

La durabilité des géosynthétiques dans les installations de stockage de déchets : le projet Durageos

Les géosynthétiques sont de plus en plus utilisés pour renforcer les barrières d'étanchéité des installations de stockage des déchets non dangereux. Afin de réduire l'impact environnemental des installations, les utilisateurs de ces matériaux ont donc besoin de guides et de recommandations sur leur mise en œuvre délicate, mais également d'estimations sur leur durée de vie. Cet article nous présente les moyens mis en œuvre par le projet Durageos pour mieux connaître et prédire les processus de vieillissement des géomembranes en polyéthylène haute densité et des géosynthétiques bentonitiques.



a gestion des déchets a connu ces deux dernières décennies une profonde mutation avec l'essor de nouvelles techniques de valorisation des déchets (recyclage, méthanisation, traitement mécanique-biologique, compostage...) au côté des deux filières tradi-

tionnelles (incinération et stockage). Malgré les propositions actées du Grenelle Environnement pour une réduction des flux de déchets non dangereux à destination du stockage et de l'incinération (moins 15 % d'ici 2012), le stockage constitue encore aujourd'hui leur mode d'élimination majoritaire en France comme dans le monde, et les installations de stockage de déchets non dangereux (ISDND) demeureront pendant des décennies un maillon incontournable dans une chaîne intégrée de traitement des déchets (photo ①).

Pour toutes les ISDND (en cours d'exploitation, en projet ou fermées), la minimisation des impacts constitue un enjeu économique, environnemental, sanitaire et social important. Afin de diminuer les risques sur l'environnement, les dispositions réglementaires, notamment l'arrêté ministériel du 9 septembre 1997 modifié (arrêté du 9/9/97), imposent une étanchéité composite, en fond et sur les talus des casiers. Celle-ci comporte une barrière active, constituée d'une géomembrane (GMB), souvent en polyéthylène haute densité (PEHD), et d'une barrière passive constituée du terrain naturel avec des contraintes en termes d'épaisseur et de perméabilité (1 mètre de matériau de conductivité hydraulique inférieure ou égale

à 10^{-9} m.s⁻¹, surmontant 5 mètres de matériau de conductivité hydraulique inférieure ou égale à 10^{-6} m/s). Dans le cas où cette barrière ne répond pas naturellement aux critères réglementaires, elle peut être complétée artificiellement et renforcée par d'autres moyens permettant de garantir une protection équivalente, par exemple par un géosynthétique bentonitique (GSB) (Touze-Foltz *et al.*, 2008).

Dans une optique générale de réduction de l'impact environnemental du stockage, se pose la question de l'adéquation de la durée de vie des barrières d'étanchéité et de l'évolution de leurs propriétés avec une éco-compatibilité acceptable du massif de déchet, en tenant compte à la fois des risques physiques et des risques perçus par la société. Malgré les nombreux travaux menés sur la dégradation des géosynthétiques dans les ISDND, aujourd'hui, il n'existe pas d'outil de prédiction de leur durée de vie. Cette lacune s'explique par le fait que la plupart des études qui portent sur la durabilité des géosynthétiques, d'une part n'intègrent pas l'ensemble des mécanismes de vieillissement (physico-chimique, mécanique et biologique), et d'autre part, se basent sur des méthodes empiriques (loi d'Arrhenius ou utilisation d'un facteur d'accélération...) qui peuvent conduire à des extrapolations hasardeuses. De plus, la quantification des paramètres de transfert dans les géosynthétiques n'a été effectuée jusqu'ici que pour des matériaux vierges.

