ÉVOLUTION AU COURS DU TEMPS D'UN LIXIVIAT TRAITÉ PAR LAGUNAGE NATUREL ET ÉVALUATION DE L'EFFICACITÉ DE FILTRES EN SABLE POUR LA RÉDUCTION DE SA CHARGE ORGANIQUE ET MINÉRALE CAS DE LA DÉCHARGE D'ORDURES MÉNAGÈRES D'ETUEFFONT (FRANCE)

H. Khattabi*, M. Schaivon*, J. Mania**, H. Grisey***, L. Aleya*** et J-L. Morel*

* École nationale supérieure d'agronomie et des industries alimentaires,

** École universitaire d'ingénieurs de Lille (Eudil)

*** Université de Franche-Comté

Dans la décharge d'ordures ménagères d'Etueffont (Belfort, France) un traitement par lagunage naturel des lixiviats produits est effectué à l'aval de l'émissaire principal par l'intermédiaire de quatre bassins placés en série. Deux filtres à sable ont été installés dans la partie centrale et à l'amont du premier bassin, afin de réduire la charge organique et minérale de l'effluent. Un suivi analytique des paramètres classiques physiques et chimiques (éléments majeurs, métaux et composés organiques dont les AOX, les AGV et l'atrazine) a été réalisé dans le lixiviat brut, à la sortie des filtres à sables et à la sortie de la station de traitement par lagunage. Les résultats mettent en évidence une légère variation de la composition physico-chimique du lixiviat, vraisemblablement attribuable à la maturation de la décharge et un abattement très important des MES par les filtres à sable qui se répercute pour l'ensemble des paramètres suivis. Le fonctionnement sur le plan physico-chimique du filtre à sable est détaillé ainsi que l'efficacité du lagunage global sur les effluents issus de la décharge.

In the Etueffont landfill (Belfort, France), leachates product were treated by stabilisation ponds (4 basins). In order to ameliorate this process, two sand filters were installed in the upstream of the first basin. An analytical follow-up of physical and chemical parameters (major elements, metals and organics with AOX, AGV and atrazine) were carried out in the leachate, on the outlet side of the sand filters and in the treated leachate of the station at the end of lagooning. The results pointed out a short variations of physicochemical composition in the leachate between 2000 and 2001, most likely due to the maturation of the fill and a very significant removal of SM was observed due to the gravel filters which reflects for all the followed parameters. The physical and chemical reaction of the filter sand is detailed and also the efficiency of the natural lagooning on wastes fluids from land-

INTRODUCTION

L'essor urbain de la deuxième moitié du vingtième siècle a entraîné une accumulation considérable de déchets d'ordures ménagères. L'itinéraire final de disposition le plus attrayant des déchets solides municipaux (MSW) a été surtout celui de la décharge sauvage puis contrôlée. Des solutions d'amélioration de la gestion des déchets ont été développées (par exemple incinération, compostage) mais eux aussi produisent des fractions de rebut (par exemple cendres, scories), qui finalement doivent être mises en décharge [8]. La génération du lixiviat demeure une conséquence inévitable de la mise en décharge. Le lixiviat conduit souvent à de sérieux problèmes écologiques [1], bien que certains de ces polluants puissent être dégradés par les micro-organismes. Ceci crée la nécessité de comprendre les mécanismes de formation du lixiviat et de caractériser sa qualité, afin d'assurer une gestion appropriée du jus de décharge qui réduira au minimum ces impacts défavorables. Par ailleurs, les travaux ayant trait à la composition des lixiviats réalisés tant en laboratoire [3][4] qu'in situ [11] ont permis de mettre en évidence une relation étroite entre le climat, l'hydrologie, l'origine et la technique d'enfouissement des déchets d'une part et la composition chimique du lixiviat d'autre part. Si des installations de traitement du lixiviat étaient conçues pour traiter seulement la qualité moyenne du lixiviat, ces procédés se retrouvaient en limite de bon fonctionnement lors de l'apparition des fortes concentrations en matière organique à certaines époques de l'année. Le procédé de traitement des lixiviats doit être conçu en tenant en compte de la concentration maximale des polluants (scénario des « pires des cas »). Néanmoins, les informations détaillées sur la variabilité saisonnière de la composition des lixiviats sont essentielles pour la conception d'un système de traitement efficace. Afin d'améliorer le rendement épuratoire d'une station de traitement par lagunage naturel des lixiviats, nous avons opté pour des filtres à sable.

