

# BIOTRAITEMENT EN RÉACTEUR DE POLLUANTS ORGANIQUES CONTENUS DANS LES SOLS ARGILEUX

Jean-Michel Hau et Dominique Morin\*

BRGM, Service minier national, département procédés et analyses, Unité développement de procédés

Les sols argileux pollués par des molécules organiques posent problème pour tout traitement de dépollution biologique en voie statique, car, par nature, les transferts des réactifs et des produits de réaction entre la phase solide et la phase liquide ou gazeuse sont fortement limités. Le concept du traitement dynamique en réacteur agité permet d'envisager de pallier ces obstacles et donc d'envisager favorablement de traiter ces sols.

Static bioremediation of clayey soils polluted by contaminating organics is very difficult because, most of the time, both reagents and reaction products mass transfer between the solids particles and the aqueous or gaseous phases are limited. Dynamic treatment, by means of agitated and aerated bioreactors, applied to the remediation of sludge or soils represents an attractive alternative process route.

## INTRODUCTION

Les sols argileux posent problème pour tout traitement de dépollution et peuvent ne pas relever de procédés de biotraitements *in situ* ou statiques (landfarming ou en andain). En effet, de par leur perméabilité ces sols s'opposent au transfert des réactifs nécessaires que ce soit en phase gazeuse ou en phase liquide.

Il est proposé de traiter ces sols d'abord par une suite d'opérations de concentration physique afin d'en extraire la phase argileuse. Puis sur cette fraction de solide, dans laquelle se retrouve généralement l'essentiel du polluant, on pratique un traitement biologique en réacteur agité dans des conditions optimales de croissance pour des micro-organismes adaptés à utiliser le polluant comme substrat carboné. A titre d'exemple, un tel schéma d'opérations est présenté en application du traitement d'un sol contaminé par des hydrocarbures. Le bilan des performances de ce traitement est établi à partir d'une succession d'étapes d'évaluations du test laboratoire à la campagne pilote.

Les essais aux échelles laboratoire et pilote ont porté sur un sol pollué à l'origine par des hydrocarbures paraffiniques de C12 à C18, suite au débordement accidentel d'une cuve

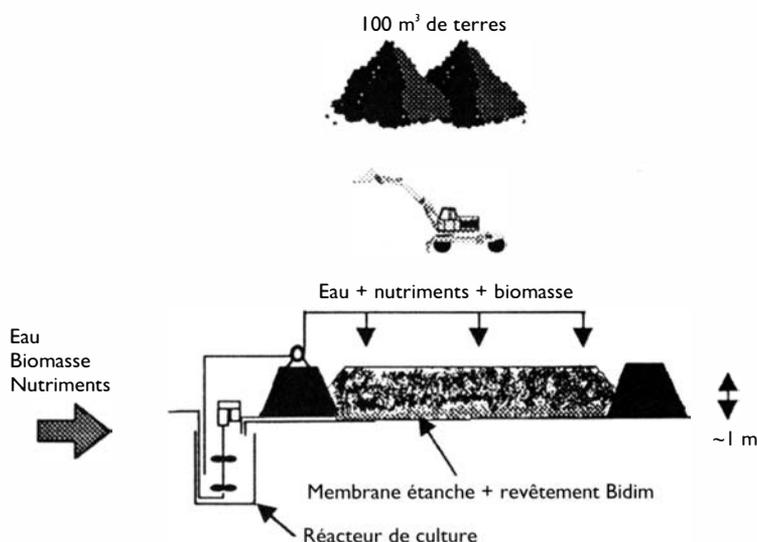


Figure 1 : Schéma de principe du Bioterre

de fioul. Les terres après excavation et transport sur le site expérimental du BRGM à Orléans ont été mises en tas, en l'état, de manière à réaliser un bioterre (figure 1). Après un ensemencement initial par un *inoculum* adapté et l'ajout d'éléments nutritifs, la biodégradation a été suivie sur une période de 6 mois, à l'issue desquels aucune baisse significative de la teneur en hydrocarbure total n'a été constatée. Ceci s'explique par la très faible perméabilité ( $10^{-6}$  m/s) des terres mises en place dans le bioterre, du fait de la présence de minéraux argileux en proportion abondante (tableau 1) : environ 26 % de la masse du sol est représentée par des particules argileuses fines, inférieures à  $63 \mu\text{m}$ . Sachant aussi que la majorité des molécules organiques polluantes se retrouve dans la fraction de particules les plus fines comme on le détaillera plus loin.

