## Recirculation de concentrats de lixiviats issus d'un procédé de traitement par évaporation

Christine Bordier<sup>1</sup>, Stéphanie Bobee-Flandrois<sup>1</sup>, Marie-Laure Munoz<sup>2</sup> et Yann Moreau-Le Golvan<sup>2</sup>

## Introduction

Il est assez généralement admis que la recirculation des lixiviats dans les centres de stockage de déchets ménagers favorise l'activité bactérienne par apport d'humidité et de nutriments et permet ainsi de réduire le temps de stabilisation de la décharge et ses coûts d'exploitation (Pohland et Al-Yousfi, 1994). De plus, en activant la biodégradation des déchets, la charge polluante des lixiviats recirculés est réduite et la production de biogaz, énergétiquement valorisables, est accrue (Reinhart et Basel Al-Yousfi, 1996). Ces avantages ont poussé le CReeD à rechercher les possibilités d'application de cette technique à la recirculation de concentrats de lixiviats produits par un nouveau procédé de traitement par évaporation ; cette recirculation pourrait également permettre d'éviter la mise en décharge de classe 1 de ces résidus, nécessitant une déshydratation poussée et une stabilisation préalables. Cependant, la nature des concentrats pourrait avoir des effets négatifs tels que : (i) un ralentissement de la biodégradation des déchets et une diminution de la production de biogaz dus à la toxicité potentielle des concentrats sur la biomasse bactérienne, (ii) une augmentation de la charge polluante des lixiviats à l'aval du casier de recirculation (lixiviats effluents) à cause de la forte charge des concentrats recirculés. Afin de déterminer les impacts de la recirculation de concentrats sur la qualité et la quantité des lixiviats effluents et sur la production de biogaz, une étude sur pilotes de laboratoire a été entreprise au Cemagref en collaboration avec le CReeD. Cet article présente les principaux résultats obtenus après 15 mois de suivi des pilotes.

## Matériels et méthodes

# Description des pilotes et instrumentation

Deux colonnes en PVC transparent, de 1,20 m de hauteur et 0,45 m de diamètre, ont été remplies avec des déchets ménagers reconstitués ensemencés par de la boue de station d'épuration constituant 5 % du poids total des déchets ménagers. Au fond des colonnes une couche drainante granulaire de 30 cm d'épaisseur (de granulométrie 10/50 mm) a été disposée pour permettre l'écoulement des lixiviats effluents. Un capteur de température a été installé dans la masse de déchets de chaque colonne. La température du laboratoire a été régulée à 32° C pour permettre un bon développement bactérien dans les colonnes. Des électrodes ont été installées dans la couche drainante pour mesurer le pH et le potentiel rédox des lixiviats effluents avant leur sortie. Un sac en Tedlar a été disposé en haut de chaque colonne pour permettre la collecte des biogaz.

## Conditions et étapes expérimentales

En début d'expérimentation, les déchets ont été saturés pendant 3 jours avec un mélange d'eau et de lixiviats (respectivement 45,5 l et 43 l) pour obtenir une production immédiate de lixiviats et pour favoriser le développement bactérien. Ensuite, la colonne appelée colonne témoin a été alimentée avec de l'eau tandis que la colonne appelée colonne test a été alimentée avec de l'eau et du concentrat. Les débits d'eau et de concentrats apportés dans la colonne test ont été déterminés à partir du bilan hydrique théorique d'un centre de stockage de déchets utilisé comme modèle. Pour

Les contacts 1. *Cemagref*-Antony Parc de Tourvoie BP 44 92163 Antony Cedex 2. CReeD, Zone Portuaire de Limay, 291 av. Dreyfous Ducas, 78 250 Limay ce site modèle, le rapport entre débit d'eau et débit de concentrats a été estimé à 0,9115 ; le même rapport a été imposé et maintenu constant dans la colonne test. Pendant les 80 premiers jours, la colonne test a reçu 55 ml/j de concentrat, puis ce débit a été porté à 82,7 ml/j. Les débits d'eau correspondants injectés dans les deux colonnes ont été de 50 ml/j puis 73 ml/j. Trois concentrats de qualités différentes ont été injectés dans la colonne test à cause de la variabilité de qualité des lixiviats à l'origine de la production des concentrats. Le premier concentrat, injecté pendant 160 jours, était plus acide et avait une charge minérale et organique beaucoup plus importante que les deux autres injectés respectivement pendant 63 et 177 jours (tableau 1).