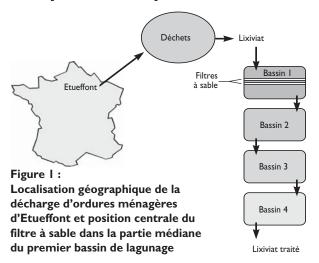
Les objectifs principaux de cette étude étaient :

- (i) la caractérisation et une identification plus étendue des paramètres bio-physico-chimiques des lixiviats de la décharge d'Etueffont (Belfort, France) et leur comparaison avec ceux trouvés dans la littérature et avec ceux effectués précédemment.
- (ii) l'évaluation du fonctionnement des filtres à sables
- et (iii) l'évaluation du rendement épuratoire de la station après ce pré-traitement.

MATÉRIELS ET MÉTHODES

Site étudié

La décharge d'Etueffont, ouverte en 1974, est située au nord-est de Belfort (France, fig. 1) et s'étend sur 2,2 hectares de terrains schisteux imperméables. Les déchets sont gérés selon un mode d'exploitation à ciel ouvert avant sa fermeture en juillet 2000. La décharge renferme 200 000 tonnes d'ordures ménagères broyées. Le lixiviat évacué par un émissaire principal est traité selon le principe du lagunage naturel dans 4 bassins de décantation disposés en série. Les caractéristiques morphométriques sont rapportées par ailleurs [Khattabi et al. 2001].



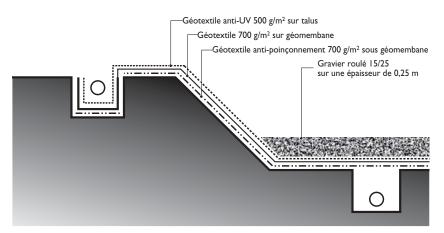


Figure 2 : Schéma simplifié du filtre à sable utilisé placé dans la partie médiane du premier bassin de lagunage

Dans le but d'améliorer le rendement épuratoire de la station, 2 filtres à sable ont été installés en amont du premier bassin, équipés de drains perforés (Fig. 2).

Stratégie d'échantillonnage

Des échantillons de lixiviats ont été récoltés à la buse d'entrée, à la sortie du filtre à sable, dans les quatre bassins et à la sortie du dernier bassin entre 1999 et 2000 (4 prélèvements par an).

Matériels et méthodes

La température (T), le pH et la conductivité électrique (CE) ont été mesurés in situ à l'aide d'une sonde multiparamètres de marque WTW (Multiline P3 PH/LF-SET). Les concentrations en chlorures (Cl-) ont été dosées par chromatographie ionique (Dionex DX-100). Les teneurs relatives au zinc (Zn²⁺), au fer (Fe²⁺), au magnésium (Mg²⁺), au nickel (Ni²⁺), au cuivre (Cu2+) ont été obtenues par photométrie à l'aide d'un spectrophotomètre de type WTW (Photolab Spektral). La technique consiste de manière générale à ajuster le pH de l'échantillon soit à l'aide d'une solution d'hydroxyde de sodium en solution pour obtenir un pH élevé (Cu, Ni, Mg, Zn) ou soit au contraire de l'acide chlorhydrique dilué (Fe). Des réactifs spécifiques, adaptés à des gammes de concentration précises, sont ajoutés à l'échantillon, puis après un temps de réaction de quelques minutes la mesure est effectuée en choisissant une longueur d'onde d'absorption spécifique du spectrophotomètre pour l'élément chimique analysé. La demande biologique en oxygène (DBO) a été mesurée selon la norme EN1899-1 et EN1899-2 au DBOmètre WTW avec terminal à sonde d'oxygène à agitateur intégré. La mesure de la demande chimique en oxygène (DCO) a été réalisée après chauffage de l'échantillon d'eau, additionné d'une solution sulfochromique, pendant 2 heures à 148 °C dans un thermoréacteur puis après refroidissement à 20 °C par mesure au spectrophotomètre. L'azote total (NT) a été estimé par distillation, après une minéralisation en azote ammoniacal [15] et l'ammonium (NH₄+) par colorimétrie suite à une catalyse en milieu alcalin par une solution de nitroprussiate de sodium. Le

phosphore total a été mesuré par colorimétrie [15]. Les teneurs en acides organiques, en AOX et en atrazine ont été dosées par le bureau d'étude Géotechnique Est (par chromatographie en phase liquide).