Tableau 1 : Distribution massique des fractions granulométriques du sol

Fraction granulométrique	Graviers > 2 mm	Sables grossiers 2 - 0,20 mm	Sables fins 200 - 63 $\mu\text{m}$	Argiles < 63 $\mu\text{m}$
Répartition moyenne	19,0 %	51,6 %	3,9 %	25,5 %

A partir de cet essai initial, destiné essentiellement à faire la démonstration que ce type de sol ne pouvait être traité par les procédés conventionnels en voie statique, la voie dynamique en réacteur agité a été étudiée.

La méthodologie suivie pour ces travaux est illustrée en figure 2. La caractérisation physique et chimique du sol et la réalisation de tests de biodisponibilité nous ont permis de définir un schéma de procédé, qui, par la suite, a fait l'objet d'une phase de validation en pilote. Les tests de biodisponibilité ont consisté à suivre la cinétique de biodégradation des hydrocarbures contenus dans la fraction du sol inférieure à 200 µm, pour différentes souches bactériennes. Ces tests ont été menés dans des réacteurs agités, dans lesquels le solide a été mis en pulpe à 10 % de solides. Les résultats donnés en figure 3 montrent que l'on a pu atteindre un rendement de 80 % en 4 jours. Par ailleurs, les bactéries endogènes s'avèrent aussi performantes que les souches exogènes testées.

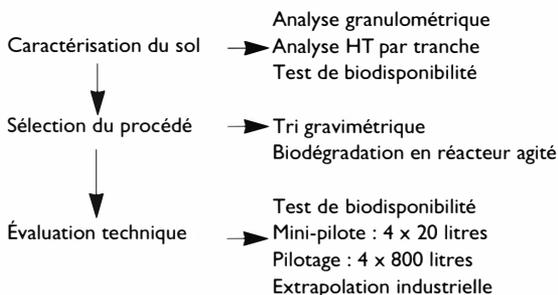


Figure 2 : Méthodologie suivie pour étudier la voie dynamique

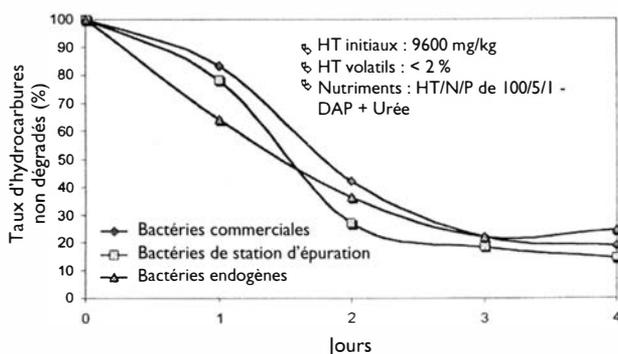


Figure 3 : Test de biodisponibilité

L'objectif du biotraitement en réacteur agité étant exclusivement de traiter les particules fines, nous avons effectué un tri granulométrique de l'ensemble des terres polluées. Cette opération réalisée dans nos installations pilote a consisté à séparer le matériau tout venant en quatre fractions granulométriques, selon le schéma de procédé illustré en figure 4. Dans un premier temps, le solide est criblé sur grille de 20 mm, de manière à évacuer les débris divers : ferrailles, blocs de scellements en bétons, morceaux de bois... Puis, il est alimenté dans un débourbeur à chaînes muni en sortie d'un panier à mailles de 5 mm. Au sortir du débourbeur, on trouve successivement deux étages de criblage, per-