#### Analyse des lixiviats et des biogaz

Plusieurs paramètres, notamment les chlorures, le potassium, l'ammonium, la DCO, le pH et le potentiel rédox, ont été mesurés deux fois par semaine pendant les 6 premiers mois de suivi, puis toutes les trois semaines. Pour déterminer l'impact de la recirculation des concentrats, le suivi des bilans massiques de polluants a semblé plus adapté que le suivi de leurs concentrations, qui aurait pu masquer des différences entre les deux colonnes du fait des débits différents d'alimentation et de lixiviats effluents. L'activité bactérienne des lixiviats a été estimée par comptage du nombre de bactéries aérobies et anaérobies sur boîtes de Pétri. La quantité de biogaz produits par chaque colonne et leur teneur en CH, et CO, ont été comparés. Les déterminations de la masse, la densité et la teneur en matière sèche des concentrats et lixiviats effluents ont permis de calculer le volume d'eau injecté par l'intermédiaire des concentrats dans la colonne test et d'effectuer un bilan hydrique sur les deux colonnes.

## **Résultats et discussion**

#### Tendances générales

#### Production de lixiviats

La restitution en eau a été presque intégrale dans les deux colonnes pendant toute l'expérimentation : respectivement 96 % et 94 % de l'eau introduite ont été régulièrement restitués par la colonne témoin et la colonne test dans les lixiviats effluents. On n'observe donc pas de différence de comportement hydrique global entre les deux colonnes. Henigin (1995) obtenait respectivement 94,6 % et 95,3 % de restitution pour ses colonnes témoin et test. Nous pouvons attribuer comme lui l'absence d'abattement des volumes d'eau injectés à des conditions en laboratoire différentes des conditions de site à savoir : (i) que l'évaporation et le ruissellement sont inexistants dans les colonnes et (ii) que la capacité d'emmagasinement des déchets a été atteinte lors de la saturation initiale des colonnes.

#### Qualité des lixiviats

Pendant les 80-90 premiers jours, aucune différence significative de qualité des lixiviats effluents n'a été observée entre les deux colonnes. Ce « retard » dans la restitution du concentrat est lié au temps de transfert de l'eau et au phénomène d'écoulement-piston démontré par Johnson et al. (1998) dans le cas d'un centre de stockage de cendres d'incinération d'ordures ménagères : ceux-ci montrent que lorsque l'humidité des déchets est importante - ce qui est notre cas après saturation des déchets - 90 % de l'eau restituée après un événement pluvieux correspond à de l'eau présente dans le CSD avant cet événement pluvieux. Pour évaluer le temps de transfert de l'eau dans nos colonnes, un traçage au chlorure de lithium a été engagé. Le lithium a été détecté dans la colonne témoin 150 jours après l'injection (effectuée le 294<sup>e</sup> jour) et n'est pas encore détecté dans la colonne test.

#### Développement bactérien

Après une évolution globalement similaire du développement bactérien dans les deux colonnes, la population bactérienne de la colonne témoin seule s'est fortement accrue à partir du 300<sup>e</sup> jour. Cette intense activité bactérienne s'est accompagnée de la hausse du pH jusqu'à 8 et de la chute du potentiel rédox jusqu'à –300 mV ; ces événements caractérisent certainement le passage d'acidogénèse en acétogénèse et méthanogénèse,

Tablaau 1			conductivité							
	Concentrat	pН	mS/cm	azote total	ammonium	DCO	fer total	calcium	potassium	chlorures
Caractéristiques	1	4.6	195,4	16 000	12756	65 000	364	83 000	22 400	247 000
chimiques des	2	8.2	47,7	2 6 4 0	_	8 875	630	1 050	5 450	13 200
concentrats injectés (mg/l).	3	7,8	35,5	40 400	80	32 000	66	500	2 170	11 400

phases qui favorisent le développement d'une population bactérienne variée. Dans la colonne test, la toxicité potentielle des concentrats et l'acidité résiduelle du premier concentrat injecté (de pH = 4,6) pourraient expliquer le plus faible développement bactérien observé sur la figure 1.