Dans ce contexte, le projet Durageos, présenté ici, a pour objectifs de compléter un modèle cinétique de prédiction de la durée de vie des GMB dans les ISDND, qui



© Véolia propreté

1 Casiers d'une installation de stockage de déchets non dangereux.

nécessite d'étudier et de quantifier simultanément les vieillissements biologique, physique et chimique des géosynthétiques dans ce contexte particulier, de quantifier les transferts dans les matériaux et leur l'impact physico-chimique sur l'environnement et leurs externalités. Dans l'objectif de prévenir les risques de pollution de l'environnement, le couplage du modèle cinétique de prédiction de la durée de vie avec un modèle de transfert des matières à travers les géosynthétiques, en liaison avec les mesures du potentiel écotoxique des flux de matière, est réalisé. Les vieillissements accélérés réalisés en laboratoire et les modèles doivent être validés à l'aide de vieillissements réels sur site.

Les transferts de matières engendrés par le vieillissement sont la cause d'externalités physiques ou perçues comme pouvant créer de la conflictualité dans la gouvernance territoriale du stockage des déchets. Ainsi, le projet Durageos se donne également l'objectif de quantifier les externalités (si possible sous forme monétaire) liées aux transferts dans les géosynthétiques, en fonction de leur vieillissement.

Durageos est un projet financé par le programme C2D2 du RGC&U du MEDDTL¹ pour la période 2009-2012. Il est labellisé par les pôles de compétitivité Advancity et Axelera.

Cet article a pour but de présenter les moyens mis en œuvre par le projet Durageos pour mieux connaître et prédire les processus de vieillissement des géomembranes (GMB) en polyéthylène haute densité (PEHD) et des géosynthétiques bentonitiques (GSB).

État de l'art

Depuis deux décennies, le vieillissement des géosynthétiques a fait l'objet de plusieurs études, dont nous citerons les principales ayant trait aux déchets ménagers, en considérant successivement les produits à base de PEHD, et ceux à base de bentonite (GSB).

Vieillissement des PEHD

En fond d'installation de stockage de déchets, les géomembranes en PEHD subissent des contraintes thermiques (jusqu'à 50 °C à 60 °C) générées par les réactions de dégradation des déchets, et sont en permanence au contact d'une population riche et diversifiée de

microorganismes. Le vieillissement des géomembranes en PEHD dans les ISDND, alvéoles et bassins, a uniquement été étudié pendant des durées d'expositions relativement courtes (deux à quinze ans) sous des concentrations faibles en oxygène. C'est pourquoi de fortes dégradations du PE n'ont pas été observées.

Dans des conditions accélérées, en respectant les conditions ambiantes des sites, le vieillissement des géomembranes est caractérisé par :

- la perte d'antioxydants, mise en évidence par mesure des temps d'induction à l'oxydation (TIO) par analyse thermique sous oxygène (ISO 11357) ;
- la formation de groupements chimiques typiques de l'oxydation d'un polymère détectables par spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (Koutny *et al.*, 2006) ;
- des coupures de chaînes à l'origine de la fragilisation des polymères, mises en évidence par chromatographie d'exclusion stérique (CES) (Koutny *et al.*, 2006) ;
- des changements de la microstructure du PE (modification des teneurs en phases amorphes et cristallines), évalués par analyses enthalpiques différentielles (AED) (Koutny *et al.*, 2006) qui contribuent également à la fragilisation.

Par ailleurs, les géosynthétiques sont souvent considérés comme inertes biologiquement dans les conditions d'utilisation en centre de stockage. Cependant, même si ces polymères sont particulièrement résistants à la biodégradation, des études ont montré que certains microorganismes sont capables de dégrader le polyéthylène pré-oxydé (Koutny *et al.*, 2006 ; Albertsson *et al.*, 1998) voire vierge (Yamada-Onodera *et al.*, 2001). La biodégradation des géosynthétiques, peu étudiée jusqu'à présent, pourrait donc s'avérer être un facteur de vieillissement dont l'influence a jusqu'à présent été nettement sous-estimée.