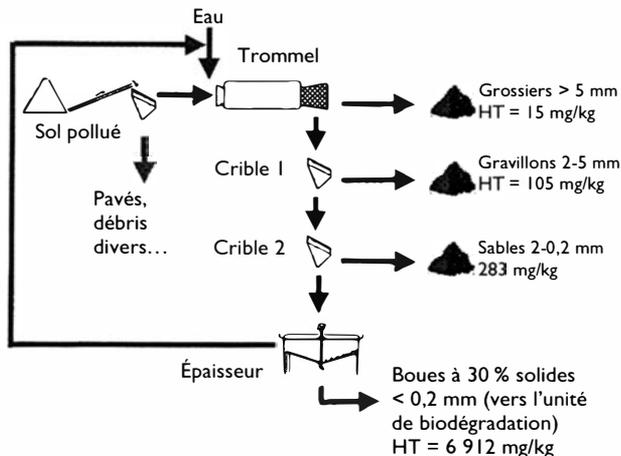


Figure 4 : Schéma de procédé du traitement de séparation granulométrique

mettant de récupérer séparément les gravillons (fraction 2 à 5 mm) et les sables (fraction 0,2 mm à 2 mm). Les fines particules (inférieures à 0,2 mm) sont épaissies dans un décanteur, de manière à recycler l'eau de procédé. Le débit de solide traité a été d'environ 1 t/jour. Les matériaux fins (< 0,2 mm), représentent 22 % de la masse totale du sol et 90 % des hydrocarbures totaux (figure 5). Les grossiers et les gravillons ont une teneur en hydrocarbures totaux inférieure (HT) à 150 mg/kg et ne nécessitent pas de traitement de décontamination. Enfin, avec 283 mg/kg d'HT, les sables justifient d'un traitement en biotertre, traitement rendu possible cette fois, du fait de l'élimination des particules argileuses. La biodégradation des hydrocarbures contenus dans la fraction fine a d'abord fait l'objet d'une étude en batch, en réacteur agité et aéré, de manière à obtenir les données cinétiques. Puis, dans un deuxième temps, le traitement a été réalisé à l'échelle pilote. Cette unité pilote (figure 6) conçue à l'origine pour étudier la biolixiviation des minerais sulfurés, comporte 4 réacteurs disposés en cascade, d'un volume unitaire de 800 litres.

Chaque cuve est aérée par injection d'air comprimé en fond de cuve et agitée avec un agitateur Brogim. Cet agitateur, mis au point par la société Robin Industrie et le BRGM, comporte deux mobiles d'agitation : une turbine de dispersion de gaz et une hélice à effet de pompage. Cet ensemble assure une bonne dispersion du solide dans la pulpe et permet une bonne utilisation de l'oxygène, pour une consommation en énergie modérée. La boue à 30 % de solides, issue de l'épaisseur est diluée dans la cuve R01 à la concentration en solides désirée. La pulpe diluée est alors alimentée dans l'unité de biodégradation par l'intermédiaire d'une pompe péristaltique. La pulpe s'écoule d'un réacteur à l'autre par gravité. Les nutriments sont ajoutés dans le premier réacteur sous forme d'une solution concentrée, constituée d'urée et de di-ammonium phosphate (DAP). Après traitement, la boue est récupérée dans une cuve tampon, puis filtrée sur filtre presse ou décantée ; l'effluent clair est alors recyclé en tête de procédé.