Les rendements épuratoires ont été calculés par la formule suivante :

$$X = ((C0 - Cf) / C0) * 100$$

۸۷۰۰۰

X: Rendement épuratoire (en %),

C0 : Concentration de l'élément chimique à la sortie de la décharge,

Cf: Concentration de l'élément chimique à la sortie du quatrième bassin.

RÉSULTATS ET DISCUSSION

Caractérisation des lixiviats et évolution 1999-2000

Substances organiques

DBO et DCO

Plusieurs chercheurs [5], [Lecoupannec 1999] indiquent que les substances humique-type constituent un groupe important de matière organique des lixiviats. Ces substances humiques contiennent des composantes aromatiques et aliphatiques avec des groupes fonctionnels principalement carboxyliques et phénoliques [Lecoupannec 1999]. Les groupes fonctionnels carboxyliques expliquent 60-90 % des groupes fonctionnels [Hong & Elimelech 1997]. La matière organique dissoute dans le lixiviat est un paramètre très important dans l'étude des lixiviats de décharges d'ordures ménagères couvrant ainsi une variété de produits organiques de dégradation englobant des acides faibles volatils et des acides fulviques et humiques réfractaires [5]. Malheureusement, peu d'études ont ciblé la caractérisation de la matière organique des lixiviats d'ordures ménagères[13], et les teneurs en matières organiques sont très dépendantes des facteurs physiques tel que la température. Harmsen [10] a mis en évidence une dominance des AGV dans le lixiviat jeune (plus de 95 % de la DCO). Weis et al. [20] en comparant les différents acides fulviques des lixiviats isus de l'eau de lac, d'un sol et d'un terrain de marais ont pu vérifier que les acides fulviques isolés dans le lixiviat ont des teneurs élevées en

Tableau I : Évolution saisonnière (4 prélèvements par an) de la composition biophysicochimique des lixiviats d'Etueffont de 1999 à 2000

	Lixiviat 1999		Lixiviat 2000	
	moyenne	ecartype	moyenne	ecartype
T °C	13,40	5,81	18,80	2,61
рН	7,76	0,42	7,80	0,11
CE μS/cm	5343	1344	4673	1371
MES mg/l	157	160	32	19
DBO	98	79	46	15
DCO	1085	587	892	597
NO ₂	0,00	0	7,11	3,08
NO ₃	47	77	254	353
SO ₄	163	64	139	38
Mg	34	6	42	8
NH ₄	178	43	178	94
NK	188	74	174	68
PT	1,36	0,49	1,58	1,41
Cu	0,73	0,90	0,22	0,05
Fe	2,93	2,21	3,61	0,96
Ni	3,23	4,69	0,13	0,07
Sn	0,51	0,48	0,11	0,08
Zn	0,61	0,28	0,40	0,32
AGV	*	*	73	0,04
Atrazine ng/l	*	*	268	31,13
AOX μg/l	*	*	950	0,6

C, de H, de S, et des quantités inférieures en groupes phénoliques, de faibles affinités de complexation avec le Cu et de faible poids moléculaire. Afin de caractériser la composante organique du lixiviat d'Etueffont, des analyses ont porté sur l'estimation des teneurs en AGV. Les résultats enregistrés dans le tableau I montrent que la moyenne en AGV des lixiviats est de l'ordre de 450 mg/l. Toutefois, cette valeur est très faible et caractéristique de vieilles décharges en pleine phase de stabilisation [6]. L'évolution temporelle de la charge organique du lixiviat entre 1999 et 2000, met en évidence une nette diminution des deux indicateurs de la pollution organique (DBO et DCO) vraisemblablement attribuable aux processus de biodégradation par la biais des micro-organismes. Ceci ce répercute par une diminution du rapport DBO/DCO qui passe de 0,09 à 0,05 avec une légère augmentation du pH. Ceci est corroboré par les travaux d'Ehrig [7] et Barkowski et al. [2] qui ont montré que si le rapport DBO/DCO se rapproche de zéro, les décharges sont anciennes et sont souvent engagées dans un processus de fermentation ultime aboutissant à la production de lixiviats basiques.

AOX et Atrazine

Afin d'aller plus loin dans la caractérisation du lixiviat d'Etueffont, des analyses effectuées pour les prélèvements de 2001 par le laboratoire Géotechnique Est ont portées sur l'estimation des teneurs en AOX et en atrazine rarement étudiées dans les jus de décharge (tableau I). La valeur AOX désigne la teneur totale en composés organo-halogénés généralement chlorés. La plupart de ces composés ne sont pas biodégradables ou presque. La teneur moyenne en AOX enregistrée dans le lixiviat est très élevée (950 µg/l), vraisemblablement liée aux déchets et/ou déversements de bois dans la décharge. Ces composés organo-halogénés sont des indicateurs de la qualité et non de la toxicité. Ils peuvent être fabriqués naturellement par des champignons qui en décomposant le bois produisent des acides chlorés phénoliques et humiques naturels [20].

