art of CPMAS <sup>13</sup>C-NMR spectroscopy applied to natural organic matter. *Progress in Nuclear Magnetic Resonance Spectroscopy*, 44(3-4), 215-223.
- Conte P., Spaccini R. [et al.]. 2007. Spectroscopic and conformational properties of size-fractions separated from a lignite humic acid. *Chemosphere*, 69(7), 1032-1039.
- Cossu R., Blakey N., Cannas P. 1993. Influence of codisposal of municipal solid waste and olive vegetation water on the anaerobic digestion of a sanitary landfill. *Water Science and Technology*, 27(2), 261-271.
- Cossu R., Raga R., Rossetti D. 2003. The PAF model: An integrated approach for landfill sustainability. *Waste Management*, 23(1), 37-44.
- Cossu R., Raga R. 2008. Test methods for assessing the biological stability of biodegradable waste. *Waste Management*, 28(2), 381-388.
- Croue J., Benedetti M.F. [et al.]. 2003. Characterization and copper binding of humic and nonhumic organic matter isolated from the South Platte River: Evidence for the presence of nitrogenous binding site. *Environmental Science and Technology*, 37(2), 328-336.

**D**

- Das K., Keener H. 1997. Moisture effect on compaction and permeability in composts. *Journal of Environmental Engineering*, 123(3), 275-281.
- De Araujo Morais J. 2006. Influence des prétraitements mécaniques et biologiques des Ordures Ménagères Résiduelles (OMR) sur leur comportement bio-physico-chimique en Installations de Stockage des Déchets (ISD). Thèse de Doctorat, INSA de Lyon.
- Delvigne F., Destain J., [et al.]. 2010. L'extrapolation des bioréacteurs : un problème de génie des procédés ou de physiologie microbienne ? *Chimie Nouvelle*. in press.
- Demir A., Bilgili M., Özkaya B. 2004. Effect of leachate recirculation on refuse decomposition rates at landfill site: A case study. *International Journal of Environment and Pollution*, 21(2), 175-187.
- Dignac M., Houot S. [et al.]. 2005. Pyrolytic study of compost and waste organic matter. *Organic Geochemistry*, 36(7), 1054-1071.

**E**

- Ehrig H.J. 1983. Quality and quantity of sanitary landfill leachate. *Waste Management & Research*, 1(1), 53-68.
- Eklind Y., Kirchmann H. 2000. Composting and storage of organic household waste with different litter amendments. I: Carbon turnover. *Bioresource Technology*, 74(2), 115-124.
- El-Fadel M., Findikakis A.N., Leckie J.O. 1997. Environmental Impacts of Solid Waste Landfilling. *Journal of Environmental Management*, 50(1), 1-25.

- El-Fadel M., Massoud M. 2000. Emissions from landfills: A methodology comparative assessment. *Environmental Technology*, 21(9), 965-978.
- El-Fadel M., Bou-Zeid E. [et al.]. 2002. Temporal variation of leachate quality from pre-sorted and baled municipal solid waste with high organic and moisture content. *Waste Management*, 22(3), 269-282.
- Erses A.S., Onay T.T., Yenigun O. 2008. Comparison of aerobic and anaerobic degradation of municipal solid waste in bioreactor landfills. *Bioresource Technology*, 99(13), 5418-5426.
- Espinosa Lloréns M.D.C., Torres M.L. [et al.]. 2008. Characterization of municipal solid waste from the main landfills of Havana city. *Waste Management*, 28(10), 2013-2021.
- Esser P., Van der Sloot H, Suitela W. 2001. Harmonization of leaching tests: Leaching behaviour of wood. *Heron*, 46(4), 239-252.

<b>F</b>
----------

- Fallaha S., Martineau G. [et al.]. 2009. Broadening GHG accounting with LCA: Application to a waste management business unit. *Waste Management and Research*, 27(9), 885-893.
- Fällman A.M., Aurell B. 1996. Leaching tests for environmental assessment of inorganic substances in wastes, Sweden. *Science of The Total Environment*, 178(1-3), 71-84.
- Fällman A.M. 1997. Performance and design of the availability test for measurement of potentially leachable amounts from waste materials. *Environmental Science and Technology*, 31(3), 735-744.
- Fang M., Wong W.J.C. [et al.]. 1998. Changes in biological parameters during co-composting of sewage sludge and coal ash residues. *Bioresource Technology*, 64(1), 55-61.
- Farquhar G., Rovers F. 1973. Gas production during refuse decomposition. *Water, Air, and Soil Pollution*, 2(4), 483-495.
- Feng S., Wang X, [et al.]. 2007. Leachates of municipal solid waste incineration bottom ash from Macao: Heavy metal concentrations and genotoxicity. *Chemosphere*, 67(6), 1133-1137.
- Fermor T. 1993. Applied aspects of composting and bioconversion of lignocellulosic materials: An overview. *International Biodeterioration and Biodegradation*, 31(2), 87-106.
- Fernandes J.C. 2007. Caractérisation de composés organiques extraits d'un lixiviat de DOM par analyse gravimétrique. Rapport de master recherche, Université de Limoges.
- Feuillade G., Parodi A., Redon E. 2009. Relation between organic matter properties in leachate and biogas production from MSW landfilling. In *Proceedings Sardinia, 12th International Waste Management and Landfill Symposium*, Cagliari, Italy.
- Fischer G., Schwalbe R. [et al.]. 1999. Species-specific production of microbial volatile organic compounds (MVOC) by airborne fungi from a compost facility. *Chemosphere*, 39(5), 795-810.
- Flyhammar P., Håkansson K. 1999. The release of heavy metals in stabilised MSW by oxidation. *Science of The Total Environment*, 243-244, 291-303.
- Flyhammar P. 1997. Estimation of heavy metal transformations in municipal solid waste. *Science of The Total Environment*, 198(2), 123-133.
- Forster J., Zech W., Würdinger E. 1993. Comparison of chemical and microbiological methods for the characterization of the maturity of composts from contrasting sources. *Biology and Fertility of Soils*, 16(2), 93-99.
- Forster-Carneiro T., Pérez M. [et al.]. 2007. Dry-thermophilic anaerobic digestion of organic fraction of the municipal solid waste: Focusing on the inoculum sources. *Bioresource Technology*, 98(17), 3195-3203.
- Forster-Carneiro T., Pérez M., Romero L. 2008. Thermophilic anaerobic digestion of source-sorted organic fraction of municipal solid waste. *Bioresource Technology*, 99(15), 6763-6770.
- Forteza R., Far M. [et al.]. 2004. Characterization of bottom ash in municipal solid waste incinerators for its

- use in road base. *Waste Management*, 24(9), 899-909.
- François V., Feuillade G. [et al.]. 2003. Contribution to the study of the MSW stabilization - Quantification of released pollutions and characterization of waste. In *Proceedings Sardinia, 9th International Waste Management and Landfill Symposium*, Cagliari, Italy.
- François V. 2004. Détermination d'indicateurs d'accélération et de stabilisation de déchets ménagers enfouis. Etude de l'Impact de la recirculation de lixiviats sur colonnes de déchets. Thèse de doctorat, Université de Limoges
- François V., Feuillade G. [et al.]. 2006. Indicating the parameters of the state of degradation of municipal solid waste. *Journal of Hazardous Materials*, 137(2), 1008-1015.
- François V., Feuillade G. [et al.]. 2007. Leachate recirculation effects on waste degradation: Study on columns. *Waste Management*, 27(9), 1259-1272.
- Franco C. 2003. Sabilisation de la matière organique au cours du compostage de déchets urbains : Influence de la nature des déchets et du procédé de compostage - Recherche d'indicateurs pertinents. Thèse de doctorat, INRA de Paris-Grignon.
- Franco C., Linères M. [et al.]. 2008. Influence of green waste, biowaste and paper-cardboard initial ratios on organic matter transformations during composting. *Bioresource Technology*, 99(18), 8926-8934.
- Franke M., Jandl G., Leinweber P. 2007. Analytical pyrolysis of re-circulated leachates: Towards an improved municipal waste treatment. *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis*, 79(1-2), 16-23.
- Fricke K., Santen H., Wallmann R. 2005. Comparison of selected aerobic and anaerobic procedures for MSW treatment. *Waste Management*, 25(8), 799-810.

<b>G</b>
----------

- Gachet C. 2005. Evolution bio-physico-chimique des déchets enfouis au Centre de Stockage de Déchets Ultimes du SYDOM du Jura sous l'effet de la recirculation des lixiviats. Thèse de doctorat, INSA de Lyon.
- Gagnon B., Simard R.R. [et al.]. 1997. Effect of composts and inorganic fertilizers on spring wheat growth and N uptake. *Canadian Journal of Soil Science*, 77(3), 487-495.
- Gioannis G.D., Muntoni A. [et al.]. 2009. Landfill gas generation after mechanical biological treatment of municipal solid waste. Estimation of gas generation rate constants. *Waste Management*, 29(3), 1026-1034.
- Gómez R.B., Lima F.V. [et al.]. 2005. Respirometric assays at fixed and process temperatures to monitor composting process. *Bioresource Technology*, 96(10), 1153-1159.
- Gomez R.B., Lima F.V., [et al.]. 2006. The use of respiration indices in the composting process: a review. *Waste Management Research*, 24(1), 37-47.
- Gourdon R. 2001. Aide à la définition des déchets dits biodégradables, fermentescibles, méthanisables, compostables. Association RECORD, Etude n°00-0118/1A, 151.
- Goslan E.H., Voros S. [et al.]. 2004. A model for predicting dissolved organic carbon distribution in a reservoir water using fluorescence spectroscopy. *Water Research*, 38(3), 783-791.
- Guérin R., Munoz M.L. [et al.]. 2004. Leachate recirculation: Moisture content assessment by means of a geophysical technique. *Waste Management*, 24(8), 785-794.
- Gurljala K., Suflita J. 1993. Environmental factors influencing methanogenesis from refuse in landfill samples. *Environmental Science and Technology*, 27(6), 1176-1181.

<b>H</b>
----------

- Hage J., Mulder E. 2004. Preliminary assessment of three new European leaching tests. *Waste Management*, 24(2), 165-172.

- Ham R., Bookter T. 1982. Decomposition of solid waste in test lysimeters. *Journal - Environmental Engineering Division, ASCE*, 108(EE6), 1147-1170.
- Hänninen K., Klöcking R., Helbig B. 1987. Synthesis and characterization of humic acid-like polymers. *Science of The Total Environment*, 62, 201-210.
- Hansen T.L., Schmidt J.E. [et al.]. 2004. Method for determination of methane potentials of solid organic waste. *Waste Management*, 24(4), 393-400.
- Harries C., Cross C., Smith R. 2001a. Application of Biochemical methane Potential (BMP) testing to the study of municipal solid waste decomposition in MSW lysimeter. In *Proceedings Sardinia, 8th International Waste Management and Landfill Symposium, Cagliari, Italy*.
- Harries C., Cross C., Smith R. 2001b. Development of a Biochemical methane Potential (BMP) test and application to testing of municipal solid waste samples. In *Proceedings Sardinia, 8th International Waste Management and Landfill Symposium, Cagliari, Italy*.
- Hassen A., Belguith K. [et al.]. 2001. Microbial characterization during composting of municipal solid waste. *Bioresource Technology*, 80(3), 217-225.
- He P., Xiao Z. [et al.]. 2006. In situ distributions and characteristics of heavy metals in full-scale landfill layers. *Journal of Hazardous Materials*, 137(3), 1385-1394.
- Heasman L. 1997. Leaching tests to assess the environmental impact of waste. In *Proceedings Sardinia, 6th International Waste Management and Landfill Symposium, Cagliari, Italy*.
- Heyer K., Hupe K. [et al.]. 2005. Pollutant release and pollutant reduction - Impact of the aeration of landfills. *Waste Management*, 25(4), 353-359.
- Hjelmar O., Johannessen L.M. [et al.]. 1994. Management and composition of leachates from landfills., Horschlo, Denmark.
- Huang G., Wu Q.T. [et al.]. 2006. Transformation of organic matter during co-composting of pig manure with sawdust. *Bioresource Technology*, 97(15), 1834-1842.
- Huang S., Chang C.Y. [et al.]. 2007. Sequential extraction for evaluating the leaching behavior of selected elements in municipal solid waste incineration fly ash. *Journal of Hazardous Materials*, 149(1), 180-188.

**I**

- Iannotti D., Grebus M.E. [et al.]. 1994. Oxygen respirometry to assess stability and maturity of composted municipal solid waste. *Journal of Environmental Quality*, 23(6), 1177-1183.
- Inanc B., Inoue Y. [et al.]. 2007. Heavy metal leaching from aerobic and anaerobic landfill bioreactors of co-disposed municipal solid waste incineration bottom ash and shredded low-organic residues. *Journal of Hazardous Materials*, 141(3), 793-802.
- Inbar Y., Hadar Y., Chen Y. 1992. Characterization of humic substances formed during the composting of solid wastes from wineries. *Science of The Total Environment*, 113(1-2), 35-48.

**J**

- Jensen D.L., Ledin A., Christensen T.H. 1999. Speciation of heavy metals in landfill-leachate polluted groundwater. *Water Research*, 33(11), 2642-2650.
- Jimenez E., Garcia V.P. [et al.]. 1993. City refuse compost as a phosphorus source to overcome the P-fixation capacity of sesquioxide-rich soils. *Plant and Soil*, 148(1), 115-127.
- Johnson C., Furrer G. 2002. Influence of biodegradation processes on the duration of CaCO<sub>3</sub> as a pH buffer in municipal, solid waste incinerator bottom ash. *Environmental Science and Technology*, 36(2), 215-220.
- Jun D., Yongsheng Z. [et al.]. 2007. Impacts of aeration and active sludge addition on leachate recirculation

bioreactor. *Journal of Hazardous Materials*, 147(1-2), 240-248.

<b>K</b>
----------

Kalbe U., Berger W. [et al.]. 2008. Evaluation of leaching and extraction procedures for soil and waste. *Waste Management*, 28(6), 1027-1038.

Kang K., Shin H.S., Park, H. 2002. Characterization of humic substances present in landfill leachates with different landfill ages and its implications. *Water Research*, 36(16), 4023-4032.

Kelly R.J. 2002. Solid waste biodegradation enhancements and the evaluation of analytical methods used to predict Waste Stability. Thesis in Environmental Science and Engineering. Faculty of Virginia Polytechnic Institute and State university.

Kelly R.J., Shearer B.D. [et al.]. 2006. Relationships between analytical methods utilized as tools in the evaluation of landfill waste stability. *Waste Management*, 26(12), 1349-1356.

Kim H., Yoshida H. [et al.]. 2010. Air and landfill gas movement through passive gas vents installed in closed landfills. *Waste Management*, 30(3), 465-472.

Kinman R., Nutini D., Walsh J. 1987. Gas enhancement techniques in landfill simulators. *Waste Management and Research*, 5(1), 13-25.

Kirchmann H., Widen P. 1994. Separately collected organic household wastes. Chemical composition and composting characteristics. *SWED.J.AGRIC.RES.*, 24(1), 3-12.

Kjeldsen P., Barlaz M.A. [et al.]. 2002. Present and long-term composition of MSW landfill leachate: A review. *Critical Reviews in Environmental Science and Technology*, 32(4), 297-336.

Koenig A., Bari Q. 2000. Application of Self-Heating Test for Indirect Estimation of Respirometric Activity of Compost: Theory and Practice. *Compost Science and Utilization*, 8(2), 99-107.

Kögel-Knabner I. 2002. The macromolecular organic composition of Plant and microbial residues as inputs to soil organic matter. *Soil Biology and Biochemistry*, 34(2), 139-162.

Koivula N., Hänninen K. 2001. Concentrations of monosaccharides in humic substances in the early stages of humification. *Chemosphere*, 44(2), 271-279.

Komilis D., Ham R., Stegmann R. 1999a. The effect of landfill design and operation practices on waste degradation behavior: A review. *Waste Management and Research*, 17(1), 20-26.

Komilis D., Ham R., Stegmann R. 1999b. The effect of municipal solid waste pretreatment on landfill behavior: A literature review. *Waste Management and Research*, 17(1), 10-19.

Komilis D. 2006. A kinetic analysis of solid waste composting at optimal conditions. *Waste Management*, 26(1), 82-91.

Koshy L., Paris E. [et al.]. 2007. Bioreactivity of leachate from municipal solid waste landfills - assessment of toxicity. *Science of The Total Environment*, 384(1-3), 171-181.

Kosson D., Van Der Sloot H.A. [et al.]. 2002. An Integrated Framework for Evaluating Leaching in Waste Management and Utilization of Secondary Materials. *Environmental Engineering Science*, 19(3), 159-204.