Aucun ensemencement de la pulpe n'a été effectué au cours des essais. En effet, les bactéries endogènes ont prouvé au

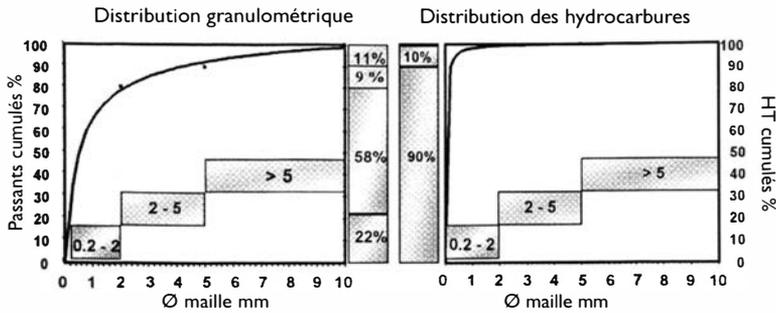


Figure 5 : Distribution des hydrocarbures totaux en fonction de la granulométrie du sol

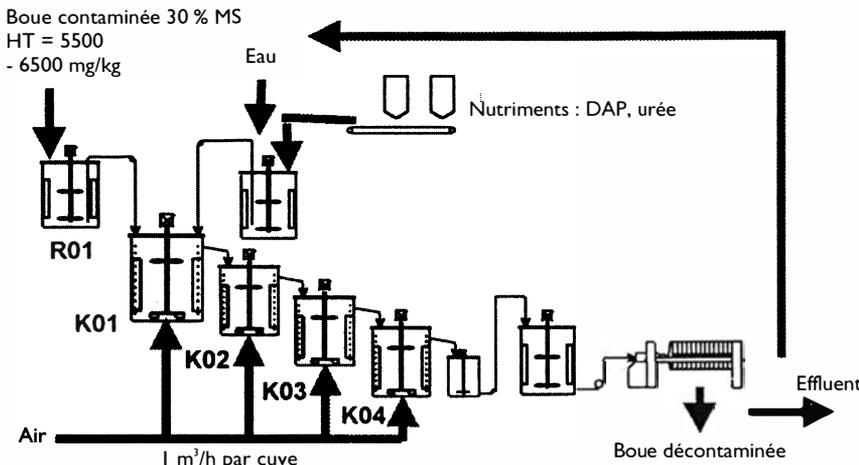


Figure 6 : Schéma de l'installation pilote

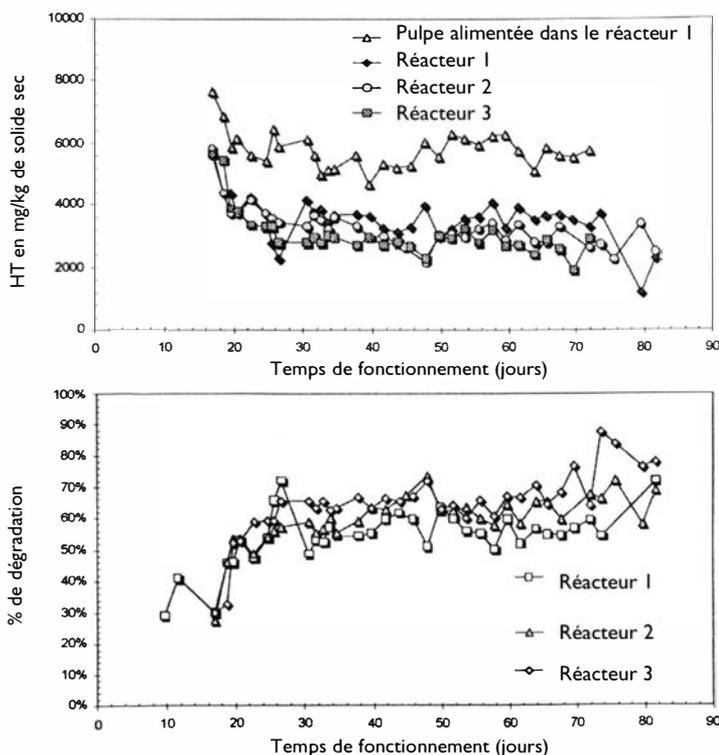


Figure 7 : Efficacité de la biodégradation en réacteur agité continu

cours de l'ensemble des essais de biodégradation menés en batch leur bonne aptitude à dégrader les hydrocarbures qui contaminent le substrat. Les concentrations en azote et phosphore dans la solution nutritive ont été calculées pour respecter le ratio massique HT/N/P de 100/5/1.