L'estimation de la durée de vie du polymère est en général réalisée à partir des essais accélérés à température élevée (T_{essai}) par utilisation de la loi d'Arrhenius, qui permet en principe d'extrapoler le temps de fragilisation t_f obtenu à T_{essai} à la température réelle d'utilisation du polymère. Toutefois, cette approche empirique a été mise en échec (discontinuités dues au passage d'une transition physique, au contrôle par la diffusion d'espèces, en particulier l'oxygène dans le cas de l'oxydation...). Une approche non empirique est préférable pour une prédiction fiable. Elle implique une analyse systématique des processus conduisant à la fragilisation, une modélisation cinétique des processus chimiques et enfin l'utilisation des relations structure-propriétés physiquement établis (Fayolle *et al.*, 2008).

1. Programme de recherche « Concevoir et construire pour le développement durable » du Réseau Génie civil et urbain du ministère de l'Écologie, du Développement durable, du Transport et du Logement.

► L'étude bibliographique révèle le manque actuel d'une véritable validation des prédictions de vieillissement déduites des essais accélérés par analyse d'échantillons prélevés sur site après un vieillissement naturel suffisant.

Vieillissement des géosynthétiques bentonitiques (GSB)

Les géosynthétiques bentonitiques (GSB) sont de plus en plus utilisés en ISDND pour l'amélioration de l'étanchéité passive du site. Ils sont cités comme une solution envisageable pour l'équivalence en flanc dans le guide proposé par le ministère de l'écologie pour définir des équivalences d'étanchéité entre solutions avec ou sans GSB (MEEDDAT, 2009), d'où l'importance de l'étude de leur vieillissement. Guyonnet *et al.* (2009) ont élaboré une méthodologie de vieillissement des GSB par l'utilisation d'un lixiviat synthétique représentatif de la composition chimique des lixiviats rencontrés en installations de stockage de déchets. Ils ont observé par ce biais une évolution significative de la conductivité hydraulique des GSB. C'est cette méthodologie qui sera retenue pour générer le vieillissement des GSB.

Si l'évolution de la conductivité hydraulique du GSB générée par l'échange cationique est quantifiée, il n'en va pas de même pour les coefficients de diffusion dans les GSB. Ainsi, on dispose de coefficients de diffusion de composés organiques volatils (COV) pour des géosynthétiques bentonitiques vierges et pour des géomembranes vierges (Rowe *et al.*, 2005), mais pas pour des géosynthétiques vieillis. Qui plus est, la quantification des transferts n'a pas été effectuée pour d'autres composés organiques que les COV, alors qu'il en existe une multiplicité dans les lixiviats. Avant de pouvoir tenter une quantification des impacts des transferts de lixiviats à travers les barrières, il est donc essentiel de quantifier les paramètres (coefficients de diffusion et des coefficients d'adsorption et de partition) pour de plus nombreux polluants, ainsi que leur évolution au cours du vieillissement des géosynthétiques.

Conséquences du vieillissement des géosynthétiques

Le vieillissement des géosynthétiques conduit à une chute éventuelle des performances d'étanchéité dont les conséquences écotoxicologiques et économiques doivent être mesurées. L'impact des lixiviats de déchets sur le fonctionnement des écosystèmes terrestres et aquatiques est un point qui préoccupe les gestionnaires d'ISDND. Des essais en laboratoire ont été réalisés sur des organismes cibles des milieux récepteurs comme les poissons, les daphnies, les algues, les bactéries (Pandard, 2006). Ces données toxicologiques complètent bien les analyses physicochimiques. Toutefois, très peu d'études sur sites ont à ce jour été réalisées. La bibliographie sur les conséquences économiques s'avère également très pauvre.

Moyens scientifiques définis par lot

Afin de mieux connaître, prédire et maîtriser les processus de vieillissement à long terme des barrières géosynthétiques utilisées dans les ISDND, un modèle cinétique

de prédiction du vieillissement oxydatif des PEHD, qui prend en compte les effets des attaques bactériennes et un modèle de transferts de matières polluantes, sont développés. Les méthodes de vieillissement de laboratoire et les modèles seront validés par les résultats obtenus à partir de géosynthétiques prélevés sur site.