Koukal B., Guéguen C. [et al.]. 2003. Influence of humic substances on the toxic effects of cadmium and zinc to the green alga *Pseudokirchneriella subcapitata*. *Chemosphere*, 53(8), 953-961.

Kulikowska D., Klimiuk E. 2008. The effect of landfill age on municipal leachate composition. *Bioresource Technology*, 99(13), 5981-5985.

Kylefors K., Andreas L., Lagerkvist A. 2003. A comparison of small-scale, pilot-scale and large-scale tests for predicting leaching behaviour of landfilled wastes. *Waste Management*, 23(1), 45-59.

<i>L</i>
----------

- Labanowski J. 2004. Matière organique naturelle et anthropique - Vers une meilleure compréhension de sa réactivité et de sa caractérisation. These de doctorat, Université de Limoges.
- Labanowski J., Gauthier C., Feuillade G. 2003. Fractionation of Organic Matter from a Stabilised MSW Landfill Leachate. In Proceedings Sardinia, 9th International Waste Management and Landfill Symposium, Cagliari, Italy.
- Labanowski J., Feuillade G. 2009. Combination of biodegradable organic matter quantification and XAD-fractionation as effective working parameter for the study of biodegradability in environmental and anthropic samples. *Chemosphere*, 74(4), 605-611.
- Laborda F., Bolea E. [et al.]. 2008. A speciation methodology to study the contributions of humic-like and fulvic-like acids to the mobilization of metals from compost using size exclusion chromatography-ultraviolet absorption-inductively coupled plasma mass spectrometry and deconvolution analysis. *Analytica Chimica Acta*, 606(1), 1-8.
- Lagier T. 2000. Etude des macromolécules de lixiviat: caractérisation et comportement vis-à-vis des métaux. These de doctorat, Université de Limoges.
- Lagier T., Feuillade G., Matejka G. 2001. Influence of organic macromolecules of leachate on the solubility of heavy metals trapped in landfills. In Proceedings Sardinia, 8th International Waste Management and Landfill Symposium, Cagliari, Italy.
- Lanini S., Houi O. [et al.]. 2001. The role of aerobic activity on refuse temperature rise: II. Experimental and numerical modelling. *Waste Management and Research*, 19(1), 58-69.
- Lasaridi K., Stentiford E. 1998. A simple respirometric technique for assessing compost stability. *Water Research*, 32(12), 3717-3723.
- Legret M., Divet L., Marchandise P. 1987. Mobilité et extraction des métaux lourds associés aux boues de stations d'épuration. *Water Research*, 21(5), 541-547.
- Leifeld J., Siebert S., Kögel-Knabner I. 2001. Stabilization of composted organic matter after application to a humus-free sandy mining soil. *Journal of Environmental Quality*, 30(2), 602-607.
- Leikam K., Stegmann R. 1999. Influence of mechanical-biological pretreatment of municipal solid waste on landfill behaviour. *Waste Management and Research*, 17(6), 424-429.
- Leloup M. 2010. Évaluation de l'efficacité de prétraitements de déchets sur leur stabilisation. Utilisation de tests de lixiviation. Rapport de Master Recherche, Université de Limoges.
- Lewin K. 1996. Leaching tests for waste compliance and characterisation: Recent practical experiences. *Science of the Total Environment*, 178, 85-94.
- Li L.Y., Ohtsubo M. [et al.]. 2007. Leachability of municipal solid waste ashes in simulated landfill conditions. *Waste Management*, 27(7), 932-945.
- Liang C., Das K.C., McClendon R.W. 2003. The influence of temperature and moisture contents regimes on the aerobic microbial activity of a biosolids composting blend. *Bioresource Technology*, 86(2), 131-137.
- Lichtfouse E., Chenu C. [et al.]. 1998. A novel pathway of soil organic matter formation by selective preservation of resistant straight-chain biopolymers: chemical and isotope evidence. *Organic Geochemistry*, 28(6), 411-415.
- Lo H. 2005. Metals behaviors of MSWI bottom ash co-digested Anaerobically with MSW. *Resources, Conservation and Recycling*, 43(3), 263-280.
- Lo H., Liao Y. 2007. The metal-leaching and acid-neutralizing capacity of MSW incinerator ash co-disposed with MSW in landfill sites. *Journal of Hazardous Materials*, 142(1-2), 512-519.
- Lo H., Lin K.C. [et al.]. 2009. Biostabilization assessment of MSW co-disposed with MSWI fly ash in anaerobic bioreactors. *Journal of Hazardous Materials*, 162(2-3), 1233-1242.
- Lo H., Kurniawan T.A. [et al.]. 2010. Modeling biogas production from organic fraction of MSW co-

- digested with MSWI ashes in anaerobic bioreactors. *Bioresource Technology*, In Press.
- Lo I.M.C. 1996. Characteristics and treatment of leachates from domestic landfills. *Environment International*, 22(4), 433-442.
- Lopes W., Leite V., Prasad S. 2004. Influence of inoculum on performance of anaerobic reactors for treating municipal solid waste. *Bioresource Technology*, 94(3), 261-266.
- Lornage R. 2006. Comparaison de trois filières de stockage d'ordures menagères - Etude du comportement des déchets en pilotes semi industriels et caractérisation des émissions liquides et gazeuses associées. Thèse de doctorat, Université Claude Bernard - Lyon 1.
- Lornage R., Redon E. [et al.]. 2007. Performance of a low cost MBT prior to landfilling: Study of the biological treatment of size reduced MSW without mechanical sorting. *Waste Management*, 27(12), 1755-1764.
- Luo S., Xiao B. [et al.]. 2009. An experimental study on a novel shredder for municipal solid waste (MSW). *International Journal of Hydrogen Energy*, 34(3), 1270-1274.

<b>M</b>
----------

- Mac Bean A., Rovers F., Farquhar G. 1995. *Solid waste landfill Engineering and Design*. Editions Lavoisier.
- Madrid F., López R., Cabrera F. 2007. Metal accumulation in soil after application of municipal solid waste compost under intensive farming conditions. *Agriculture, Ecosystems & Environment*, 119(3-4), 249-256.
- Mahmoudkhani M., Wilewska-Bien M. [et al.]. 2008. Evaluating two test methods used for characterizing leaching properties. *Waste Management*, 28(1), 133-141.
- Malcolm R., MacCarthy P. 1992. Quantitative evaluation of XAD-8 and XAD-4 resins used in tandem for removing organic solutes from water. *Environment International*, 18(6), 597-607.
- Manlay R.J., Feller C., Swift M. 2007. Historical evolution of soil organic matter concepts and their relationships with the fertility and sustainability of cropping systems. *Agriculture, Ecosystems & Environment*, 119(3-4), 217-233.
- Marcato C. 2007. Origine, devenir et impact du cuivre et du zinc des lisiers porcins. Rôle de la digestion anaérobie. Thèse de doctorat, INSA de Toulouse.
- Mårtensson A., Aulin C. [et al.]. 1999. Effect of humic substances on the mobility of toxic metals in a mature landfill. *Waste Management and Research*, 17(4), 296-304.
- Martinen S.K., Kettunen R.H. [et al.]. 2002. Screening of physical-chemical methods for removal of organic material, nitrogen and toxicity from low strength landfill leachates. *Chemosphere*, 46(6), 851-858.
- Mata-Alvarez J. 2002. The biomethanization of the organic fraction of municipal solid waste. *Water* 21, 59-61.
- Mehta R., Barlaz M.A. [et al.]. 2002. Refuse decomposition in the presence and absence of leachate recirculation. *Journal of Environmental Engineering*, 128(3), 228-236.
- Meraz R. 1997. Décharge contrôlée et production de biogaz : étude sur site et modélisation à l'échelle pilote. Thèse de doctorat, INP de Toulouse.
- Mercier F., Moulin V. [et al.]. 2002. Applications of new surface analysis techniques (NMA and XPS) to humic substances. *Organic Geochemistry*, 33(3), 247-255.
- Michel F.C., Reddy C., Forney L. 1993. Yard waste composting: studies using different mixes of leaves and grass in a laboratory scale system. *Compost Science and Utilization*, 1(3), 85-96.
- Millot N. 1986. Les lixiviats de décharges contrôlées. Caractérisation analytique et études des filières de traitement. Thèse de doctorat, INSA de Lyon.
- Moletta R. 2005. Winery and distillery wastewater treatment by anaerobic digestion. *Water Science and Technology* 51 (1), pp. 137-144.

- Morris J., Vasuki N.C. [et al.]. 2003. Findings from long-term monitoring studies at MSW landfill facilities with leachate recirculation. *Waste Management*, 23(7), 653-666.
- Morvan B. 2000. Méthode de caractérisation des déchets ménagers: analyse sur produit sec. *Déchets - Sciences et Techniques*, 20, 9-11.
- Muller U., Rubner K. 2006. The microstructure of concrete made with municipal waste incinerator bottom ash as an aggregate component. *Cement and Concrete Research*, 36(8), 1434-1443
- Münnich K., Mahler C., Fricke K. 2006. Pilot project of mechanical-biological treatment of waste in Brazil. *Waste Management*, 26(2), 150-157.
- Mustin M. 1987. *Le compost, gestion de la matière organique*. Paris.

<i>N</i>
----------

- Nanny M.A., Ratasuk N. 2002. Characterization and comparison of hydrophobic neutral and hydrophobic acid dissolved organic carbon isolated from three municipal landfill leachates. *Water Research*, 36(6), 1572-1584.
- Norbu T., Visvanathan C., Basnayake, B. 2005. Pretreatment of municipal solid waste prior to landfilling. *Waste Management*, 25(10), 997-1003.

<i>O</i>
----------

- Obaja D., Macé S. [et al.]. 2003. Nitrification, denitrification and biological phosphorus removal in piggery wastewater using a sequencing batch reactor. *Bioresource Technology*, 87(1), 103-111.
- O'Keefe D.M., Chynoweth D.P. 2000. Influence of phase separation, leachate recycle and aeration on treatment of municipal solid waste in simulated landfill cells. *Bioresource Technology*, 72(1), 55-66.
- Olivier F. 2003. *Tassement des déchets en CSD de classe II: du site au modèle*. Thèse de doctorat, Université de Grenoble I.
- Öman C.B., Junestedt C. 2008. Chemical characterization of landfill leachates - 400 parameters and compounds. *Waste Management*, 28(10), 1876-1891.
- Otieno F. 1994. Stabilization of solid waste through leachate recycling. *Waste Management and Research*, 12(1), 93-100.
- Øygard J.K., Gjengedal E., Røyset O. 2007. Size charge fractionation of metals in municipal solid waste landfill leachate. *Water Research*, 41(1), 47-54.
- Özkaya B., Demir A., Bilgili M. 2004. Enhanced stabilization and methane potential of MSWs in a field-scale landfill with leachate recirculation. *International Journal of Environment and Pollution*, 21(3), 277-292.

<i>P</i>
----------

- Paavola T., Syväsalto E., Rintala J. 2006. Co-digestion of manure and biowaste according to the EC animal by-products regulation and Finnish national regulations. *Water Science and Technology* 53 (8), 223-231.
- Pacey J. 1997. Insights to enhanced landfill gas generation. In *Proceedings Sardinia, 6th International Waste Management and Landfill Symposium*, Cagliari, Italy.
- Palmisano A., Barlaz M. 1996. *Microbiology of solid waste*. Editions Lavoisier.
- Palmowski L., Muller J., 1999. Influence of the size reduction of organic waste on their anaerobic digestion. In *Proceedings 2<sup>nd</sup> International Symposium on anaerobic digestion of solid waste*, Barcelone, Espagne.
- Palmowski L., Müller J., 2000. Influence of the size reduction of organic waste on their anaerobic digestion,

Water Science and Technology 41 (3), pp. 155-162.

Parker T., Apps G., Rosevear A. 2003. Evaluation of chemical analysis techniques for trace components of landfill gas. In Proceedings Sardinia, 9th International Waste Management and Landfill Symposium, Cagliari, Italy.

Parlanti E., Morin B., Vacher L. 2002. Combined 3D-spectrofluorometry, high performance liquid chromatography and capillary electrophoresis for the characterization of dissolved organic matter in natural waters. *Organic Geochemistry*, 33(3), 221-236.

Parodi A., Feuillade G. Mansour A.A. 2008. Assessment of the part of hydrosoluble organic compounds present in waste using Leaching Test. *International Review of Chemical Engineering*.

Parodi A., Feuillade G. Mansour A.A. 2009. Municipal solid waste methanisation: organic matter fractionations from leaching tests. In Proceedings Sardinia, 12th International Waste Management and Landfill Symposium, Cagliari, Italy.

Parodi A., Feuillade G. Mansour A.A. 2010. Optimization of Municipal Solid Waste Leaching Test procedure: Assessment of the part of hydrosoluble organic compounds. *Journal of Hazardous Materials*, publication soumise.

Peres C., Sanchez C.R. [et al.]. 1992. Anaerobic biodegradability of the organic components of municipal solid wastes (OFMSW). *Water Science and Technology*, 25(7), 285-293.

Piccolo A., Nardi S., Concheri G. 1996. Macromolecular changes of humic substances induced by interaction with organic acids. *European Journal of Soil Science*, 47(3), 319-328.

Piccolo A., Conte P. [et al.]. 2002. Reduced heterogeneity of a lignite humic acid by preparative HPSEC following interaction with an organic acid. Characterization of size-separates by Pyr-GC-MS and <sup>1</sup>H-NMR spectroscopy. *Environmental Science and Technology*, 36(1), 76-84.

Pichler M., Kögel-Knabner I. 2000. Chemolytic analysis of organic matter during aerobic and anaerobic treatment of municipal solid waste. *Journal of Environmental Quality*, 29(4), 1337-1344.

Pivato A., Gaspari L. 2006. Acute toxicity test of leachates from traditional and sustainable landfills using luminescent bacteria. *Waste Management*, 26(10), 1148-1155.

Pohland F.G, Al-Yousfi B. 1994. Design and operation of landfills for optimum stabilization and biogas production. *Water Science and Technology*, 30(12), 117-124.

Pohland F.G. 1980. Leachate recycle as landfill management option. *Journal of the Environmental Engineering Division*, 106(6), 1057-1069.

Ponsá S., Gea T. [et al.]. 2008. Comparison of aerobic and anaerobic stability indices through a MSW biological treatment process. *Waste Management*, 28(12), 2735-2742.

Prantl R., Tesar M. [et al.]. 2006. Changes in carbon and nitrogen pool during in-situ aeration of old landfills under varying conditions. *Waste Management*, 26(4), 373-380.

Price G., Barlaz M., Hater G. 2003. Nitrogen management in bioreactor landfills. *Waste Management*, 23(7), 675-688.

Purcell B., Sollars C., Butler A. 1997. Enhanced moisture movement in simulated landfill environments. In Proceedings Sardinia, 6th International Waste Management and Landfill Symposium, Cagliari, Italy.

## Q

Qu X., He P.J., Shao L.M. [et al.]. 2008. Effect of waste composition on anaerobic methanization of municipal solid waste. *Zhongguo Huanjing Kexue-China Environmental Science*, 28 (8), 730-735.

Quevauviller P., Van der Sloot H.A. [et al.]. 1996. Conclusions of the workshop: Harmonization of leaching/extraction tests for environmental risk assessment. *Science of the Total Environment*, 178, 133-139.

## R

- Ramade F. 1998. Dictionnaire encyclopédique des sciences de l'eau: biogéochimie et écologie des eaux continentales et littorales. Ediscience.
- Read A., Hudgins M. [et al.]. 2001. The successful demonstration of aerobic landfilling. The potential for a more sustainable solid waste management approach. *Resources, Conservation and Recycling*, 32(2), 115-146.
- Reinhart D., Al-Yousfi A. 1996. The impact of leachate recirculation on municipal solid waste landfill operating characteristics. *Waste Management and Research*, 14(4), 337-346.
- Reinhart D., McCreanor P., Townsend T. 2002. The bioreactor landfill: Its status and future. *Waste Management and Research*, 20(2), 172-186.
- Rendek E., Ducom G., Germain P. 2007. Assessment of MSWI bottom ash organic carbon behavior: A biophysicochemical approach. *Chemosphere*, 67(8), 1582-1587.
- Renou S., Givaudan J.G. [et al.]. 2008. Landfill leachate treatment: Review and opportunity. *Journal of Hazardous Materials*, 150(3), 468-493.
- Robinson H., Knox K. [et al.]. 2005. Leachate quality from landfilled MBT waste. *Waste Management*, 25(4 SPEC. ISS.), 383-391.
- Rodríguez J., Castrillón L. [et al.]. 2004. Removal of non-biodegradable organic matter from landfill leachates by adsorption. *Water Research*, 38(14-15), 3297-3303.