Les dix premiers jours, l'unité a fonctionné en mode discontinu de manière à stimuler le développement de la biomasse. Puis l'alimentation en pulpe fraîche a été mise en route progressivement, jusqu'à atteindre le débit nominal. En figure 7, on donne l'évolution des hydrocarbures totaux dans chacun des réacteurs pour toute la durée du pilote. Compte tenu du débit d'alimentation en pulpe, le temps de séjour moyen par cuve est de 2,2 jours.

Après stabilisation du fonctionnement, aucune amélioration du rendement de dégradation n'ayant été constatée entre les deux dernières cuves, le quatrième réacteur a été supprimé. Le rendement global de dégradation s'établit aux alentours de 80 %. Le premier réacteur effectue à lui seul 75 % du travail de biodégradation. Le passage de 20 % de solides à 30 % de solides dans l'alimentation puis progressivement dans l'ensemble des réacteurs de l'unité n'altère en rien l'efficacité du traitement.

Au total, le rendement de dégradation des hydrocarbures par rapport au sol pollué initial est de 72 %, soit une teneur recalculée des terres après traitement de 481 mg/kg. Le traitement des sables en biotertre aurait permis d'améliorer encore le rendement global de dégradation, jusqu'à atteindre de l'ordre de 80 % de dégradation.

Cette opération de démonstration à l'échelle pilote nous a permis de valider les travaux expérimentaux effectués en batch et plus particulièrement de conforter notre savoir-faire en ce qui concerne l'extrapolation des bioréacteurs à une taille industrielle et en fonctionnement dynamique.

Ces travaux de recherche et développement ont trouvé leur aboutissement dans la réalisation d'une unité industrielle de traitement de boues portuaires contaminées par des hydrocarbures et des HAP. A partir des données transmises par le client : caractéristiques de la boue à traiter, nature des polluants,

cinétique de biodégradation,... le BRGM a dimensionné l'ensemble des installations de manière à atteindre un rendement de 80 % de dégradation. Les calculs de dimensionnement effectués à partir des cinétiques obtenues en batch ont montré que pour atteindre le rendement de dégradation fixé par le client, il était préférable de mettre en œuvre une cascade de 4 bioréacteurs d'un volume unitaire d'environ 100 m<sup>3</sup>. La capacité nominale de traitement est de 15 tonnes de solides par jour. L'unité industrielle a démarré courant septembre 1996 et fonctionne de manière satisfaisante à son débit nominal. Le temps de séjour global de la pulpe est d'environ 10 jours.

Les volumes utiles de chacune des cuves s'étagent entre 130 m<sup>3</sup> pour la première cuve et 110 m<sup>3</sup> pour la dernière (figure 8). Toutes les cuves sont en acier inox et ont un même diamètre de 5 m pour une hauteur totale de 7,3 m. Elles sont équipées d'agitateur Brogim en acier inox, dont les caractéristiques sont les suivantes :

- Fournisseur : Robin Industrie, Système Brogim
- 2 hélices : Ø 1 600 mm
- 1 turbine : Ø 1 050 mm
- Puissance : 30 kW

Le débit global d'air injecté en fond de chacune des cuves est de 380 Nm<sup>3</sup>/h, le surpresseur a été dimensionné pour fournir 600 Nm<sup>3</sup>/h. Par ailleurs, le bilan thermique effectué lors du dimensionnement a montré qu'il n'était pas nécessaire de réchauffer la pulpe pour maintenir celle-ci à la température de 25 °C.