En ce qui concerne les teneurs en atrazine, on a décelé de faibles teneurs de l'herbicide triazinique atrazine (2-chloro-4-éthylamino-6- isopylamino-1,3,5-triazine) (268 ng/l), utilisé en agriculture, spécialement dans la culture du maïs. Sa présence est vraisemblablement liée à la mise en décharge de déchets verts traités par ce pesticide. Ces valeurs sont plus faibles que celles observées par Schultz et Kjeldsen [17], Gintautas et al. [9] et Lyngkilde & Christensen [12].

Eléments inorganiques

Par opposition aux substances organiques, l'étude comparative de la composition physico-chimique des lixiviats entre 1999 et 2000 ne met pas en évidence une telle évolution qualitative du lixiviat (tableau 1). Toutefois, on enregistre une légère augmentation des teneurs en Mg (de 34 à 42 mg/l) et en Fe (de 2,93 à 3,61 mg/l) vraisemblablement attribuable aux faibles précipitations atmosphériques enregistrées en automne 2000. Les concentrations en sulfate enregistrées en 2000 sont également inférieures à celles

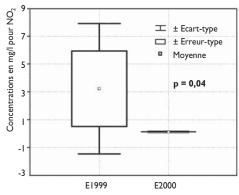


Figure 3 : Représentation en "boîte moustache" du résultat du test Kruskal Wallis pour les teneurs en nitrites du lixiviat entre 1999 et 2000.

observées en 1999. Cette diminution pourrait être attribuable entre autre à la réduction microbienne de SO_4^{2-} en S². En ce qui concerne les formes azotées nos résultats ne mettent aucune tendance de décroissance de NH, de 1999 à 2000. De plus aucune tendance n'a été observée pour les teneurs en métaux lourds. Ceci est corroboré par les travaux de Christeinssen et al. [6] qui montrent une stabilité des teneurs au cours du temps. L'étude statistique par le test Kruskal Wallis appliquée sur l'ensemble des paramètres suivis met en évidence l'existence de différences statistiquement significatives seulement pour les NO2 et le Ni (p = 0,03 pour le NO_2 et 0,04 pour le Ni, fig. 3 et 4). Le rapport sulfate/chlorure dont les fluctuations peuvent nous renseigner sur l'état d'oxygénation et sur la solubilité des cations métalliques met en évidence une diminution rapide du rapport de SO₄/Cl, qui passe de 0,36 en 1999 à 0,23 en 2000. Cette diminution est vraisemblablement attribuable à une diminution de la concentration initiale en sulfates, en raison des conditions anaérobies régnant dans la décharge. Les anions en excès réagiront plus tard avec des cations métalliques pour former des précipités de sulfures métalliques insolubles. Ces derniers peuvent coprécipiter aussi avec le fer, mais également avec d'autres métaux. Cette chute temporelle du rapport SO₄/Cl observée dans le lixiviat nous indique que l'élévation de l'anaérobie dans la décharge d'Etueffont s'accroît [14], [18].

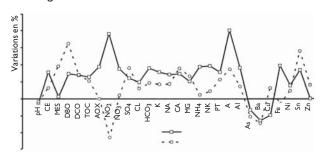


Figure 5 : Variation des taux d'abattement en % de l'ensemble des paramètres mesurés montrant l'influence du filtre à sable de l'automne 1999 à l'été 2000.

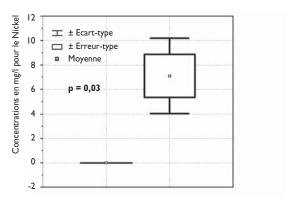


Figure 4 : Représentation en « boîte moustache » du résultat du test Kruskal Wallis pour les teneurs en Ni du lixiviat entre 1999 et 2000.