## S

- Sæbø A., Ferrini, F. 2006. The use of compost in urban green areas - A review for practical application. *Urban Forestry & Urban Greening*, 4(3-4), 159-169.
- Šan I., Onay T., 2001. Impact of various leachate recirculation regimes on municipal solid waste degradation. *Journal of Hazardous Materials*, 87(1-3), 259-271.
- Sánchez E., Borja R. [et al.]. 2001. Effect of substrate concentration and temperature on the anaerobic digestion of piggery waste in a tropical climate. *Process Biochemistry*, 37(5), 483-489.
- Sánchez-Monedero M., Roig A. [et al.]. 2001. Nitrogen transformation during organic waste composting by the Rutgers system and its effects on pH, EC and maturity of the composting mixtures. *Bioresource Technology*, 78(3), 301-308.
- Sanders W., Geerink M. [et al.]. 2000. Anaerobic hydrolysis kinetics of particulate substrates. *Water Science and Technology*, 41(3), 17-24
- Sans C., Mata-Alvarez J. [et al.]. 1995. Acidogenic fermentation of organic urban wastes in a plug-flow reactor under thermophilic conditions. *Bioresource Technology*, 54(2), 105-110.
- Savary C. 2008. Caractérisation par analyse gravimétrique de macromolécules organiques extraites. Rapport de master recherche, Université de Limoges.
- Scaglia B., Erriquens F.G. [et al.]. 2007. Precision determination for the specific oxygen uptake rate (SOUR) method used for biological stability evaluation of compost and biostabilized products. *Bioresource Technology*, 98(3), 706-713.
- Scaglia B., Confalonieri R. [et al.]. 2010. Estimating biogas production of biologically treated municipal solid waste. *Bioresource Technology*, 101(3), 945-952.
- Schnitzer M. 1991. Soil organic matter - the next 75 years. *Soil Science*, 151(1), 41-58.
- Sekkat N., Guerbet M., Jouany J. 2001. A comparison of toxicity detection in urban and industrial waste leachates by eight short-term bioassays. *Revue des Sciences de l'Eau*, 14(1), 63-72.
- Seo D., Kim Y.J. [et al.]. 2007. Characterization of dissolved organic matter in leachate discharged from

- final disposal sites which contained municipal solid waste incineration residues. *Journal of Hazardous Materials*, 148(3), 679-692.
- Sharma V., Caudatelli M. [et al.]. 1997. Processing of urban and agro-industrial residues by aerobic composting: Review. *Energy Conversion and Management*, 38(5), 453-478.
- Silva A.C., Dezotti M., Sant'Anna G.L. 2004. Treatment and detoxification of a sanitary landfill leachate. *Chemosphere*, 55(2), 207-214.
- Smårs S., Gustafsson L. [et al.]. 2002. Improvement of the composting time for household waste during an initial low pH phase by mesophilic temperature control. *Bioresource Technology*, 84(3), 237-241.
- Smidt E., Meissl K. 2007. The applicability of Fourier transform infrared (FT-IR) spectroscopy in waste management. *Waste Management*, 27(2), 268-276.
- Sosnowski P., Wieczorek A., Ledakowicz S. 2003. Anaerobic co-digestion of sewage sludge and organic fraction of municipal solid wastes. *Advances in Environmental Research*, 7(3), 609-616.
- Soyez K., Plickert S. 2002. Mechanical-biological pre-treatment of waste: State of the art and potentials of biotechnology. *Acta Biotechnologica*, 22(3-4), 271-284.
- Sponza D.T., Agdag O.N. 2005. Effects of shredding of wastes on the treatment of municipal solid wastes (MSWs) in simulated anaerobic recycled reactors. *Enzyme and Microbial Technology*, 36(1), 25-33.
- Stinson J., Ham R. 1995. Effect of lignin on the anaerobic decomposition of cellulose as determined through the use of a biochemical methane potential method. *Environmental Science and Technology*, 29(9), 2305-2310.
- Suflita J., Gerba C.P. [et al.]. 1992. The world's largest landfill. *Environmental Science and Technology*, 26(8), 1486-1495.
- Svensson M., Berg M. [et al.]. 2007. The effect of isosaccharinic acid (ISA) on the mobilization of metals in municipal solid waste incineration (MSWI) dry scrubber residue. *Journal of Hazardous Materials*, 144(1-2), 477-484.

<b>T</b>
----------

- Tessier A., Campbell P., Blsson M., 1979. Sequential extraction procedure for the speciation of particulate trace metals. *Analytical Chemistry*, 51(7), 844-851.
- Thurman E., Malcolm R. 1981. Preparative isolation of aquatic humic substances. *Environmental Science and Technology*, 15(4), 463-566.
- Trably E. 2002. Etude et optimisation de la biodégradation d'hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAPs) et de polychlorobiphényles (PCBs) au cours de la digestion anaérobie et aérobie de boues urbaines contaminées. Thèse de doctorat, INRA de Narbonne.
- Tränkler J., Visvanathan C. [et al.]. 2005. Influence of tropical seasonal variations on landfill leachate characteristics - Results from lysimeter studies. *Waste Management*, 25(10), 1013-1020.
- Tremier A., De Guardia A. [et al.]. 2005. A respirometric method for characterising the organic composition and biodegradation kinetics and the temperature influence on the biodegradation kinetics, for a mixture of sludge and bulking agent to be co-composted. *Bioresource Technology*, 96 (2), 169-180.
- Tuomela M., Vikman M. [et al.]. 2000. Biodegradation of lignin in a compost environment: A review. *Bioresource Technology*, 72(2), 169-183.

<b>V</b>
----------

- Valencia R., Van der Zon W. [et al.]. 2009. The effect of hydraulic conditions on waste stabilisation in bioreactor landfill simulators. *Bioresource Technology*, 100(5), 1754-1761.

- Van Gerven T., Cooreman H. [et al.]. 2007. Extraction of heavy metals from municipal solid waste incinerator (MSWI) bottom ash with organic solutions. *Journal of Hazardous Materials*, 140(1-2), 376-381.
- Van Soest P., Mertens D. 1974. Composition and nutritive characteristics of low quality cellulosic wastes. *Federation Proceedings*, 33(8), 1942-1944.
- Venglovsky J., Sasakova N. [et al.]. 2005. Evolution of temperature and chemical parameters during composting of the pig slurry solid fraction amended with natural zeolite. *Bioresource Technology*, 96(2), 181-189.
- Vigneron V., Ponthieu M. [et al.]. 2007. Nitrate and nitrite injection during municipal solid waste anaerobic biodegradation. *Waste Management*, 27(6), 778-791.
- Vorkamp K., Herrmann R., Hvitved-Jacobsen T. 2001. Characterisation of organic matter from anaerobic digestion of organic waste by aerobic microbial activity. *Bioresource Technology*, 78(3), 257-265.

<b>W</b>
----------

- Wagland S., Tyrrel S.F. [et al.]. 2009. Test methods to aid in the evaluation of the diversion of biodegradable municipal waste (BMW) from landfill. *Waste Management*, 29(3), 1218-1226.
- Walkley A., Black C. 1934. An examination of the Degtjareff method for determining soil organic matter and a proposal modification of the chromic acid titration method. *Soil Science*, 37, 29-38.
- Wang Q., Matsufuji Y. [et al.]. 2006. Research on leachate recirculation from different types of landfills. *Waste Management*, 26(8), 815-824.
- Wang Y., Byrd C., Barlaz M., 1994. Anaerobic biodegradability of cellulose and hemicellulose in excavated refuse samples using a biochemical methane potential assay. *Journal of Industrial Microbiology*, 13(3), 147-153.
- Wang Y., Zhang Y. [et al.]. 2009. Effects of volatile fatty acid concentrations on methane yield and methanogenic bacteria. *Biomass and Bioenergy*, 33(5), 848-853.
- Warith M., Smolkin P., Caldwell J. 2001. Effect of leachate recirculation on enhancement of biological degradation of solid waste: Case study. *Practice Periodical of Hazardous, Toxic, and Radioactive Waste Management*, 5(1), 40-46.
- Warith M. 2002. Bioreactor landfills: Experimental and field results. *Waste Management*, 22(1), 7-17.
- Weber W.J., Huang Q. 2003. Inclusion of Persistent Organic Pollutants in Humification Processes: Direct Chemical Incorporation of Phenanthrene via Oxidative Coupling. *Environmental Science & Technology*, 37(18), 4221-4227.
- Wei Z., Xi B. [et al.]. 2007. Effect of inoculating microbes in municipal solid waste composting on characteristics of humic acid. *Chemosphere*, 68(2), 368-374.
- Wens P., Vercauteren T. [et al.]. 2001. Factors inhibiting anaerobic degradation in a landfill. In *Proceedings Sardinia, 8th International Waste Management and Landfill Symposium, Cagliari, Italy*.
- Weppen P. 2002. Determining compost maturity: Evaluation of analytical properties. *Compost Science and Utilization*, 10(1), 6-15.
- Wilke B., Riepert F. [et al.]. 2008. Ecotoxicological characterization of hazardous wastes. *Ecotoxicology and Environmental Safety*, 70(2), 283-293.
- Wu B., Taylor C.M. [et al.]. 2001. Factors controlling alkylbenzene sorption to municipal solid waste. *Environmental Science and Technology*, 35(22), 4569-4576.

<b>Y</b>
----------

- Youcai Z., Luochun W. [et al.]. 2002. A comparison of refuse attenuation in laboratory and field scale

lysimeters. *Waste Management*, 22(1), 29-35.

Yue Z., Yu H., Wang Z. 2007. Anaerobic digestion of cattail with rumen culture in the presence of heavy metals. *Bioresource Technology*, 98(4), 781-786.

Yuen S., Styles J., McMahon T. 1995. An active landfill management by leachate recirculation – a review and an outline of a full-scale project. In *Proceedings Sardinia, 5th International Waste Management and Landfill Symposium*, Cagliari, Italy.

Yuen S. 1999. Bioreactor landfills promoted by leachate recirculation: a full-scale study. Université de Melbourne.

<b>Z</b>
----------

Zbytniewski R., Buszewski B. 2005. Characterization of natural organic matter (NOM) derived from sewage sludge compost. Part 2: multivariate techniques in the study of compost maturation. *Bioresource Technology*, 96(4), 479-484.

Zhang R., El-Mashad H.M. [et al.]. 2007. Characterization of food waste as feedstock for anaerobic digestion. *Bioresource Technology*, 98(4), 929-935.

Zhou P., Yan H., Gu B. 2005. Competitive complexation of metal ions with humic substances. *Chemosphere*, 58(10), 1327-1337.

Zhou Q., Cabaniss S.E., Maurice P.A. 2000. Considerations in the use of high-pressure size exclusion chromatography (HPSEC) for determining molecular weights of aquatic humic substances. *Water Research*, 34(14), 3505-3514.



# ANNEXES

---

**ANNXE 1 :** Composition des déchets ménagers et assimilés selon le MODECOM 93.

**ANNXE 2 :** Nomenclature des pilotes 68 L du projet BIOPTIME .

**ANNXE 3 :** Influence des interactions sur le dosage du plomb, du cuivre et du Nickel.

**ANNXE 4 :** Production cumulée de biogaz des 4 casiers ELIA.

**ANNXE 5 :** Critères minimaux applicables aux rejets d'effluents liquides dans le milieu naturel.

**ANNXE 6 :** Évolution de la matière organique par fractionnement selon le caractère hydrophobe des molécules organiques extraites des lixiviats issus des 4 casiers ELIA

**ANNXE 7 :** Evolution de la composition chimique et physicochimique des lixiviats au cours de l'enfouissement pour les pilotes BIOPTIME

**ANNXE 8 :** Composition du lixiviat lors de l'étape de Saturation / Désaturation



**ANNEXE 1***Composition des déchets ménagers et assimilés selon le MODECOM 93*

Classe		Déchet	% humide	% sec	% carbone
Déchets putrescible s	Déchets de jardin	Feuilles mortes	2,88	1,28	46
	Déchets alimentaires	Marc de café et thé	2,016	0,77	
		Epluchures de légumes et fruits	14,4	5,5	48,5
		Féculents cuits	2,304	0,88	
		Viande	4,32	1,65	59,6
		Pain	2,88	1,1	
<b>Somme déchets putrescibles</b>			<b>28,8</b>	<b>11,18</b>	<b>50,3</b>
Papiers	Emballages (sacs en papier)	1,4	1,67	43,4	
	Journaux, brochures	3,6	4,31	49,1	
	Magazines (papier glacé)	4,7	5,62	32,9	
	Autres papiers (enveloppes, papier ordinateur)	6,3	7,54	43,4	
<b>Somme papiers</b>			<b>16</b>	<b>19,14</b>	<b>41,6</b>
Cartons	Emballages carton plat (boîtes d'œufs, cartons de yaourts)	3	3,63	43	
	Emballages cartons ondulés	5	6,05		
	Autres cartons	1,3	1,57		
<b>Somme cartons</b>			<b>9,3</b>	<b>11,25</b>	<b>43</b>
Composites	Emballages complexes de carton (tétra brik)	1,2	1,53		
	Autres emballages (sachet de café)	0,2	0,25		
<b>Somme composites</b>			<b>1,4</b>	<b>1,78</b>	
Textiles	Emballages textiles (filets de fruits et légumes)	0,2	0,23		
	Habits, chiffons, collants	2,4	2,75	48	
	Textiles sanitaires	3,1	3,55		
<b>Somme textiles</b>			<b>5,7</b>	<b>8,31</b>	<b>48</b>

Classe	Déchet	% humide	% sec	% carbone
Plastiques	Films polyoléfinés (PE et PP) : sacs de supermarché	5,9	7,4	85,2
	Bouteilles transparentes PVC (eau, huile)	1,1	1,38	45,2
	Bouteilles PET transparentes (boissons gazeuses)	0,4	0,5	63,3
	Bouteilles et flacons polyoléfinés : lait, produit vaisselle	1,4	1,76	
	Autres emballages PVC (flacons opaques)	0,3	0,38	45,2
	Bouteilles opaques PET	0,2	0,25	63,3
	Déchets polystyrènes (boîte à œufs, barquettes)	1,1	1,38	87,1
	Autres déchets polystyrènes : alvéoles, pots de yaourts	0,3	0,38	87,1
	Autres déchets plastiques : tuyaux, jouets	0,4	0,5	
<b>Somme plastiques</b>		<b>11,1</b>	<b>13,93</b>	<b>83,4</b>
Combustibles non classés	Emballages combustibles (boîtes de camembert)	0,8	0,81	
	bois	0,8	0,81	49
	cuir	0,8	0,81	60
	caoutchouc	0,8	1,02	69,7
<b>Somme combustibles non classés</b>		<b>3,2</b>	<b>3,46</b>	<b>59,6</b>
Verres	Bouteilles en verre (de vin ...)	13,1	16,67	0,5
<b>Somme verre</b>		<b>13,1</b>	<b>16,67</b>	<b>0,5</b>
Métaux	Objets en aluminium (canettes et autres)	0,7	0,89	4,5
	Boîtes de conserve et autres métaux ferreux et cuivre	3,4	4,33	
<b>Somme métaux</b>		<b>4,1</b>	<b>5,22</b>	<b>4,5</b>
Incombustibles non classés	Gravats, sables et graviers	6,8	8,48	1
<b>Somme incombustibles non classés</b>		<b>6,8</b>	<b>8,48</b>	<b>1</b>
Déchets spéciaux	Déchets spéciaux en tout genre (chiffon avec cirage, piles, médicaments)	0,5	0,57	
<b>Somme déchets spéciaux</b>		<b>0,5</b>	<b>0,57</b>	
<b>TOTAL</b>		<b>100</b>	<b>100</b>	<b>37,4</b>

**ANNEXE 2***Nomenclature des pilotes 68 L du projet BIOPTIME*

La nomenclature définie pour l'ensemble des modalités testées indique :

- le type de prétraitement : témoin (C), prétraitement aérobic (A), mâchefers (B), inoculation (I)
- le moment de saturation / désaturation : au lancement (\*)
- le genre : boues de vaches (P), boues de STEP (S)
- le niveau : faible (L : < 10 %), moyen (M : entre 10 et 20 %), haut (H : > 20 %)
- le numéro (1-2-3)
- le répété (x-y-z-t).