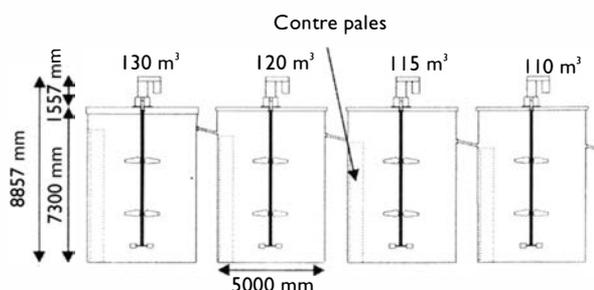


Figure 8 : Schéma de l'unité industrielle conçue par le BRGM

### CONCLUSION

Les avantages du traitement continu en bioréacteurs agités et aérés sont nombreux. Cette technologie est particulièrement bien adaptée au traitement des fines particules : boues portuaires, de forage, sédiments, argiles... qui concentrent généralement les pollutions organiques. Appliqué au traitement des sols, la biodégradation en réacteur agité doit être couplée avec un procédé de traitement physique, qui consistera dans la majeure partie des cas à séparer les constituants des sols en deux fractions granulométriques : les éléments les plus grossiers pourront être traités classiquement en biotertres ou en andains ; tandis que les éléments fins pourront faire l'objet d'un traitement en réacteur agité. Globalement, l'efficacité du procédé de traitement dynamique par rapport à la voie statique ne peut être que plus

importante car toutes les conditions sont réunies pour un fonctionnement optimal des réactions de biodégradation : les polluants organiques sont en contact intime avec la biomasse, les nutriments et l'air sont apportés dans le milieu et consommés en fonction des besoins réels exprimés. De plus, le traitement en bioréacteur se distingue par le fait qu'il permet un meilleur contrôle de la décontamination à tous les stades du développement d'un projet.

L'utilisation d'une cascade de bioréacteurs se justifie par le souci d'efficacité et de flexibilité de mise en œuvre. Une série de réacteurs est toujours plus efficace qu'un seul réacteur, entre autres parce que les court-circuitages de matières à traiter sont moins probables et que le réglage du temps de séjour est beaucoup plus précis. Cela donne aussi la possibilité d'ajuster les paramètres opératoires suivant les cinétiques de croissance des micro-organismes, permettant d'éviter en particulier le risque d'entraînement (lessivage) des souches bactériennes, et de dégradation des polluants. Le nombre de cuves à mettre en œuvre de même que les volumes unitaires résultent d'un calcul technique et économique optimisé à partir des données cinétiques de la biodégradation des polluants.

Au niveau de l'étude de faisabilité, les résultats d'essais simples, menés en batch au laboratoire peuvent être extrapolés de manière fiable, sans avoir besoin de recourir à une phase ultérieure de pilotage. On constate par ailleurs que, dans la plupart des cas, les prévisions de rendement effectuées sur la base des essais de laboratoire sont largement atteintes et même dépassées lors du passage à l'échelle industrielle. En cours de fonctionnement, les résultats de la biodégradation peuvent être suivis quotidiennement, très simplement, par prélèvement d'un échantillon en sortie de la cascade de réacteurs.

Enfin, cette technologie nous paraît particulièrement adaptée à la mise en œuvre d'agents biologiques spécifiques ou à la dégradation de molécules organiques complexes. Cependant, on se gardera bien d'opposer les deux technologies, car en définitive elles sont complémentaires l'une de l'autre : la biodégradation en voie statique doit être privilégiée dès lors que le facteur temps n'est pas essentiel, que l'étendue de la pollution reste limitée et à condition que le substrat minéral soit tel que l'accès de la biomasse aux contaminants organiques est aisé.

Les investissements nécessaires pour la réalisation d'une cascade de bioréacteurs fonctionnant en continu sont plus importants que ceux réalisés dans le cadre d'un traitement en voie statique. Aussi, la rentabilisation des investissements et donc la diminution du coût à la tonne traitée passe soit par la mise au point d'unités mobiles, de taille raisonnable, soit par l'ouverture de centres industriels de traitement à grande capacité de production.

#### \* Jean-Michel Hau et Dominique Morin

BRGM, Service minier national, Département procédés et analyses, Unité développement de procédés - Avenue C. Guillemin BP 6009 - 45060 Orléans cedex 2