

MODÈLE NUMÉRIQUE DE COMPORTEMENT A LA LIXIVIATION A LONG TERME DE DÉCHETS STABILISÉS A L'AIDE DE LIANTS HYDRAULIQUES

M.C. Magnie - S. Brault
Inertec

Le comportement à long terme d'un matériau ne peut être simplement déduit des résultats de tests courts de conformité, tels que ceux utilisés actuellement pour l'acceptation en décharge. Il s'agit au contraire d'un problème complexe, dans lequel interviennent non seulement les caractéristiques du matériau étudié mais aussi ses conditions de stockage ou d'utilisation.

C'est pourquoi les groupes français de normalisation en charge de cette problématique ont rédigé, en tout premier lieu, une norme méthodologique, la norme ENV12920, décrivant la démarche à suivre pour mener l'étude du comportement à long terme d'un déchet stabilisé, placé dans un environnement donné.

Quel que soit le scénario envisagé, l'eau est généralement le principal facteur de migration des polluants vers l'environnement. L'étude du comportement à long terme passe donc en particulier par une étude du comportement à la lixiviation du matériau considéré.

Dans le cadre de cette méthodologie, la société Inertec, soutenue par l'Ademe a développé une démarche d'étude originale, associant tests de lixiviation et modèle numérique.

Un test de lixiviation, dérivé du test soxhlet, permet de déterminer le flux d'espèces émis par le matériau lorsqu'il est soumis à un flux d'eau constamment renouvelé. Ces résultats expérimentaux complétés par des observations minéralogiques sont alors utilisés pour caler un modèle hydro-géochimique tenant compte de la diffusion dans la porosité et des interactions chimiques entre les phases aqueuse et solide intervenant dans le matériau tout au long de la lixiviation. L'objectif de cette phase de calage est d'aboutir à une représentation minéralogique simplifiée du matériau, non exhaustive mais suffisante pour évaluer les flux de polluants pouvant être émis au contact de l'eau.

THÉORIE

La spéciation chimique

La spéciation chimique d'un système fermé a pour objectif de déterminer les concentrations des diverses espèces aqueuses, gazeuses et solides.

Le modèle géochimique prend en compte les réactions chimiques suivantes :

- réactions acide-base,
- réactions de complexation,
- réactions de dissolution/précipitation,
- solutions solides (minéraux impurs).

Chacune des espèces chimiques aqueuses ou solides est décomposée par le biais de la loi d'action de masse, en fonction d'éléments chimiques simples. Cette loi fait intervenir des constantes d'équilibre correspondant aux réactions de formation des espèces chimiques pour une température de 25 °C et à pression atmosphérique.

Le modèle utilise une base de données répertoriant environ 900 espèces chimiques aqueuses et solides inorganiques. Cette base de données a été constituée à partir de données utilisées par d'autres modèles numériques, de résultats d'études internes et de données bibliographiques. Elle est alimentée au fur et à mesure de l'acquisition de nouvelles données, en fonction des matériaux étudiés.

Le modèle calcule de plus, la densité apparente et la porosité du matériau, résultant du calcul de la spéciation, en supposant le milieu saturé,

Le transport hydrogéologique

Les hypothèses sous-jacentes au modèle de transport hydrogéologique sont les suivantes :

- L'advection est supposée nulle : $U = 0$,
- Le matériau est supposé monolithique, isotrope.

L'équation monodimensionnelle du transport de masse par diffusion en milieu poreux s'écrit alors :

$$\frac{\partial C_{\text{tot}}}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2}$$

Cette équation intègre l'influence des réactions de précipitation et dissolution et plus généralement, les interactions à l'interface solide-liquide. Le modèle applique cette équation sous forme de différences finies en tenant compte de diverses conditions aux limites.

Les coefficients de diffusion dans les déchets stabilisés et solidifiés sont d'environ 10^{-11} m²/s. Les coefficients utilisés par le modèle sont déduits des tests expérimentaux. Un traceur, en général, l'élément lithium est introduit lors de la préparation des échantillons, pour évaluer le coefficient de diffusion dans la matrice solide.