Pour répondre à ces objectifs, le projet Durageos est structuré en sept lots interdépendants.

Lot 1 : mise au point et réalisation d'essais de vieillissement représentatifs

Différents types de vieillissements sont considérés :

- les vieillissements chimiques, qui sont réalisés dans différents milieux à une température de 35 °C afin de ne pas altérer les communautés microbiennes présentes dans les lixiviats. L'accélération est assurée par une augmentation de la concentration en microorganismes. Les vieillissements sont tout d'abord réalisés sur des PEHD purs (sans additifs), vierges ou oxydés, puis sur des échantillons contenant des quantités connues d'additifs, et enfin sur une GMB commerciale ;
- le vieillissement sous une action mécanique des GMB en PEHD soudées ou non qui est étudié à l'aide d'essais qui se rapprochent des essais de « stress cracking », mais qui en diffèrent du fait qu'ici, on travaille à déformation imposée et non à contrainte imposée pour mieux reproduire les conditions in situ. Les échantillons soumis à un effort de traction et à un poinçonnement par granulats sont immergés dans un bain de lixiviat ;
- le vieillissement de GSB par échange cationique qui est étudié en considérant plusieurs compositions cationiques de lixiviats sont envisagées pour atteindre différents stades de vieillissement et reproduire la gamme des concentrations cationiques retrouvées en ISDND.

Lot 2 : prélèvement d'échantillons de lixiviats et de géosynthétiques neufs et vieillis sur site

La validation d'essais de vieillissements accélérés réalisés sur des échantillons de laboratoire comme les modèles de transferts de matière dans l'environnement et de prédiction de la durée de vie des géosynthétiques employés dans les ISDND nécessite une comparaison avec des matériaux vieillis réellement sur site. Ce lot a pour objectif de se procurer des géosynthétiques (vierges et vieillis dans différentes conditions réelles) et des lixiviats dont les prélèvements sont faits en fonction des pratiques de mise en place chez les principaux partenaires industriels.

Face à la difficulté de prélever des géosynthétiques en fond de casier, qui nécessite une excavation des déchets inenvisageable pour l'exploitant, bien que les contraintes mécaniques et en moindre mesure chimiques soient différentes, des géosynthétiques provenant de bassins de lixiviats pourront être étudiés.

Lot 3 : étude de la biodégradabilité des géomembranes

La biodégradation des géosynthétiques, peu étudiée dans les lixiviats d'ISDND, pourrait s'avérer être un facteur de vieillissement non négligeable. En effet, la barrière

d'étanchéité est en contact avec une population riche et diversifiée de microorganismes présents dans les lixiviats. Dans ce lot, on cherche à évaluer la biodégradabilité des GMB dans différentes conditions d'oxydoréduction et à identifier des microorganismes responsables.

Dans un premier temps, la biodégradabilité de PE « modèles » dans différentes conditions est évaluée en utilisant des échantillons de polyéthylène enrichis en ^{13}C , neufs et préalablement vieillis, introduits dans un milieu tampon contenant un inoculum provenant d'un lixiviat d'installation de stockage de déchets. Dans les incubations où une biodégradation du PE aura été mise en évidence (dégagement de CH_4 et/ou CO_2 enrichis en ^{13}C), les microorganismes responsables seront identifiés par la technique stable isotope probing (SIP), puis leur présence sera confirmée par les méthodologies d'hybridation *in situ* de fluorescence (FISH) et la spectrométrie de masse d'ions secondaires (Nanosims). Enfin la biodégradabilité de géomembranes en PEHD dans différents milieux est évaluée.

Lot 4 : caractérisation du vieillissement des géosynthétiques

Afin de prédire la durabilité des géosynthétiques, il est nécessaire de connaître et de comprendre les phénomènes à l'origine du vieillissement chimique et mécanique de ces matériaux.