Configuration	Prétraitements Conditions		Nom	Etat	Durée (mois)
<b>Configuration 1</b> Saturation - Désaturation  à 6 mois	Témoin	-	<b>C</b>	en cours	28
	Prétraitement aérobic	niveau bas	<b>A_L1</b>	arrêt	22
		niveau bas	<b>A_L3</b>	arrêt	20
		niveau moyen	<b>A_M3</b>	arrêt	19
		niveau haut	<b>A_H</b>	arrêt	19
	Ajout mâchefers	type B	<b>B_2</b>	arrêt	24
		type A	<b>B_1</b>	arrêt	24
	Ajout	boues vaches	<b>I_P</b>	arrêt	23
		boues mésophiles	<b>I_S</b>	arrêt	24
	<b>Configuration 2</b> Saturation - Désaturation  Au départ	Témoin	-	<b>C*</b>	en cours
Ajout mâchefers		type A	<b>B*_1</b>	en cours	20
Prétraitement aérobic		niveau bas	<b>A*_L2</b>	arrêt	15
		niveau moyen	<b>A*_M1</b>	arrêt	15
Ajout mâchefers		type B	<b>B*_2x</b>	en cours	12
		type B	<b>B*_2y</b>	en cours	12
		type B	<b>B*_2z</b>	en cours	12
		type B	<b>B*_2t</b>	en cours	7

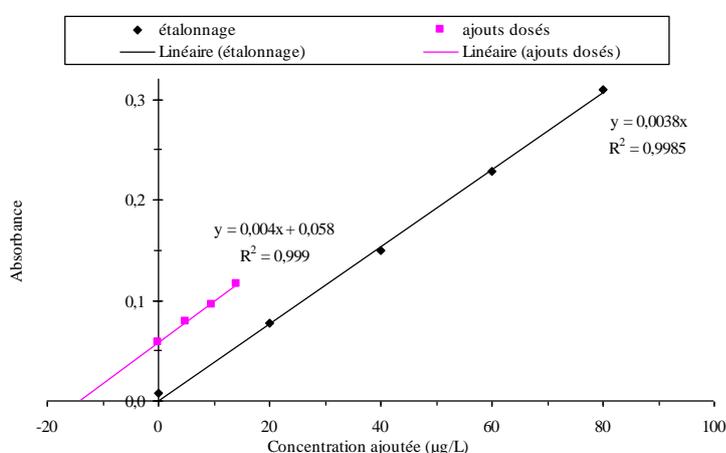


## ANNEXE 3

### *Influence des interactions sur le dosage du plomb, du cuivre et du Nickel*

#### ► Influence des interactions sur le dosage du plomb :

La concentration en Pb dans le lixiviat issu d'un pilote 68L est mesurée par a) mesure directe à partir d'une droite d'étalonnage et b) en effectuant des ajouts dosés ; les résultats obtenus sont comparés entre eux (Figure 77).



Etalonnage (ppb)	Ajouts dosés (ppb)	Ecart ajouts/étalon (%)
15,19	14,35	5,5

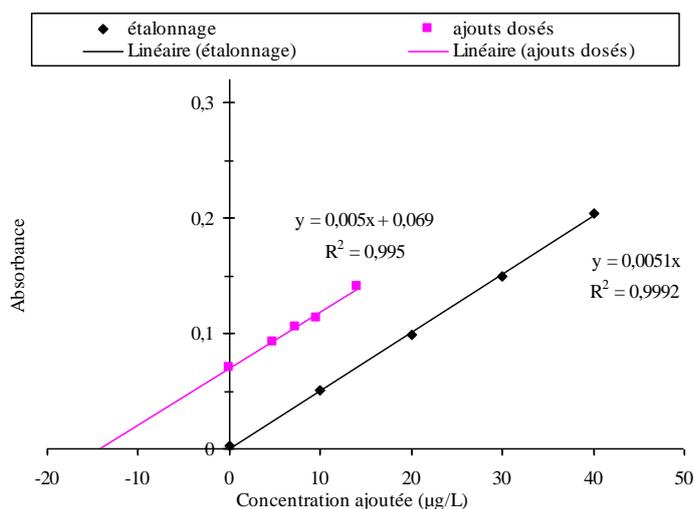
*Essais réalisés sur un lixiviat minéralisé*

Figure 77 : Ajouts dosés pour le dosage du Pb dans un lixiviat minéralisé.

Ainsi, pour un même échantillon, l'écart entre les deux méthodes de dosage n'est que de 5,5% ; aucune interaction significative de la matrice organique n'est donc préjudiciable au dosage du plomb. Effectuer un dosage par ajouts dosés n'est donc pas nécessaire pour doser le plomb.

#### ► Influence des interactions sur le dosage du cuivre :

Après minéralisation et dilution au 1/2, la concentration en Cu dans le lixiviat issu d'un pilote 68L est mesurée par mesure directe à partir d'une droite d'étalonnage et en effectuant des ajouts dosés ; les résultats obtenus sont comparés entre eux (Figure 78).



Étalonnage (ppb)	Ajouts dosés (ppb)	Ecart ajouts/étalon (%)
13,87	14,09	1,6

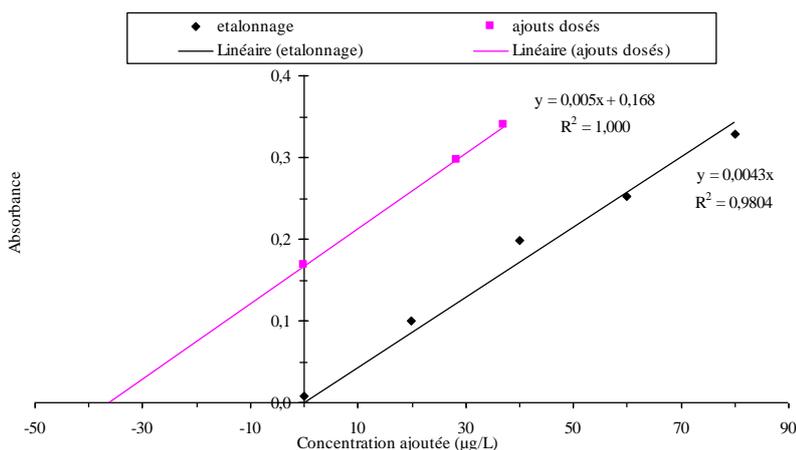
Essais réalisés sur un lixiviat minéralisé

Figure 78 : Ajouts dosés pour le dosage du Cu dans un lixiviat minéralisé.

Les deux méthodes de dosage donnent une teneur en cuivre qui ne diffère que de 1,6%. Effectuer un dosage par ajouts dosés n'est donc pas nécessaire pour doser ce métal car il n'y a aucune interaction significative de la matrice organique.

#### ► Influence des interactions sur le dosage du nickel :

La concentration en Ni dans le lixiviat issu d'un pilote 68L est mesurée par mesure directe à partir d'une droite d'étalonnage et en effectuant des ajouts dosés ; les résultats obtenus sont comparés entre eux (Figure 79).



Étalonnage (ppb)	Ajouts dosés (ppb)	Ecart ajouts/étalon (%)
34,71	36,25	4,4

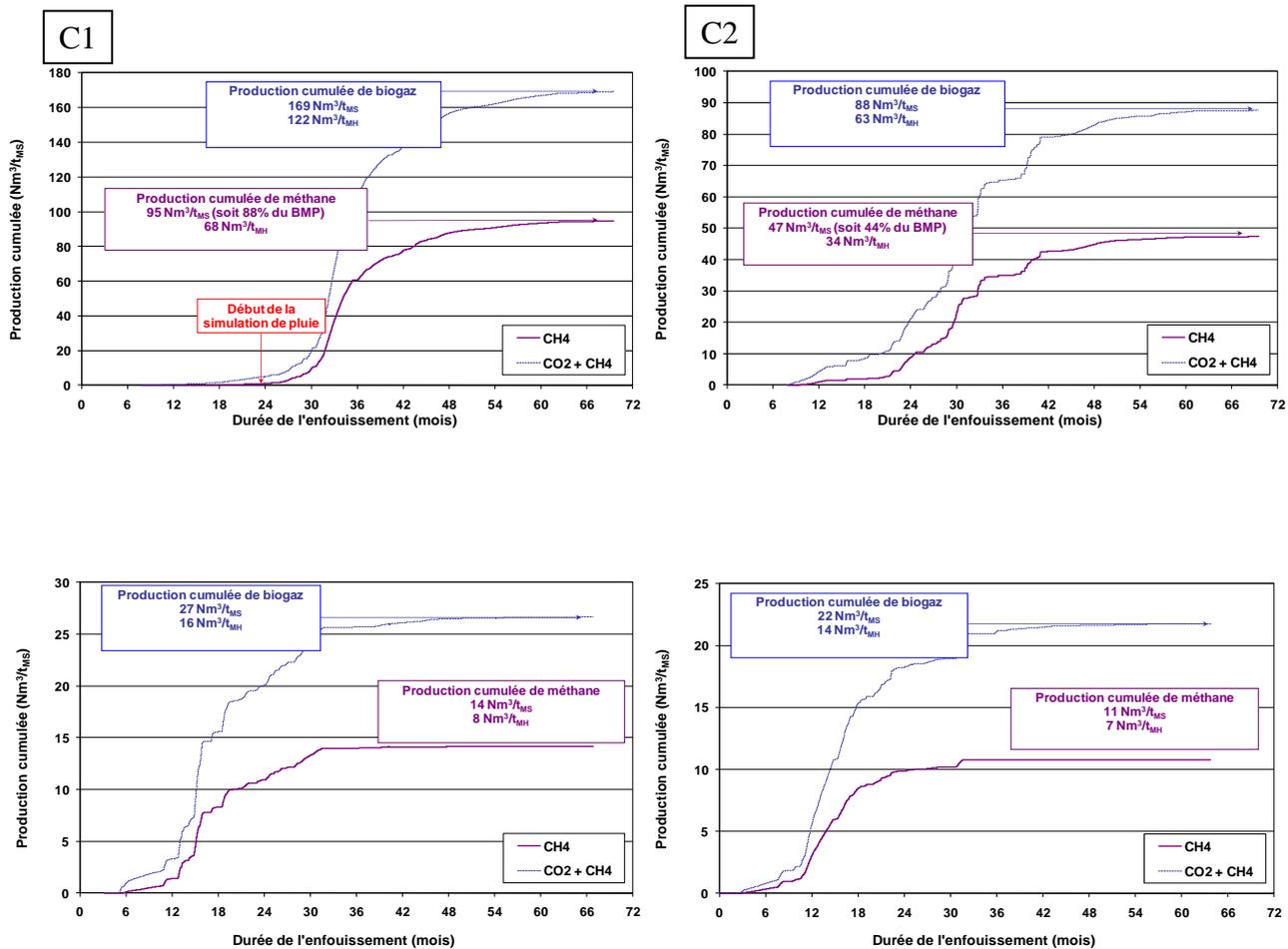
Essais réalisés sur un lixiviat minéralisé

Figure 79 : Ajouts dosés pour le dosage du Ni dans un lixiviat minéralisé.

Aucune interaction significative de la matrice organique n'est observable car l'écart entre les deux méthodes de dosage n'est que de 5,5% ; la mise en place d'ajouts dosés n'est donc pas nécessaire pour doser le nickel.

## ANNEXE 4

### Production cumulée de biogaz des 4 casiers ELIA



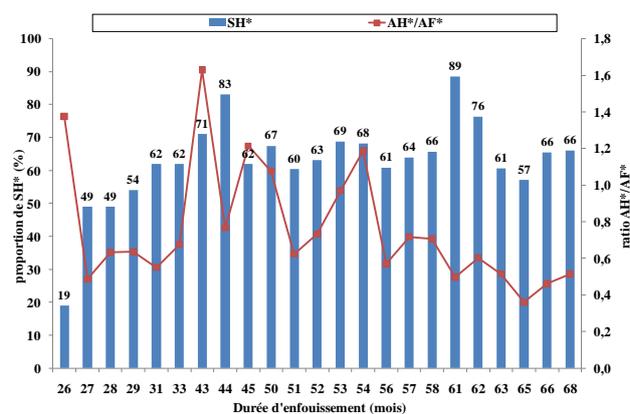
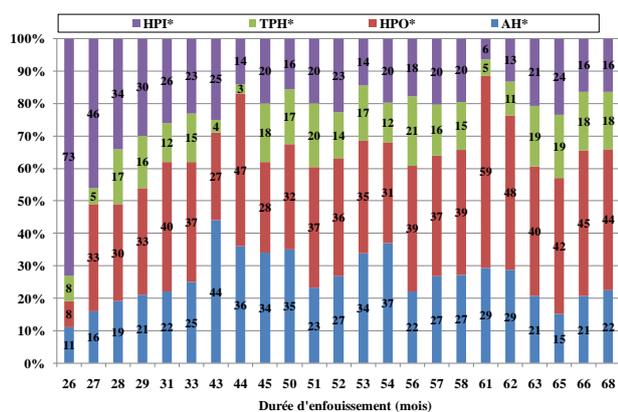
**ANNEXE 5***Critères minimaux applicables aux rejets d'effluents liquides dans le milieu naturel**Arrêté du 9 Septembre 1997, modifié par l'Arrêté du 19 Janvier 2006*

<b>Paramètres</b>	<b>Valeur limite</b>
Matières En Suspension totale	< 100 mg/L si flux journalier max. < 15 kg/j < 35 mg/L au-delà
COT	< 70 mg/L
DCO	< 300 mg/L si flux journalier max. < 100 kg/j < 125 mg/L au-delà
DBO <sub>5</sub>	< 100 mg/L si flux journalier max < 30 kg/j < 30 mg/L au-delà
Azote global	Concentration moyenne mensuelle < 30 mg/L si flux journalier max > 50 kg/j
Phosphore total	Concentration moyenne mensuelle < 10 mg/L si flux journalier max > 15 kg/j
Phénols	< 0.1 mg/L si le rejet dépasse 1 g/j
Métaux lourds (somme des concentrations en Cr, Cd, Hg, Pb, Cu, As, Ni, Zn, Mn, Sn, Fe, Al)	< 15 mg/L
Cr <sup>VI</sup>	< 0.1 mg/L si le rejet dépasse 1 g/j
Cd	< 0.2 mg/L
Pb	< 0.5 mg/L si le rejet dépasse 5 g/j
Hg	< 0.05 mg/L
As	< 0.1 mg/L
Fluor et composés (en F)	< 15 mg/L si le rejet dépasse 150 g/j
CN libres	< 0.1 mg/L si le rejet dépasse 1 g/j
Hydrocarbures totaux	< 10 mg/L si le rejet dépasse 100 g/j
Composés organiques halogénés	< 1 mg/L si le rejet dépasse 30 g/j

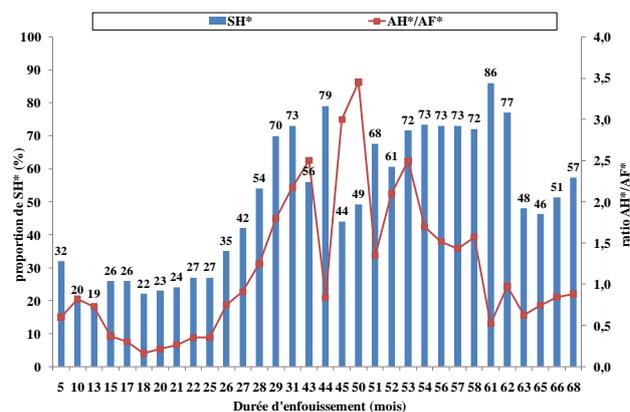
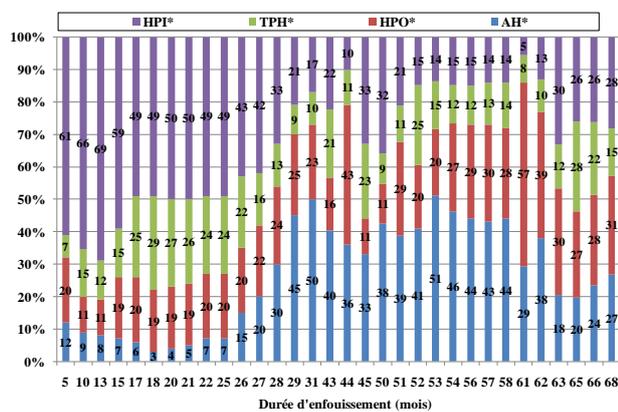
## ANNEXE 6

### *Évolution de la matière organique par fractionnement selon le caractère hydrophobe des molécules organiques extraites des lixiviats issus des 4 casiers ELIA*