#### Production de biogaz

Les productions moyennes de gaz ont été respectivement de 1,7 et 1,2 l/j pour la colonne témoin et la colonne test. De 100 à 160 jours, la colonne test a montré une production de biogaz plus intense que la colonne témoin (figure 2). Cette évolution est probablement due à l'humidité plus importante dans la colonne test, qui a légèrement favorisé la croissance bactérienne et la biodégradation des déchets à cette période (*cf.* figure 1). Au 150<sup>e</sup> jour, cet effet favorable a disparu et la production de biogaz a retrouvé la même tendance dans les deux colonnes. On peut supposer que la forte charge polluante des concentrats, qui se transfère lentement dans les déchets (cf. supra), a fini par produire un effet toxique et par limiter la production de biogaz. À partir du 240<sup>e</sup> jour, la méthanogénèse s'est établie dans la colonne témoin, marquée par une production intense de biogaz, tandis qu'un faible rythme de production du biogaz s'est maintenu dans la colonne test. C'est seulement au 300<sup>e</sup> jour que l'intensité de production du biogaz s'est à nouveau accrue dans la colonne test, marquant certainement la reprise de la méthanogénèse dans cette colonne. Après 400 jours, la production totale de biogaz dans la colonne test est inférieure à celle de la colonne témoin de 29 %. Cependant, les compositions des biogaz ont globalement été similaires dans les deux colonnes la majorité du temps : 45-50 % de CH<sub>4</sub> et 45 % de CO<sub>2</sub>.

#### Bilans massiques

Les quantités d'éléments dissous dans les lixiviats effluents de la colonne test ont été comparées aux quantités introduites par les concentrats et aux quantités dans les effluents de la colonne témoin. Pour prendre en compte le temps de transfert des solutés, les courbes représentant les quantités introduites par les concentrats ont été décalées dans le temps du nombre de jours nécessaires à la colonne test pour restituer 20 % de plus de solutés que la colonne témoin, sauf pour les chlorures dont le comportement est un peu particulier.

#### Chlorures

La restitution des chlorures contenus dans les concentrats a commencé après 93 jours (figure 3).



Après 400 jours, la colonne test a restitué 2,802 kg de chlorures alors que seuls 2,743 kg ont été introduits par les concentrats et que la colonne témoin n'a restitué que 0,027 kg. Si on décalait la courbe d'entrée des chlorures du temps nécessaire à leur transfert (environ 93 j), l'excès de chlorures serait encore plus marqué. Ce résultat peut être expliqué par la sursaturation en chlorures du premier concentrat injecté, qui contenait une phase solide cristallisée non prise en compte dans l'analyse des concentrats. Au contraire de Henigin (1995), qui n'observait pas d'accroissement significatif de la concentration en chlorures dans les lixiviats après 229 jours d'expérimentation, nous obtenons une restitution intégrale des chlorures contenus initialement dans les concentrats.

#### Potassium

En prenant en compte le temps de transfert du potassium d'environ 83 jours, la restitution du potassium par la colonne test est estimée à environ 75 % du potassium introduit par les concentrats après 400 jours d'expérimentation (figure 4). Une courbe similaire est obtenue pour le bilan massique de l'ammonium dont la restitution par la colonne test est d'environ 88 %.

#### DCO

La DCO n'est pas un paramètre cumulatif mais elle est corrélée à la teneur en matière organique, qui, elle, est un paramètre cumulatif. Des courbes de masses cumulées de DCO en fonction du temps ont donc tout de même été tracées. La courbe de DCO entrante a été décalée du nombre de jours qui ont été nécessaires pour que les courbes de DCO sortantes des deux colonnes deviennent significativement différentes (figure 5). À partir du 200<sup>e</sup> jour, la DCO des concentrats a commencé à être partiellement restituée, pour paraître intégralement restituée au 400<sup>e</sup> jour, si l'on compare la DCO cumulée entrante (687 g) à la différence entre les restitutions cumulées de DCO de la colonne témoin et de la colonne test (763 g). Ce résultat est très différent de celui de

Henigin (1995), qui observait des mécanismes de dégradation biochimique contribuant à abattre la charge organique à la fois des déchets et des concentrats. Notons par ailleurs que dans la colonne témoin, la diminution après 290 jours de la DCO sortante, simultanément à l'augmentation du pH de 5,5 à 8, est caractéristique de la méthanogénèse.