Estimation du fonctionnement du filtre à sable

La figure 5 montre les caractéristiques du lixiviat en amont du filtre à sable et les valeurs des concentrations à la sortie du filtre. L'étude comparative entre ces deux lixiviats nous permet de mettre en évidence les principales différences observées notamment une nette baisse de la DBO (qui passe de 141 à 81 mg/l), de la DCO qui passe de 1293 à 932 mg/l. Cette diminution est vraisemblablement attribuable à la diminution des MES. Cette chute de la charge organique nous permet de suggérer la présence d'une part très importante de MOP (matière organique particulaire). L'évolution temporelle du taux d'abattement des autres espèces chimiques est similaire à l'exception de la DBO dont l'abattement est important dans les périodes estivales, les élévations de la température stimulant l'activité bactérienne. Ceci est corroboré avec une diminution du taux d'abattement du NO2 associé aux phénomènes de nitrification. En ce qui concerne les autres paramètres, le pourcentage moyen d'élimination par le filtre est très satisfaisant pour l'ensemble des éléments (entre 20 et 80 %), à l'exception des AOX, NO₂, Ba, Cu et Sn où des valeurs négatives ont été enregistrées.

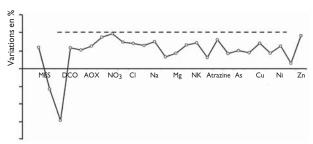


Figure 6 : Variation des taux d'abattement par la station d'Etueffont en % de certains paramètres sauf pour la DBO.

Efficacité du lagunage naturel

Le suivi de la courbe d'évolution du rendement épuratoire calculé en été 2000 pour certains paramètres est souvent très important (fig. 6), à l'exception d'un dysfonctionnement pour la DBO et MES respectivement -146 % et -57 %. Ce dysfonctionnement est vraisemblablement dû au surplus de matières organiques autochtones élaborées par l'activité photosynthétique dans les quatre bassins en période estivale. Toutefois, la DCO semble être faiblement influencée par cet apport organique ce qui nous laisse supposer que cet apport organique est vraisemblablement associé aux blooms phytoplanctoniques. Le taux d'abattement de la DCO enregistrées est de 58 %. De plus, on souligne un taux d'abattement très prometteur de l'atrazine (80 %), attribuable à sa biodégradation le long du cheminement du lixiviat d'un bassin à un autre et/ou à son piégeage au fond par les boues sur place. Ces deux processus sont favorisés par l'élévation du pouvoir oxydant du lixiviat [Kirsten Rügge et al. 1999] par brassage mécanique de l'eau en passant d'un bassin à un autre et par injection de l'oxygène produit par l'activité phytoplanctonique très intense dans les derniers bassins. Pour cela, il paraît nécessaire dans nos prochaines études de doser les différentes molécules issus de la dégradation de l'atrazine dans le lixiviat et dans les boues in-situ. En ce qui concerne les autres paramètres suivis, les taux d'abattement calculés sont très importants et plus spécialement pour le Zn avec lequel on a enregistré un rendement qui dépasse 90 %. Nos observations de 1999 à 2000 vont également dans le sens de celles rapportées par Maehlum [1995] pour des lixiviats traités par un lagunage composé (un bassin anaérobie + un bassin aéré + deux bassins à macrophytes).

CONCLUSION ET REMARQUES

Cette étude a été consacrée à l'étude de l'ensemble des paramètres biophysico-chimiques des lixiviats d'Etueffont (Belfort, France) entre 1999 et 2000. Les résultats mettent en évidence une stabilisation de la décharge. Plusieurs rapports ont été également utilisés pour confirmer cette stabilisation de la décharge tels que DBO/DCO et SO₄/Cl. Il apparaît que le prétraitement des lixiviats par des filtres à sable est très efficace dans l'élimination d'une grande partie de la charge organique.

La littérature relative à la qualité du lixiviat de décharges en France est très limitée et la caractérisation détaillée de la qualité du lixiviat présentée dans cet article peut fournir une contribution substantielle à une meilleure compréhension de la production du lixiviat et à une gestion plus efficace, y compris des options de traitement.

Remerciements

Les auteurs remercient Mr. Gérard Guyon, Maire d'Etueffont et Président du SICTOM et tous les agents techniques pour leur contribution à l'élaboration de ce travail.

* H. Khattabi, M. Schaivon et J-L. Morel

Laboratoire sols et environnement - Ecole nationale supérieure d'agronomie et des industries alimentaires - 2 avenue Forêt de Haye - 54505 Vandœuvre les Nancy.

** J. Mania

Laboratoire de mécanique de Lille, UMR CNRS 8107 - Ecole universitaire d'ingénieurs de Lille (Eudil) - 59655 Villeneuve d'Ascq.

*** H. Grisey et L. Aleya

Laboratoire de biologie et écophysiologie, Université de Franche-Comté I, Place Leclerc - 25030 Besançon Cedex. E-mail : ahfir@yahoo.fr.