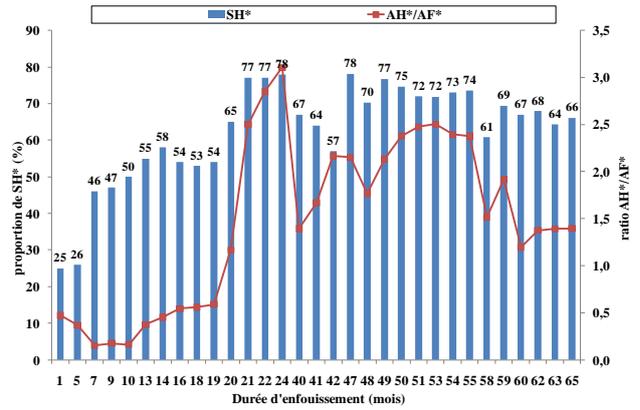
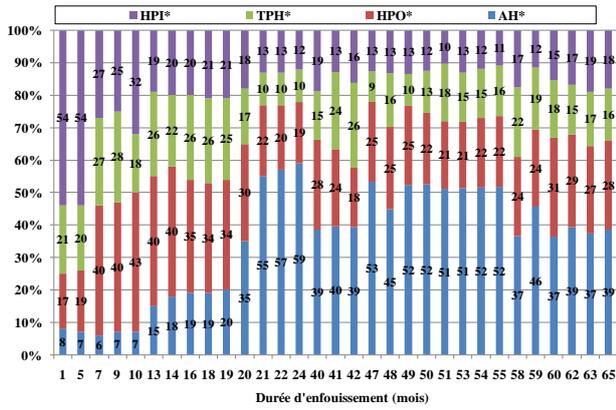
#### ▪ Casier C1



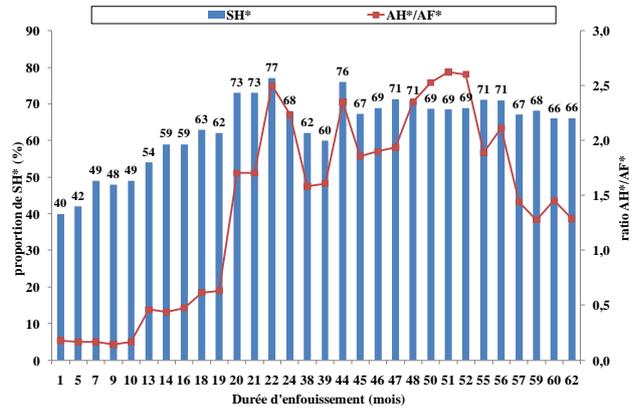
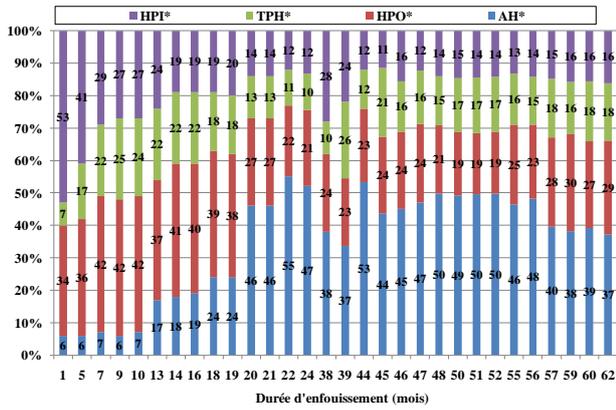
#### ▪ Casier C2



▪ Casier C3



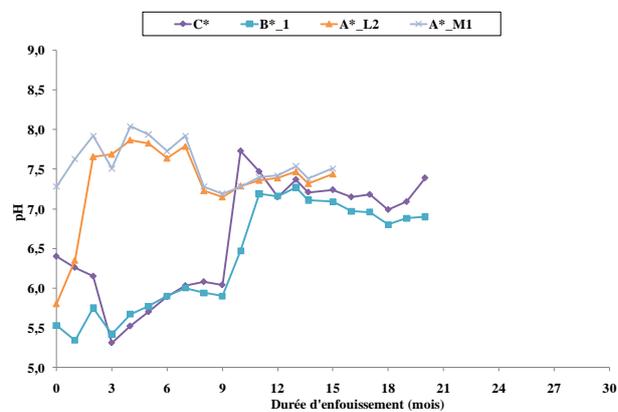
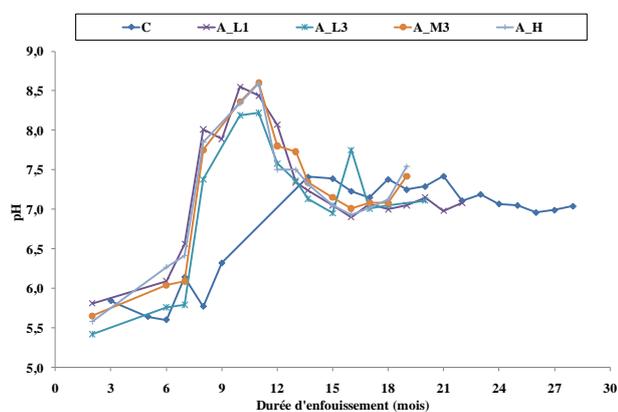
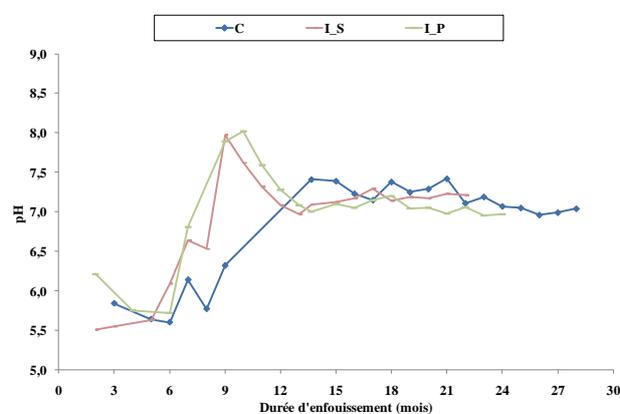
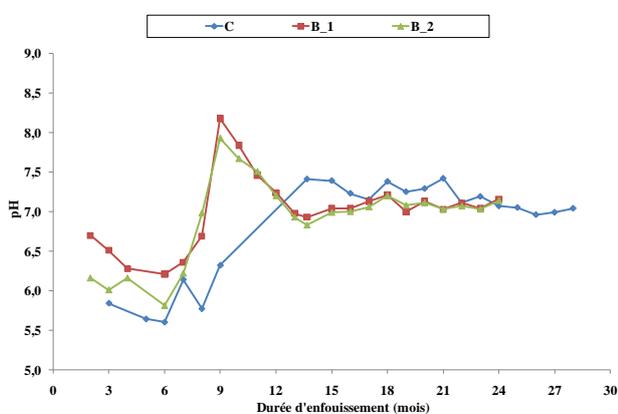
▪ Casier C4



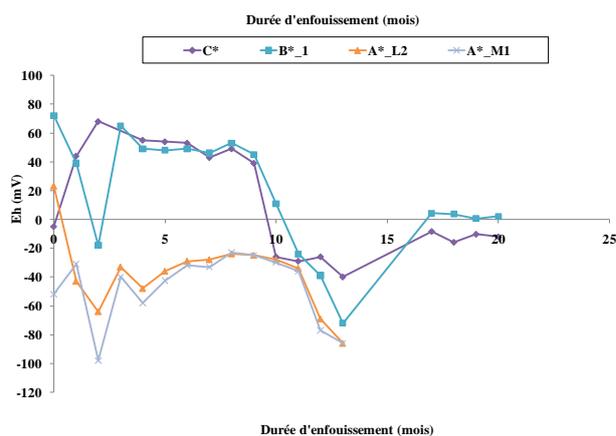
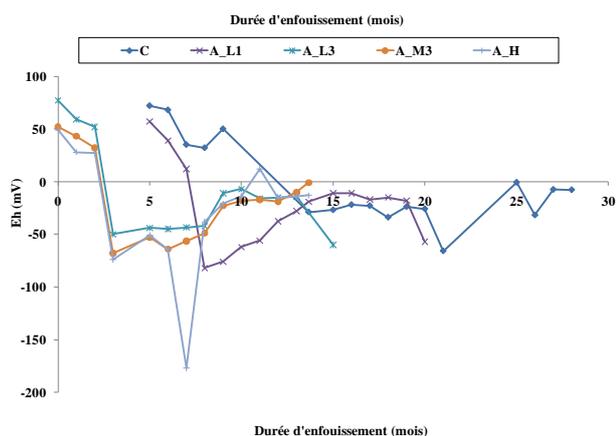
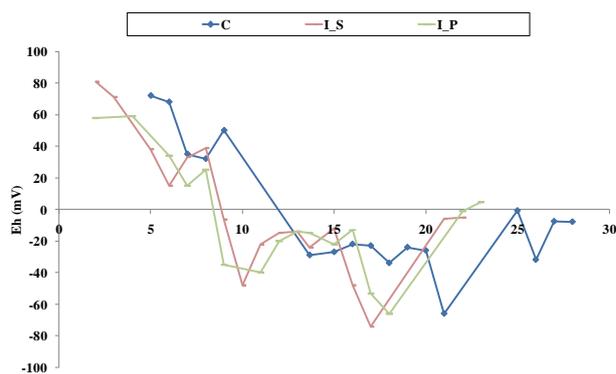
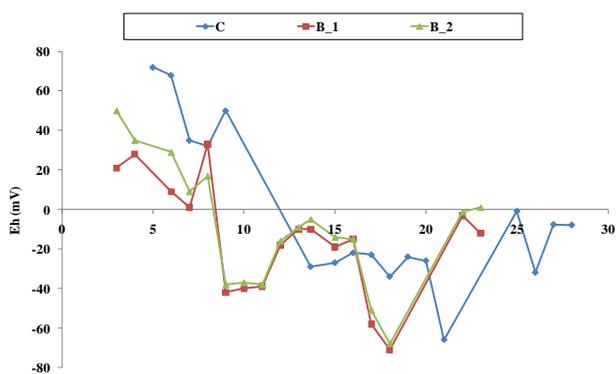
## ANNEXE 7

### *Evolution de la composition chimique et physicochimique des lixiviats au cours de l'enfouissement pour les pilotes BIOPTIME*

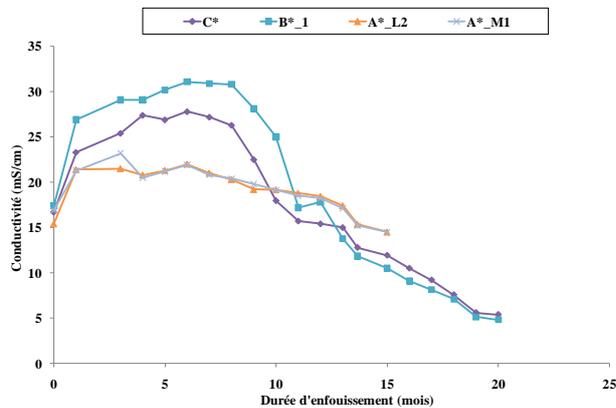
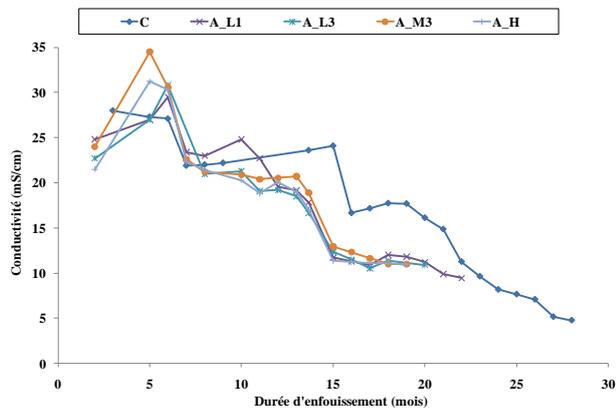
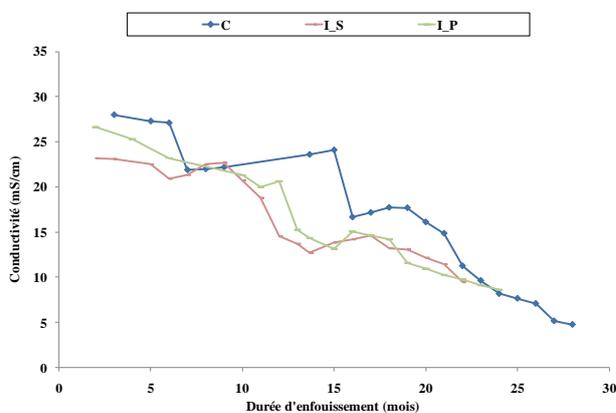
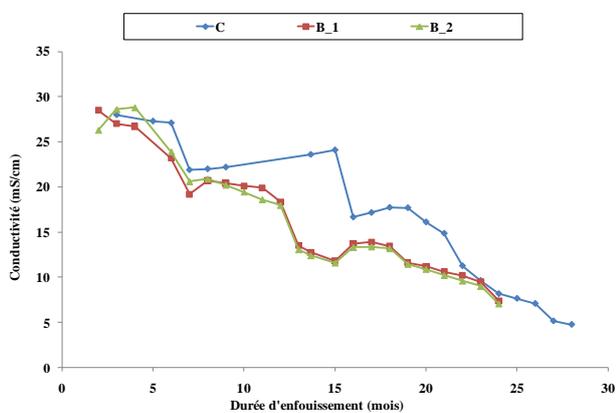
#### 1. Suivi du pH :



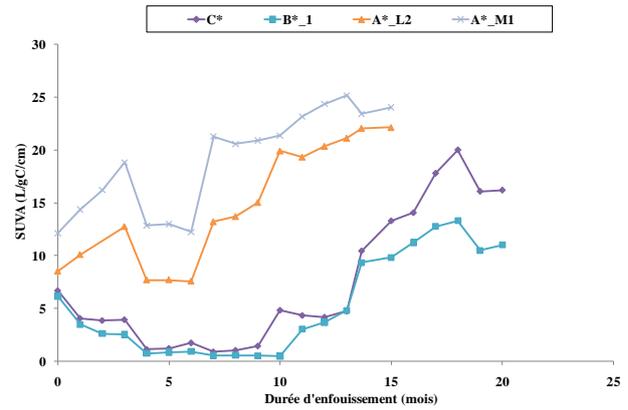
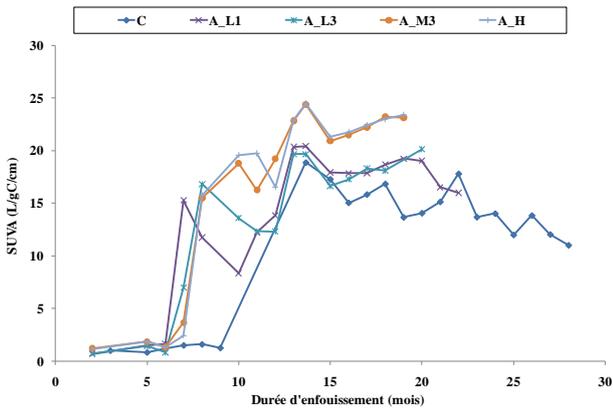
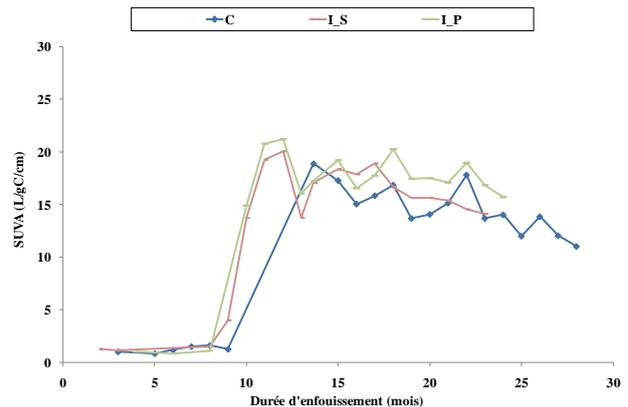
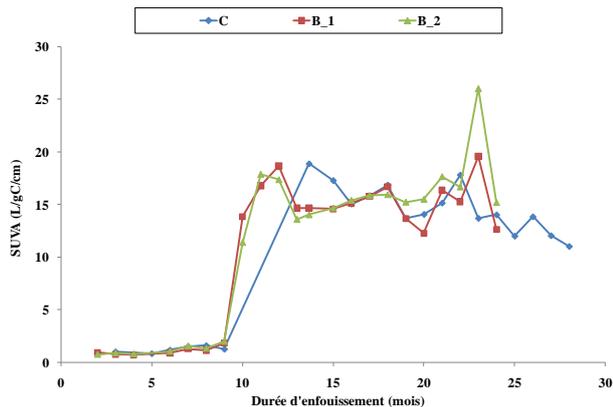
## 2. Suivi de du potentiel redox en mV :