Sur la base d'un état de l'art, les méthodes de caractérisation les plus pertinentes pour évaluer le vieillissement des PEHD dans les ISDND nous permettent de suivre les modifications physico-chimiques et mécaniques des matériaux en utilisant les indicateurs de vieillissement suivants.

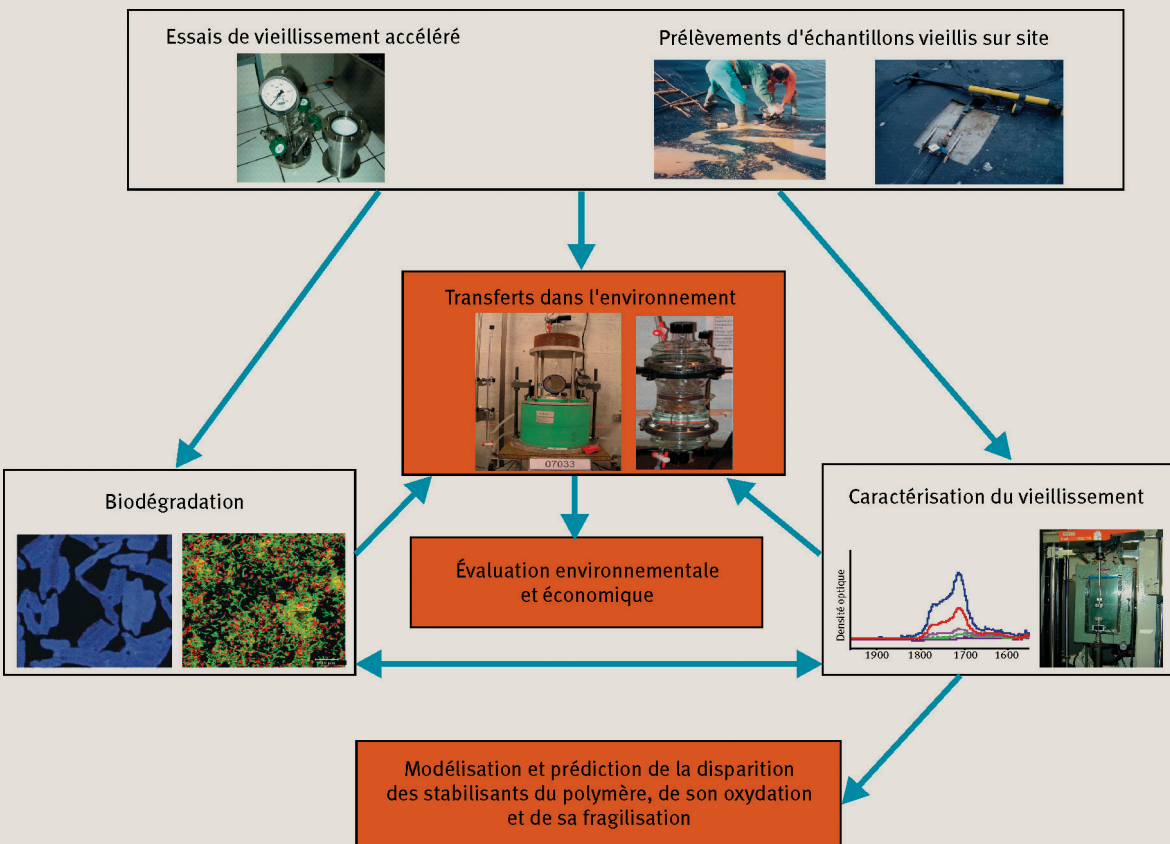
Indicateurs physico-chimiques :

- teneur en fonctions carbonylées, pour évaluer le degré de vieillissement par oxydation et attaque par les microorganismes ;
- teneurs en phases amorphes et cristallines, pour rendre compte des changements structuraux intrinsèques et évaluer les évolutions des propriétés de transport de la géomembrane ;
- valeurs de temps d'induction à l'oxydation (TIO), pour évaluer l'extraction des anti-oxydants du polymère vers les milieux de vieillissement ;
- masses moléculaires (\overline{M}_w et \overline{M}_n) du PEHD pour suivre les coupures de chaînes, à l'origine de la fragilisation du polymère ;
- masses moléculaires des produits extraits susceptibles d'être utilisés comme nutriment par les micro-organismes.