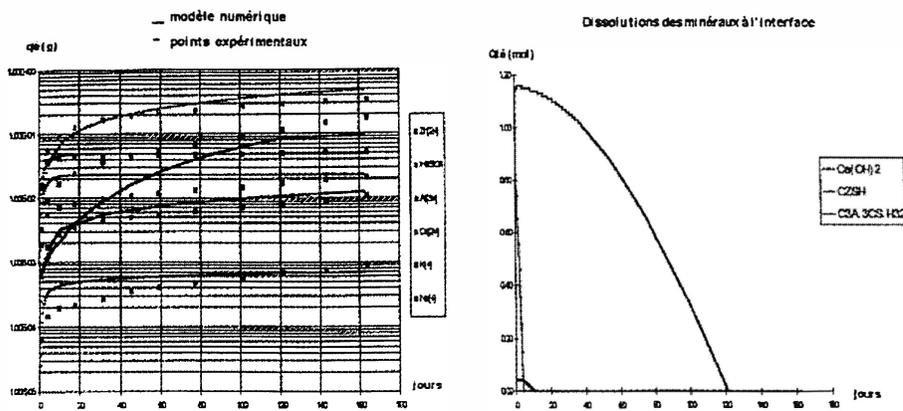


Figure 1 : courbe d'extraction des principaux éléments chimiques et dissolution des différents minéraux en présence

TEST EXPÉRIMENTAL DE LIXIVIATION ET ANALYSES

Ce test consiste à soumettre un échantillon sous forme de pastilles à un flux d'eau distillée, formé par évaporation d'une source constante. Ce test de lixiviation dynamique est effectué à température ambiante ($\approx 25\text{ }^{\circ}\text{C}$) à l'aide d'un circuit réfrigérant permettant de condenser la vapeur d'eau. L'eau contenue dans la réserve est renouvelée régulièrement et analysée. Des attaques chimiques sont réalisées à chaque prélèvement pour dissoudre les précipités éventuels dans le ballon de réserve. La fréquence des renouvellements est ajustée de manière à se placer, dans la mesure du possible, au-dessus des limites de détection des appareils de mesure. Chacun des lixiviats est analysé par ICP-ES pour les cations majeurs et les métaux lourds et par chromatographie ionique pour les principaux anions.

Un nébuliseur ultrasonique utilisé pour le dosage des polluants métalliques permet de diminuer les limites de détection. Les mesures obtenues sur les éléments traces présentent toutefois une incertitude importante.

Ce test permet d'avoir un gradient de concentration maximal entre la solution interstitielle et la solution lixiviante ce qui favorise l'extraction des espèces contenues dans le matériau.

De nombreux échantillons ont déjà été soumis à ce test qui montre une bonne reproductibilité des résultats.

RÉSULTATS

La démarche consiste à caler de façon satisfaisante les quantités extraites au cours de la lixiviation des différents éléments chimiques en commençant par les majeurs dont le comportement détermine en général, la mise en solution des polluants métalliques en plus faible concentration au sein de la matrice.

La principale difficulté est de parvenir à une représentation minéralogique simplifiée, suffisante pour évaluer le comportement du matériau à la lixiviation.

Ces phases majoritaires ont généralement des compositions

variables, plus ou moins bien connues. Les polluants parfois à l'état de traces, se trouvent généralement, inclus dans ces différentes phases avec des rapports stoechiométriques variables, ou adsorbés à leur surface. Les résultats obtenus pour une matrice artificielle de ciment portland à laquelle, a été ajoutée du zinc, sont présentés sur la figure suivante.

Le modèle simule l'effet de la lixiviation par la dissolution progressive de miné-

raux constitutifs de la matrice à savoir, la portlandite, l'ettringite et une phase de type silicate de calcium (CSH) contenant du zinc. La présence de zinc dans les silicates a été confirmée par des observations au microscope électronique à balayage par le LEM à Nancy.

On note que tous les minéraux sont dissous sur une épaisseur de 0,5 mm après quatre mois, ce qui est compatible avec le recul de l'interface observé sur les pastilles à la même période.

Des essais de calage complémentaires devraient permettre de simuler de façon plus précise les premiers jours de lixiviation. D'ores et déjà, les quantités libérées ainsi que les flux extraits calculés par le modèle présentent un accord satisfaisant avec les résultats expérimentaux pour tous les éléments suivis, à savoir les éléments majeurs constitutifs de la matrice (calcium, silicium, aluminium, potassium, sodium) et le zinc.

CONCLUSION

La démarche décrite ici, associant tests de lixiviation, analyses minéralogiques et modèle numérique, permet donc d'obtenir une bonne représentation des phénomènes de lixiviation au sein d'une matrice poreuse, et d'en déduire les flux d'espèces extraits au cours du temps.

Des tests similaires se poursuivent sur différents matériaux, matrices artificielles et matrices réelles de déchets stabilisés, présentant des caractéristiques minéralogiques diverses, de façon à compléter la base de données du modèle numérique et ainsi pouvoir simuler le comportement à la lixiviation de nombreux matériaux.

L'objectif final sera d'établir pour chaque matériau une représentation minéralogique validée par les résultats expérimentaux, de façon à pouvoir modéliser son comportement à la lixiviation à long terme dans des conditions d'exposition variable.

Cette démarche soutenue par l'Ademe, trouve tout naturellement sa place dans la méthodologie ENV12920 et pourra en particulier être utilisée dans le cadre de scénario de valorisation de déchets stabilisés.