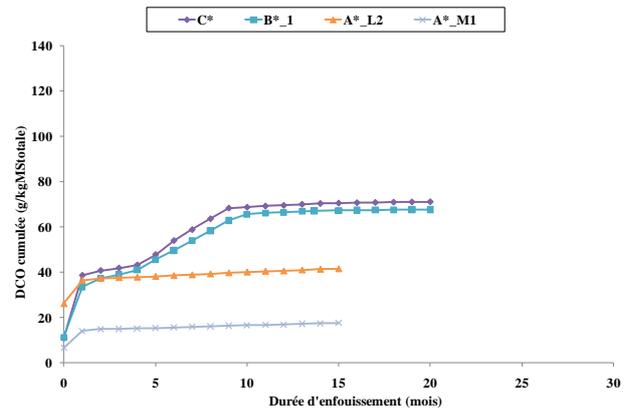
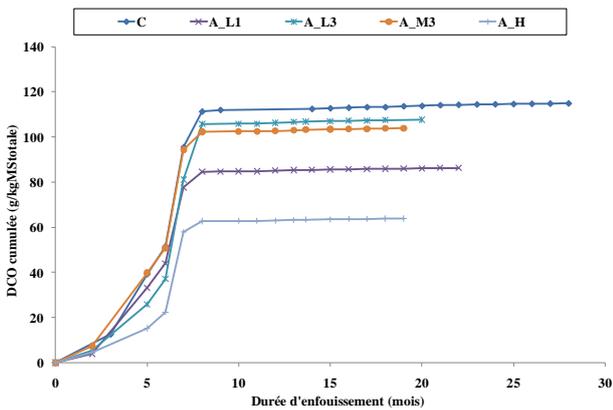
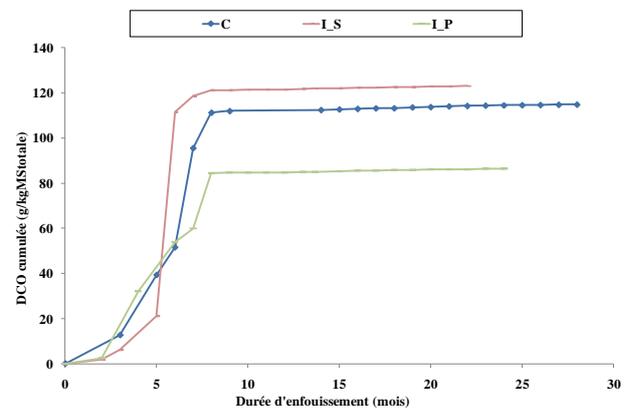
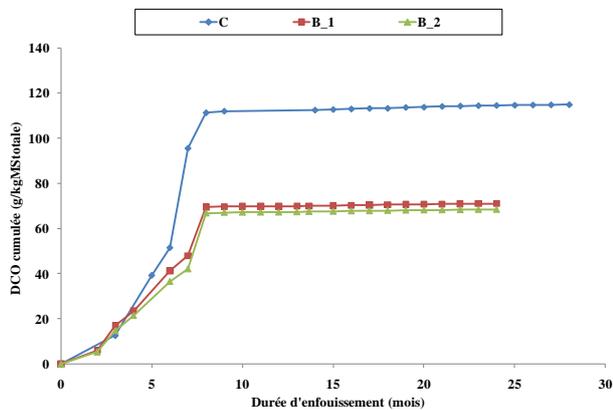
## 3. Suivi de la conductivité en mS/cm :



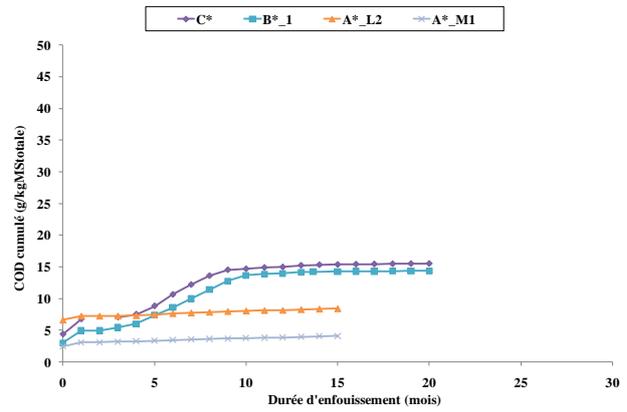
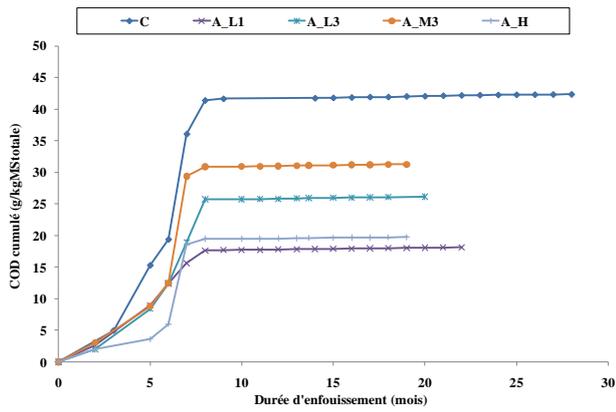
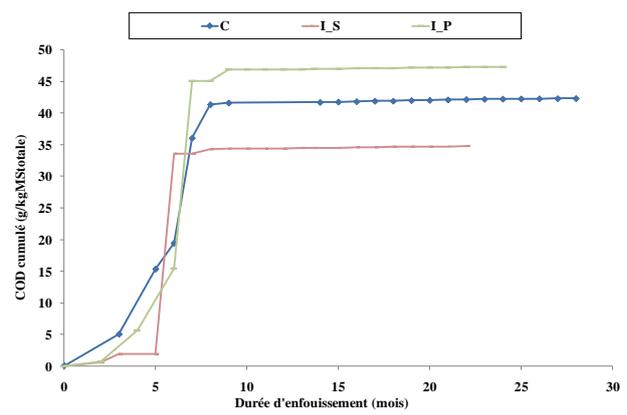
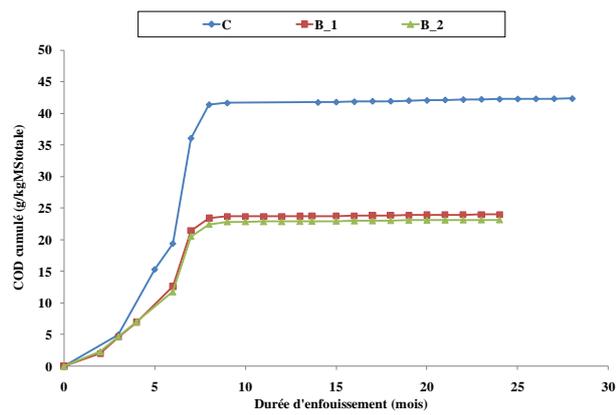
**4. Suivi de l'indice SUVA L/gC/cm :**



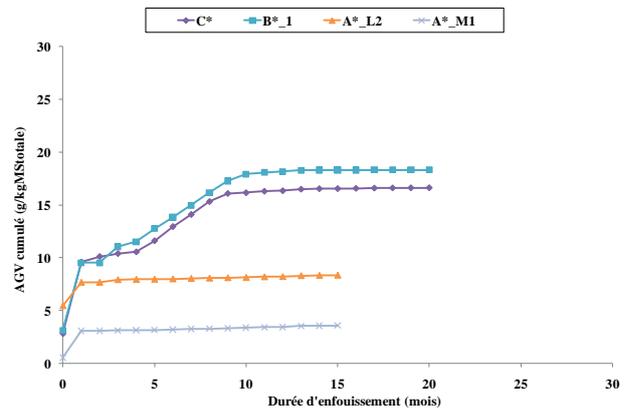
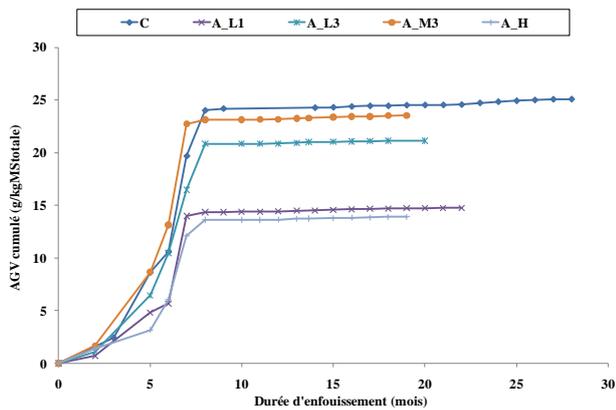
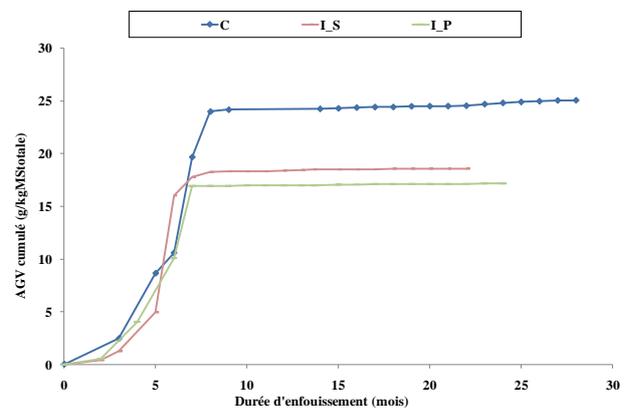
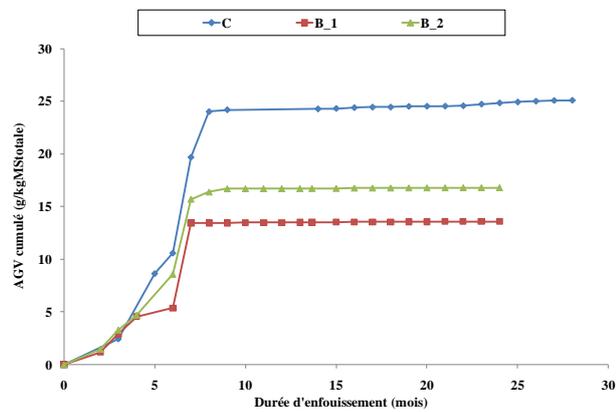
**5. Suivi de la DCO cumulée en g/kgMStotale :**



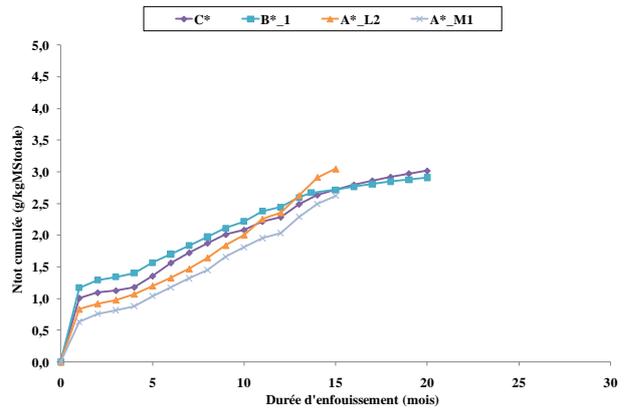
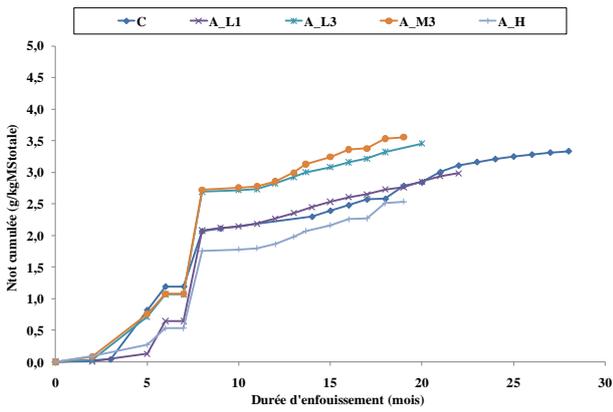
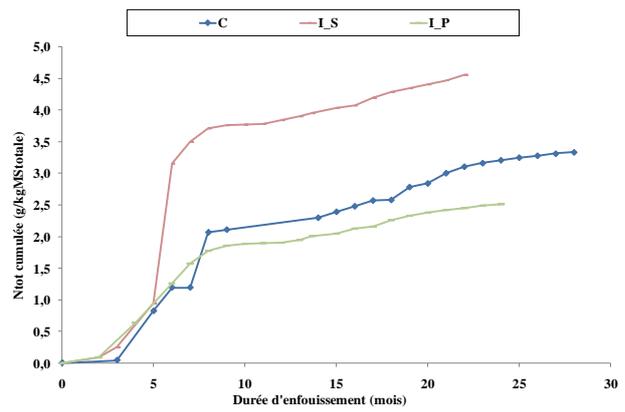
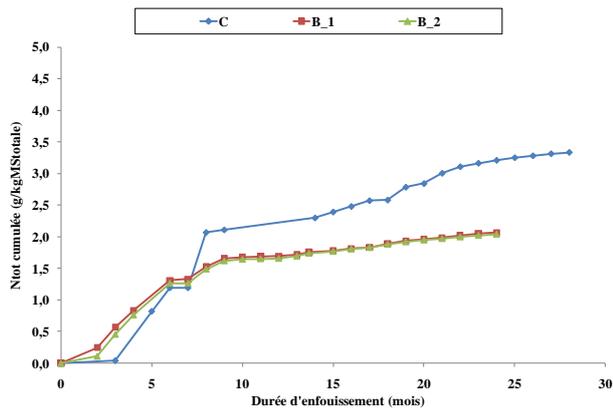
## 6. Suivi du COD cumulé en g/kgMStotale :



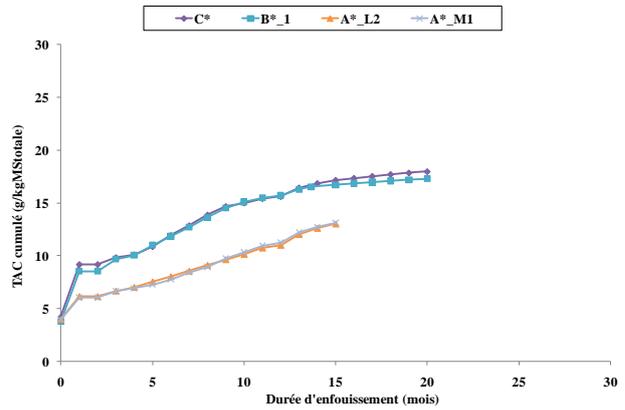
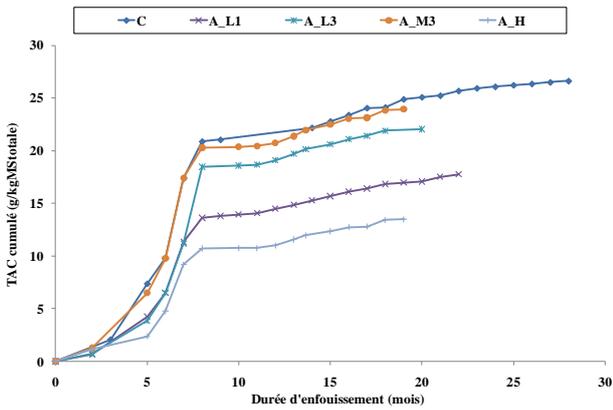
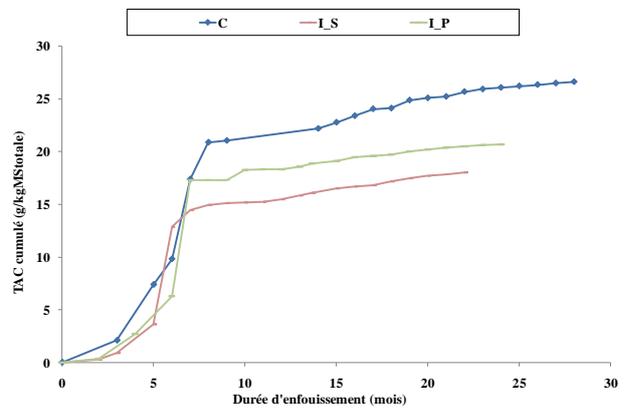
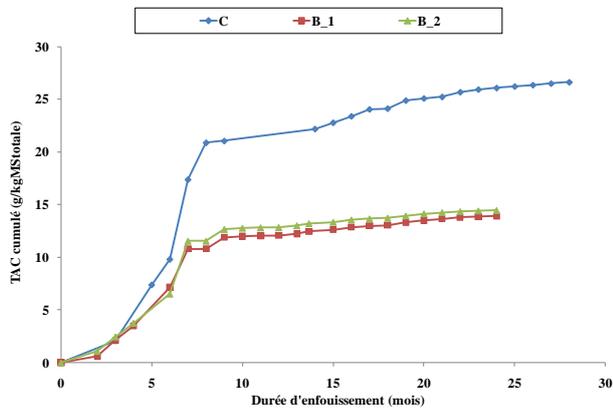
## 7. Suivi de la concentration en AGV cumulée en gCH<sub>3</sub>COOH/kgMStotale :