Indicateurs rhéologiques, mécaniques et d'étanchéité :

- élongation à la rupture pour évaluer la fragilisation des matériaux induite par les coupures de chaînes des polymères ;

1 Organisation scientifique du projet Durageos.



- ▶ valeurs de perméation pour déterminer les propriétés de transport de l'oxygène ou de l'eau au travers des polymères ;
- indices de gonflement des bentonites, pour mesurer la capacité d'échange cationique interfoliaire, donc de déceler un changement de nature de la bentonite initialement sodique en bentonite calcique ;
- teneurs en cations dans les effluents en sortie d'oedoperméamètres.

Les résultats des essais de caractérisation permettront de définir les critères de vieillissement chimiques et mécaniques pertinents et de déterminer des cinétiques de vieillissement des PEHD dans différentes conditions de vieillissement en laboratoire. Ils permettront également de disposer de données pour développer les modèles cinétiques de prédiction de la durabilité des PEHD et de transfert de matière à travers les PEHD et les GSB.

Lot 5 : évaluation de l'impact sur l'environnement

L'objectif de ce lot est de quantifier l'impact du vieillissement sur les transferts de matières à travers les GMB et les GSB, d'évaluer et de mieux décrire l'interaction des transferts de matières polluantes avec le fonctionnement des écosystèmes au moyen de tests d'écotoxicité. La quantification nécessite de disposer des paramètres d'adsorption et de répartition dans les matériaux qui sont déterminés expérimentalement à l'aide :

- d'essais de diffusion ;
- d'essais d'immersion, afin de quantifier les isothermes d'adsorption des GMB et de la bentonite ;
- d'une quantification des transferts advectifs dans les géomembranes (AFNOR, 2006).

Les paramètres ainsi déterminés pour les matériaux neufs et vieillis seront utilisés pour réaliser des simulations numériques à l'aide de codes de calculs adaptés (par exemple, Pollute V7, SPAS, MISP).

Lot 6 : modélisation cinétique du vieillissement oxydant et prédiction de la durée de vie des géomembrane en PEHD

Il s'agit ici de construire un modèle fiable de prédiction de durée de vie des GMB, en évitant des extrapolations empiriques à partir de résultats obtenus lors de vieillissements accélérés.

On se propose d'utiliser une méthodologie multi-échelle non empirique qui s'appuie sur la compréhension des mécanismes chimiques responsables de la dégradation, sur leur simulation et sur des relations structure-propriétés fonctionnelles. Un des avantages de cette méthode est d'une part, que chacune des étapes qui la composent peut être testée de façon indépendante et, d'autre part, qu'elle peut s'adapter aux spécificités du vieillissement des GMB (Fayolle *et al.*, 2008).

Sur la base de ce schéma mécanistique, qui prend en compte les paramètres chimiques et biologiques de dégradation des PEHD, une modélisation cinétique est développée.

Enfin, à partir de la modélisation cinétique, construite essentiellement à partir du suivi de l'évolution des masses moléculaires des PEHD, des relations structures/fragilisation permettant de prédire le temps à la fragilisation sont établies.