Nomenclature

AGV: acides gras volatiles (mg/l)

AOX : composés organiques halogénés absorbables (µg/l)

CE: conductivité électrique (µS/cm)

DBO : demande biologique en oxygène (mg/l d' O_2) DCO : demande chimique en oxygène (mg/l d' O_2)

MES : matières en suspensions (mg/l)

NK: azote Kjeldal (mg/l)

Bibliographie

- [1] Baccini, G., Henseler R., Figi and Belevi H., 1987. Water and element balances of municipal solid waste landfills. Waste Management Res. 5, 483-499.
- [2] Barkowski D., Gunther P. and Rochert R., 1987. Atlasten. Edition C.F. Muller, Karlsruhe et al. 1987, 87-93.
- [3] Bookter T. J. B. and Ham R., 1982. Decomposition of solid waste in test lysimeters. J. Environ. Engin. Div. ASSCE., 108, 1147-1170.
- [4] Blaky N. C., 1992. Model prediction of landfill leachate production. Elsevier. Appl. Sci. London, England. 17-34.
- [5] Chian, E. S. K. and DeWalle, F. B., 1977. *Characterization of soluble organic matter in leachate*. Environmental Science and Technology 11, 158-163.
- [6] Christensen T. H., Kjeldsen P., Bjerg P. L., Jensen D. L., Christensen J. B., Baun A., Albrechtsen H. J. and Heron G., 2001. *Biogeochemistry of landfill leachate plumes*. Appl. Geochemistry. 16, 659-718.
- [7] Ehrig A., 1978. Beitrag zum quantitativen und qualitativen Wasserhaushalt von Mülldeponien. Veröffentlichungen des institut für Stadtbauwesen, Technischen Universität Braunschweig, Germany.
- [8] Emberton J. R. and Parker A., 1987. The problems associated with building on landfill sites. Waste Management and Res. 5, 473-482.
- [9] Gintautas P. A., Daniel, S. R. and Macalady D. L., 1992. *Phenoxyalkanoic acid herbicides in municipal landfill leachates*. Environmental Science and Technology 26, 517-521
- [10] Harmsen J., 1983. Identification of organic compounds in leachate from a waste tip. Water research 17, 699-705
- [11] Jasper S. E., Atwater J. W. and Mavinic D. S., 1985. Leachate production and characteristics as a function of water input and landfill configuration. Wat. Poll. Res. J. Can. 20, 43-56.

- [12] Lyngkilde, J. and Christensen, T.H., 1992. Fate of organic contaminants in the redox zones of a landfill leachate pollution plume (Vejen, Denmark). J. Contam. Hydrol. 10, 291-307.
- [13] Navarro A., Bernard D., Millot N., 1988. Les problèmes de pollution par les lixiviats de décharges. TSM., 3, 541-545.
- [14] Pohland F.G., Harper S.R., Chang K.C., Dertien J. T., and Chian E. S. K., 1985. *Leachate generation and control of landfill disposal sites*. Water Pollut. Res. J. Can. 3, 10-25.
- [15] Rodier J., 1984. L'analyse de l'eau. 7º édition Dunod, Paris.
- [16] Rugge C., Poul L., Bjerg Hans MosbÆk and Thomas H. Christensen. Fate of MCPP and atrazine in an anaerobic landfill leachate plume (Grindsted, Denmark). Water research 33, 2455-2458
- [17] Schultz B. and Kjeldsen P., 1986. Screening of organic matter in leachates from sanitary landfills using gas chromatography combined with mass spectrometry. Water research 20, 965-970
- [18] Tatsi A. A. and Zouboulis A. I.. 2002. A field investigation of the quantity and quality of leachate from a municipal solid waste landfill in a Mediterranean climate (Thessaloniki, Greece). Advances in Environmental Research 6, 207-219
- [19] Trebouet D., Schlumpf J. P., Jaouen P. and Quemeneur F., 2001 Stabilized landfill leachate treatment by combined physicochemical-nanofiltration processes. Water Research 35, 2935-2942
- [20] Weis M., Abbt-Braun G. and Frimmel F. H., 1989. Humic-like substances from landfill leachates-characterization and comparison with terrestrial and aquatic humic substances. Sci. Total Environ. 81/82, 343-352.
- [21] Zouboulis A. I., Loukidou M. X., Christodoulou, K. 2001. Enzymatic treatment of sanitary landfill leachate. Chemosphere 44, 1103-1108.