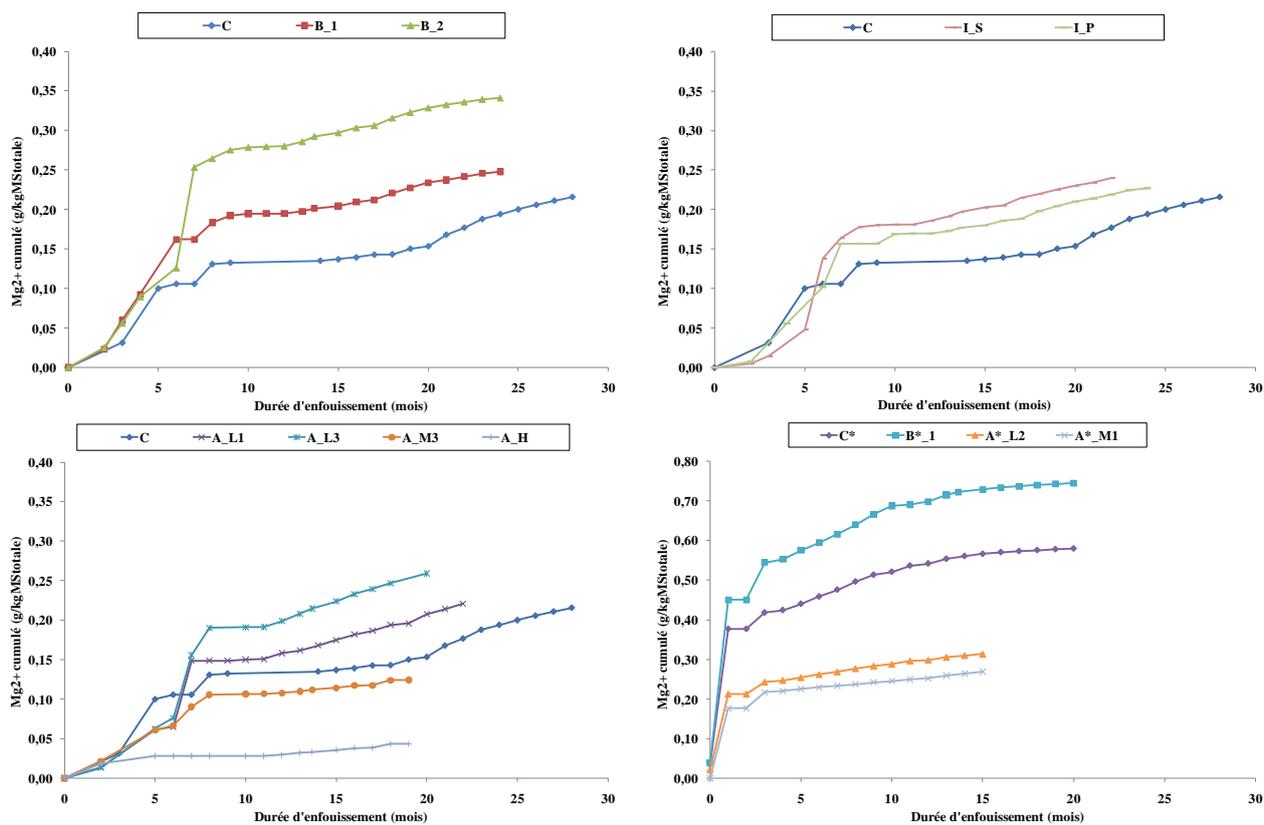
### 8. Suivi de l'azote total cumulé en g/kgMStotale :



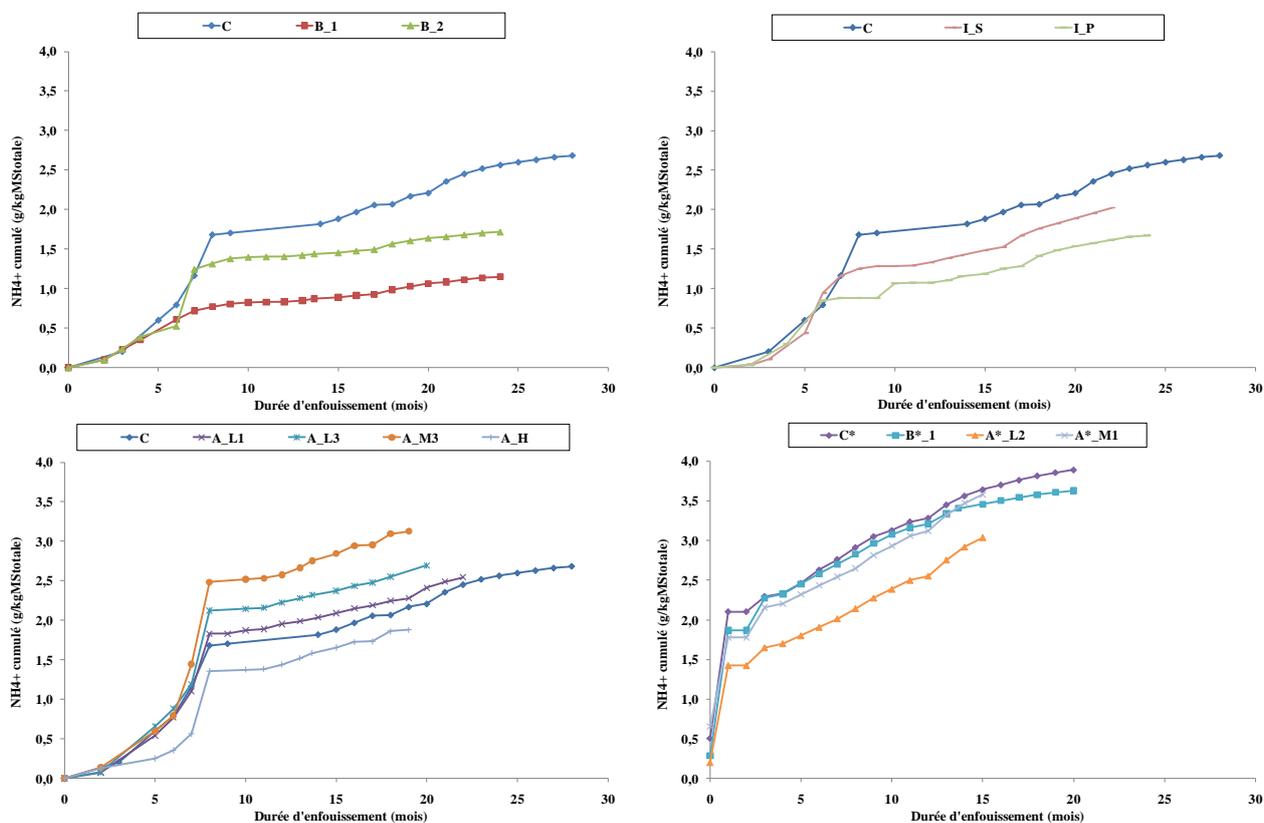
### 9. Suivi du TAC cumulé en g/kgMStotale :



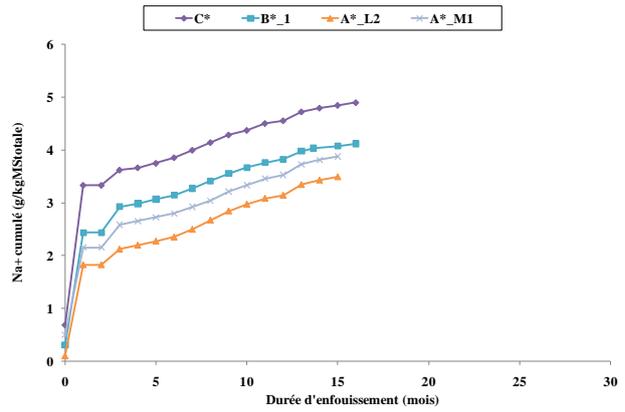
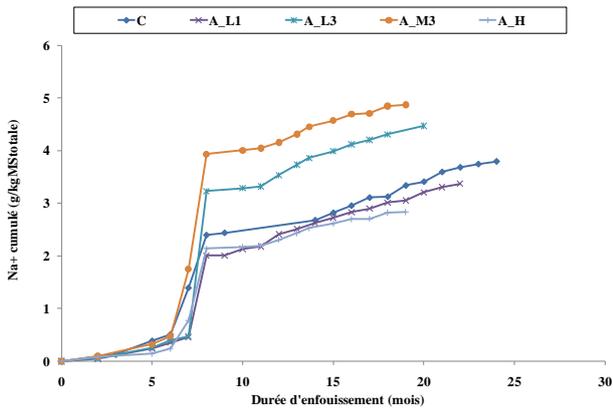
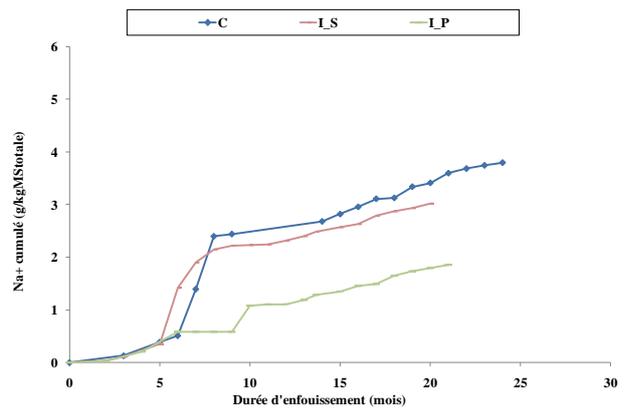
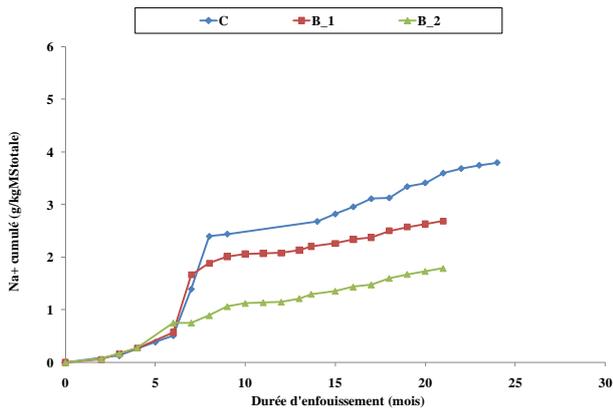
## 10. Suivi de la concentration en $Mg^{2+}$ cumulée en g/kgMStotale :



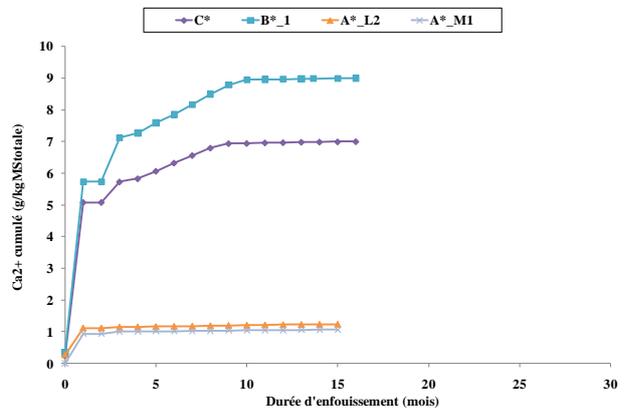
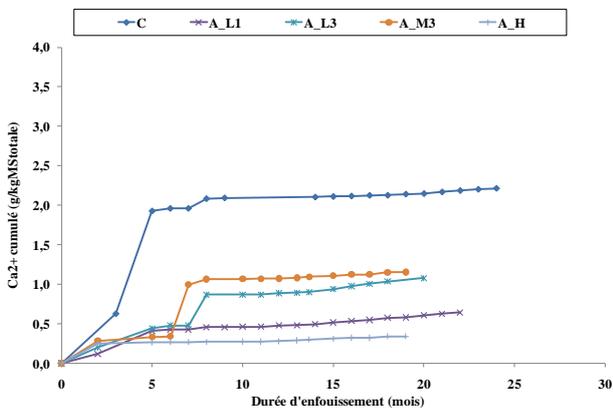
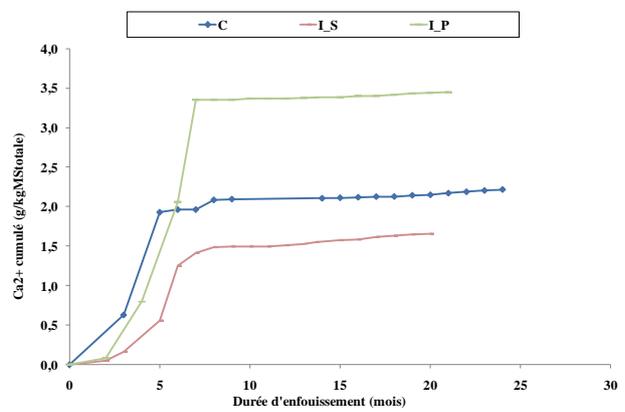
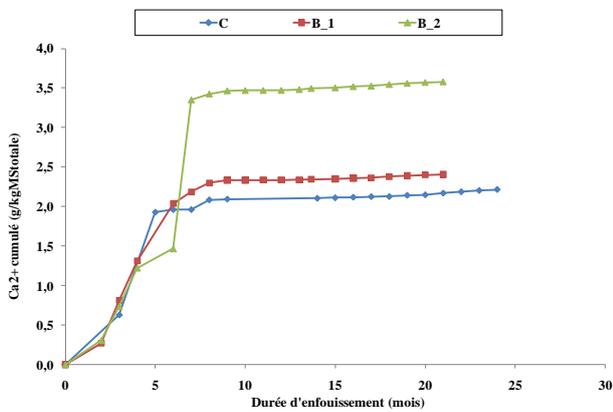
## 11. Suivi de la concentration en $NH_4^+$ cumulée en g/kgMStotale :



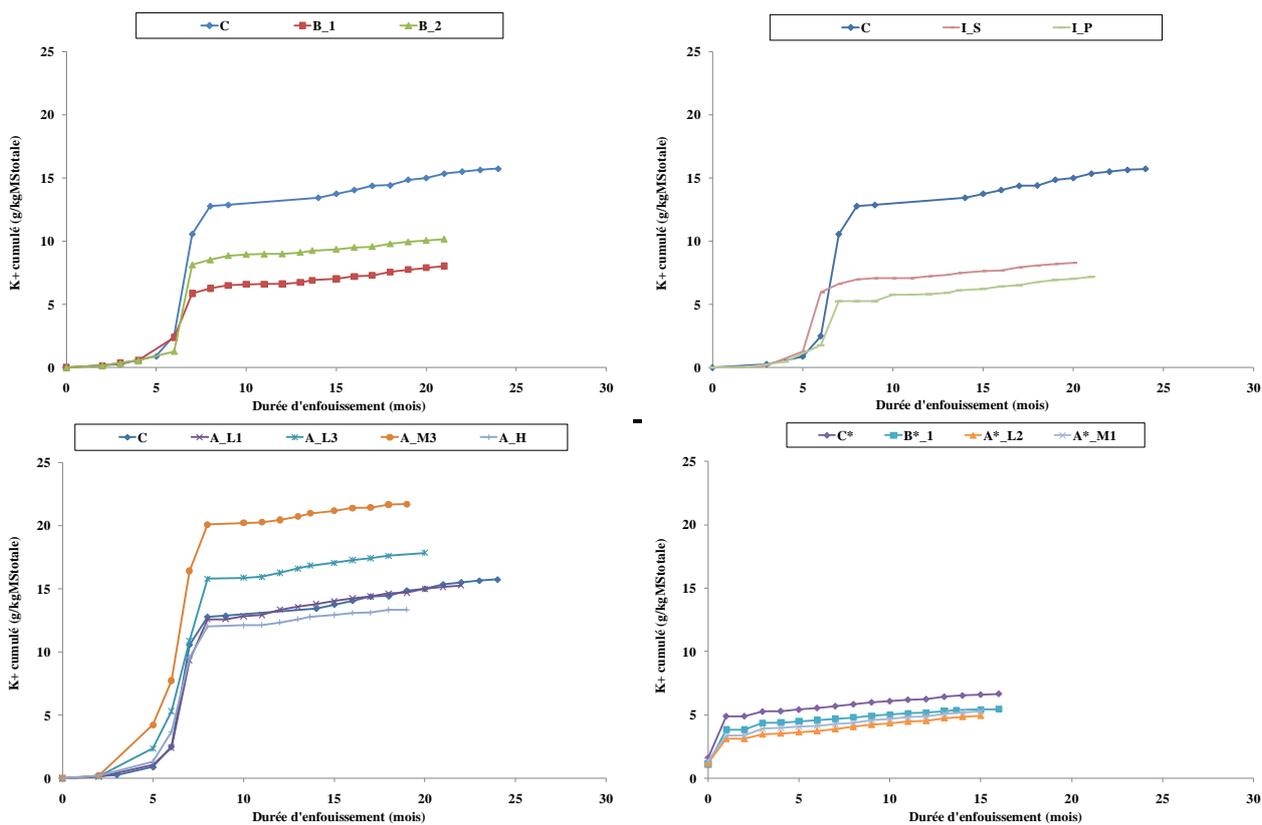
**12. Suivi de la concentration en Na<sup>+</sup> cumulée en g/kgMStotale :**