### Conclusion

Jusqu'à maintenant, cette expérimentation de laboratoire encore en cours tend à montrer un impact défavorable de la recirculation des concentrats sur deux points principaux. (i) La charge organique et minérale des lixiviats effluents s'est accrue du fait d'une forte restitution de la pollution des concentrats, pas immédiate (retard de 90 à 200 jours) mais atteignant 75 à 100 %. (ii) Une activité bactérienne faible, probablement due à la toxicité des concentrats, a été observée : cela a conduit à une perturbation de la production de biogaz, traduisant une biodégradation des déchets ralentie, même si la composition du biogaz est restée caractéristique d'une phase méthanogène. Cependant, ces résultats sont représentatifs de ce qui s'est passé à l'échelle d'un pilote et ne peuvent pas être généralisés directement à l'échelle d'un site. De plus, les prochains résultats de cette étude permettront de confirmer ou d'infirmer les tendances actuelles. 



🔺 Figure 4 – Bilan massique du potassium.



Figure 5 – Bilan massique de la DCO.

#### Résumé

La recirculation des lixiviats dans les centres de stockage de déchets ménagers tend à être reconnue comme une technique (i) accélérant la biodégradation des déchets, (ii) réduisant la charge polluante des lixiviats et (iii) augmentant la production de biogaz en favorisant l'humidification des déchets et l'activité bactérienne. Afin d'évaluer l'impact de la recirculation de concentrats de lixiviats sur la qualité et la quantité des lixiviats et des biogaz produits, le CReeD a lancé une étude de laboratoire en collaboration avec le Cemagref. Deux colonnes ont été remplies avec des déchets-type reconstitués ; la première colonne ou colonne témoin a été alimentée avec de l'eau et la seconde colonne ou colonne test a été alimentée avec de l'eau et des concentrats de lixiviats. Les résultats actuels (après 400 jours de suivi) montrent que la méthanogénèse est apparue plus tardivement dans la colonne test que dans la colonne témoin. Les concentrats semblent empêcher le développement bactérien comme le montre la production de biogaz plus faible dans la colonne test (29 % plus faible que dans la colonne témoin en volume). La charge organique des concentrats apparaît intégralement restituée dans les lixiviats. Le bilan hydrique montre que 97 % des volumes recirculés sont immédiatement restitués tandis que la restitution de la charge minérale des concentrats est retardée mais presque intégrale (70 à 100 % de restitution). La principale conclusion est que la recirculation des concentrats ne semble pas avoir les mêmes effets bénéfiques que celle des lixiviats. Les prochains résultats de cette étude en cours permettront de confirmer ou d'infirmer les tendances observées.

#### Abstract

It is established that landfill leachate recirculation (i) speeds up waste biodegradation, (ii) reduces leachate pollution and (iii) increases biogas production by enhancement of waste moisture content and consecutive activated biological degradation. To evaluate the impact of leachate concentrate recirculation on leachate quantity and quality and biogas production, CReeD has conducted a laboratory study in co-operation with *Cemagref.* Two columns have been filled with a reconstituted typical waste; check column received only water whereas test column received water and concentrates. Present results (after 400 days of monitoring) show that methanogenesis has installed later in test column than in check column. The concentrate seems to hinder bacterial development as shown by the smaller biogas production of the test column (29% smaller than the check one in volume). The organic load of concentrate appears totally restituted. The hydric balance shows that 97% of the recirculated volumes are immediately restituted whereas restitution of the mineral load of concentrate is delayed but also nearly total (70 to 100% of restitution). The main conclusion is that concentrate recirculation has not the same beneficial effects as the leachate one. Future results of the still ongoing study will allow knowing if actual trends are confirmed.

#### Bibliographie

HENIGIN, P.L.A. Recirculation of leachate concentrate from reverse osmosis. *Sardinia 95, Fifth International Landfill Symposium*, S. Margherita di Pula, Cagliari, Italy, p. 437-450.

JOHNSON, C.A., RICHNER, G.A., VITVAR, T., SCHITTLI, N., EBERHARD, M. ,1998. Hydrological and geochemical factors affecting leachate composition in municipal solid waste incinerator bottom ash. Part I: The hydrology of landfill Lostorf, Switzerland. *Journal of Contaminant Hydrology*, 33(3-4), p. 361-376.

POHLAND, F.G. et AL-YOUSFI, B., 1994. Design and operation of landfills for optimum stabilization and biogas production. *Water science technology*, 30(12), p. 69-71.

REINHART D.R. et BASEL AL-YOUSFI, A., 1996. The impact of leachate recirculation on municipal solid waste landfill operating characteristics. *Waste Management & Research*, 14(4), p. 337-346.