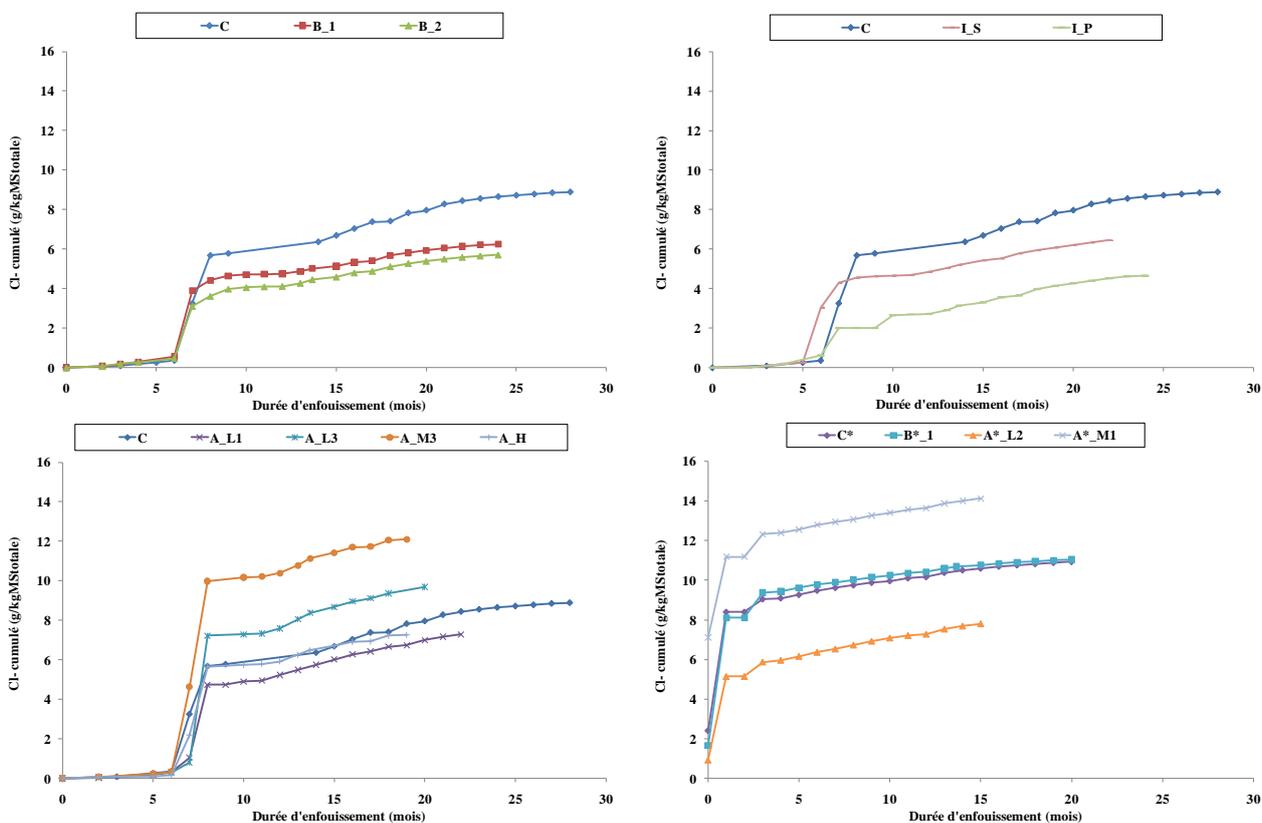
**13. Suivi de la concentration en Ca<sup>2+</sup> cumulée en g/kgMStotale :**



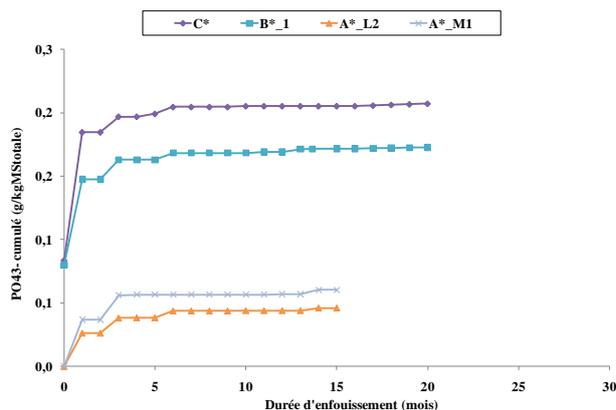
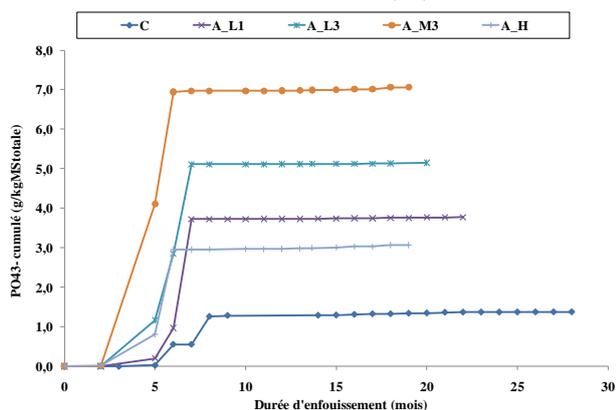
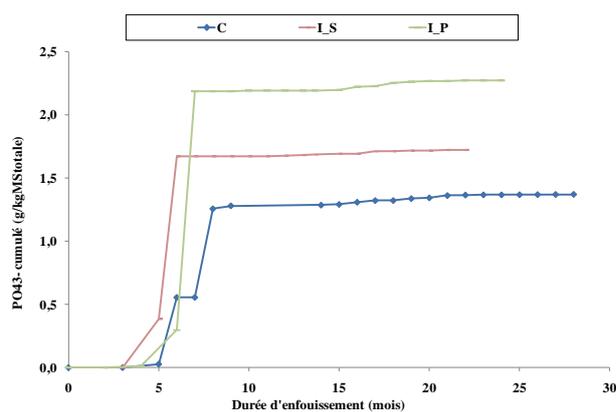
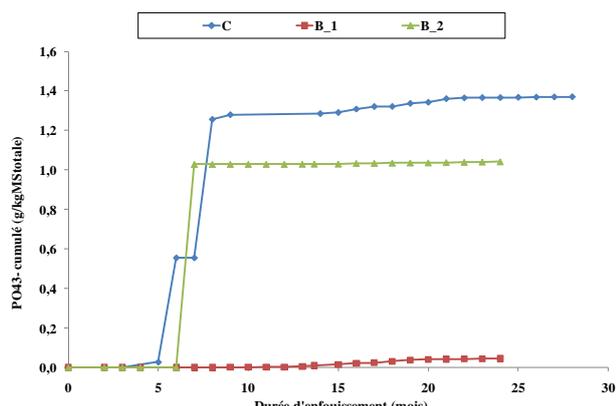
**14. Suivi de la concentration en K+ cumulée en g/kgMStotale :**



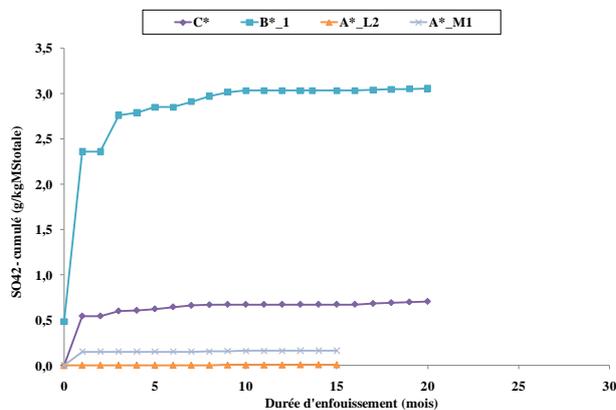
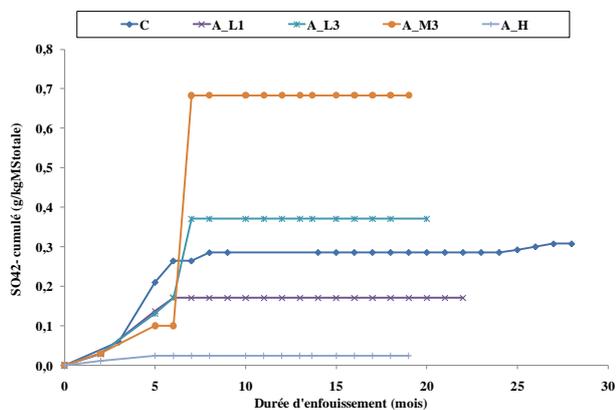
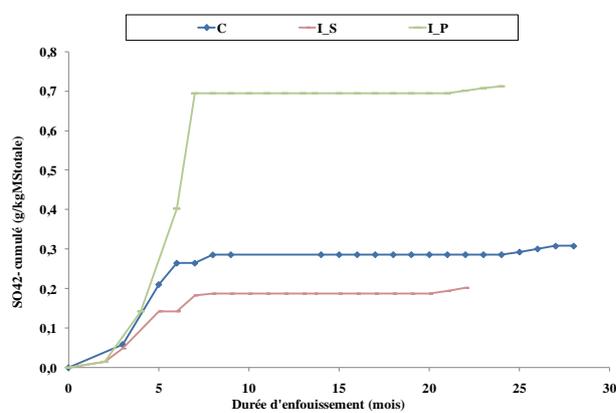
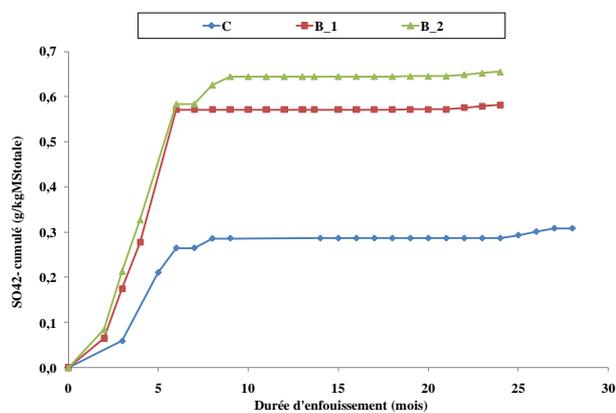
**15. Suivi de la concentration en Cl- cumulée en g/kgMStotale :**



## 16. Suivi de la concentration en $\text{PO}_4^{3-}$ cumulée en g/kgMStotale :



## 17. Suivi de la concentration en $\text{SO}_4^{2-}$ cumulée en g/kgMStotale :



## ANNEXE 8

## Composition du lixiviat lors de l'étape de Saturation / Désaturation

		DCO (g)	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> (g)	N <sub>tot</sub> (g)	TAC (g)	AGV (g)	Ca <sup>2+</sup> (g)	K <sup>+</sup> (g)	Mg <sup>2+</sup> (g)	Na <sup>+</sup> (g)	Cl <sup>-</sup> (g)	PO <sub>4</sub> <sup>3-</sup> (g)	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (g)	COD (g)
C	Injecté	60,0	28,3	29,6	29,2	2,4	4,0	7,5	1,4	23,1	47,0	0,0	6,6	6,4
	Récupéré	582,6	26,3	20,7	119,1	110,4	1,7	103,3	0,7	33,6	81,3	0,0	2,1	204,3
	Différence	522,6	-2,0	-8,8	89,9	108,0	-2,3	95,7	-0,7	10,5	34,3	0,0	-4,5	197,9
B_1	Injecté	128,3	29,7	19,7	28,1	2,3	3,9	7,2	1,3	22,2	45,3	0,0	6,3	6,2
	Récupéré	498,1	19,5	19,9	90,6	140,4	6,3	66,7	1,3	41,0	102,2	0,0	0,0	156,3
	Différence	369,7	-10,2	0,3	62,5	138,0	2,5	59,4	-0,1	18,7	57,0	0,0	-6,3	150,1
B_2	Injecté	141,8	32,9	21,7	31,1	2,6	4,3	8,0	1,5	24,6	50,0	0,0	7,0	6,8
	Récupéré	588,4	30,2	17,2	121,7	131,5	38,4	131,4	3,8	17,1	97,7	18,6	1,1	165,5
	Différence	446,5	-2,6	-4,6	90,7	128,9	34,1	123,4	2,3	-7,5	47,7	18,6	-5,9	158,6
A_L1	Injecté	62,8	29,6	30,9	30,5	2,5	4,2	7,9	1,5	24,1	49,2	0,0	6,9	6,7
	Récupéré	464,5	24,6	28,3	88,2	101,9	0,2	90,4	2,5	25,4	57,9	32,9	0,8	44,9
	Différence	401,7	-5,1	-2,7	57,6	99,3	-4,0	82,5	1,0	1,2	8,8	32,9	-6,0	38,2
A_L3	Injecté	61,4	29,0	30,3	29,8	2,5	4,1	7,7	1,4	23,6	48,1	0,0	6,7	6,6
	Récupéré	502,6	18,8	23,9	0,0	0,0	4,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	71,1
	Différence	441,2	-10,1	-6,4	-29,8	-2,5	-0,1	-7,7	-1,4	-23,6	-48,1	0,0	-6,7	64,5
A_M3	Injecté	59,5	28,1	29,3	28,9	2,4	4,0	7,5	1,4	22,9	46,6	0,0	6,5	6,4
	Récupéré	426,1	20,3	24,9	93,4	83,1	9,4	80,4	1,5	33,5	82,8	0,2	1,6	148,3
	Différence	366,6	-7,7	-4,4	64,4	80,7	5,5	73,0	0,2	10,7	36,2	0,2	-4,9	141,9
A_H	Injecté	59,4	28,0	29,3	28,9	2,4	4,0	7,4	1,4	22,8	46,5	0,0	6,5	6,4
	Récupéré	428,8	21,0	25,6	74,9	65,5	3,9	68,8	0,0	28,4	67,5	0,0	0,0	137,4
	Différence	369,4	-7,0	-3,7	46,0	63,1	-0,1	61,3	-1,3	5,6	21,0	0,0	-6,5	131,0
I_S	Injecté	142,5	33,0	21,8	31,2	2,6	4,3	8,0	1,5	24,7	50,3	0,0	7,0	6,9
	Récupéré	1349,1	34,7	51,3	155,0	150,8	13,6	70,3	2,6	38,8	87,8	0,0	3,6	4,2
	Différence	1206,6	1,7	29,5	123,8	148,2	9,3	62,3	1,2	14,2	37,5	0,0	-3,4	-2,7
I_P	Injecté	135,2	31,3	20,7	29,6	3,7	4,1	7,6	1,4	23,4	47,7	0,0	6,7	6,5
	Récupéré	493,6	26,5	25,3	0,0	0,0	23,0	0,0	0,0	15,7	0,0	77,8	11,0	1107,1
	Différence	358,4	-4,8	4,5	-29,6	-3,7	19,0	-7,6	-1,4	-7,7	-47,7	77,8	4,3	1100,5
C*	Injecté	64,4	35,6	33,5	29,5	2,5	4,1	7,6	1,4	23,4	47,6	0,0	6,6	6,5
	Récupéré	219,4	24,2	23,0	90,3	42,6	7,5	30,8	1,9	33,1	81,9	1,2	5,0	68,9
	Différence	155,0	-11,4	-10,5	60,7	40,2	3,4	23,1	0,5	9,8	34,3	1,2	-1,6	62,4
B*_1	Injecté	64,4	35,7	33,5	29,6	2,5	4,1	7,6	1,4	23,4	47,6	0,0	6,7	6,5
	Récupéré	260,5	15,9	20,6	95,4	57,3	10,4	27,1	2,1	28,8	76,6	1,4	15,1	58,7
	Différence	196,0	-19,8	-12,9	65,9	54,8	6,3	19,4	0,7	5,4	29,0	1,4	8,5	52,2
A*_L2	Injecté	57,0	31,6	29,6	26,2	2,2	3,6	6,7	1,3	20,7	42,1	0,0	5,9	5,8
	Récupéré	418,6	18,4	19,9	80,9	77,7	7,3	23,3	1,6	22,1	54,9	0,0	2,7	97,3
	Différence	361,6	-13,2	-9,8	54,7	75,5	3,7	16,5	0,3	1,5	12,8	0,0	-3,2	91,5
A*_M1	Injecté	62,2	34,4	32,3	28,5	2,4	3,9	7,4	1,4	22,6	46,0	0,0	6,4	6,3
	Récupéré	155,6	29,6	27,7	84,4	10,1	3,0	27,1	1,4	29,6	147,1	0,0	0,0	40,9
	Différence	93,4	-4,9	-4,7	55,9	7,8	-0,9	19,7	0,0	7,1	101,1	0,0	-6,4	34,6