Lot 7 : évaluation environnementale et économique

L'objectif de ce lot est d'intégrer des considérations environnementales et socio-économiques dans le projet pour une gestion durable des risques environnementaux relatifs à l'utilisation des géosynthétiques en barrières d'étanchéité d'ISDND. On cherche à monétariser, compte tenu de l'état des connaissances actuelles en physique, biologie et économie, les externalités environnementales dues au transfert des lixiviats à travers les barrières géosynthétiques, les impacts fussent-ils reportés sur les seules générations futures. Afin de mieux situer le contexte social dans lequel cette recherche s'insère, une enquête sur les appréhensions des populations concernées par des projets d'ISDND en matière de qualité des eaux souterraines et de durabilité des géosynthétiques pourra être menée *via* l'analyse des rapports d'enquête publique (si accessibles) et l'analyse des discours d'opposants (obtenus sur sites internet ou par interviews). En effet, selon les résultats obtenus, la communication des résultats des lots précédents pourra alors être adaptée aux publics concernés afin que les recherches menées dans le cadre de ce projet puissent avoir un impact dépassant le seul milieu de la recherche et des pouvoirs publics.

Conclusion et perspectives

Par le développement et l'évaluation d'un modèle cinétique de prédiction de la durée de vie à très long terme (au moins cent ans) des géosynthétiques au contact de lixiviats d'installations de stockage de déchets et d'un modèle de transfert des matières polluantes, le projet Durageos propose des outils innovants de surveillance des ISDND fermées, en cours d'exploitation et à venir. Il contribue ainsi à la gestion de la qualité de l'environnement en prenant en compte l'impact sanitaire, environnemental et le suivi des conséquences économiques et sociales.

L'organisation scientifique du projet Durageos est résumée sur la figure 1 sous forme d'organigramme.

Les utilisateurs de géosynthétiques dans les ISDND ont besoin de guides de choix, de recommandations sur la mise en œuvre délicate de ces produits et d'estimations sur la durée de vie des produits. Dans cet esprit, le projet de recherche Durageos permettra de répondre aux préoccupations des professionnels en constituant une aide au choix des matériaux. Parallèlement, dans le cadre de l'éco-conception des produits, il aboutira à l'emploi de nouveaux matériaux pérennes, favorisant la mise en œuvre des principes de développement durable. ■

Les auteurs

Fabienne FARCAS et Carlota PONS

Ifsttar, 58 boulevard Lefebvre, 75732 Paris Cedex 15

✉ fabienne.farcas@ifsttar.fr

✉ carlotta.pons@ifsttar.fr

Théodore BOUCHEZ, Laurent MAZÉAS, Jacques MÉRY et Nathalie TOUZE-FOLTZ

Irstea, UR HBAN, Hydrosystèmes et bioprocédés,

1 rue Pierre-Gilles de Gennes,

CS 10030, 92761 Antony Cedex

✉ theodore.bouchez@irstea.fr

✉ laurent.mazeas@irstea.fr

✉ jacques.mery@irstea.fr

✉ nathalie.touze@irstea.fr

Claude DURRIEU

ENTPE, 3 rue Maurice Audin,

69518 Vaulx-en-Velin Cedex

✉ durrieu@entpe.fr

Bruno FAYOLLE et Emmanuel RICHAUD

CNRS, UMR 8006, Laboratoire PIMM,

Arts et Metiers ParisTech,

151 boulevard de l'Hôpital,

75013 Paris

✉ bruno.fayolle@ensam.eu

✉ emmanuel.richaud@ensam.eu

Marie LANOË

Véolia Propreté, 169 avenue Georges Clemenceau

92735 Nanterre Cedex

✉ marie.lanoe@veolia.proprete.fr

Jean MARTINS et Patrick PIERSON

Université Joseph Fourier, LTHE,

Bâtiment OSUG-B, Domaine universitaire,

BP 53, 38041 Grenoble cedex 09

✉ jean.martins.at.ujf-grenoble.fr

✉ patrick.pierson.at.ujf-grenoble.fr

Fethi SAIDI

Cirsee-Suez-Environnement,

38 rue du Président Wilson, 78 230 Le Pecq

✉ fethi.saidi@suez-env.com

QUELQUES RÉFÉRENCES CLÉS...

- ✉ ALBERTSSON, A.C., ERLANDSSON, B., HAKKARAINEN, M., KARLSSON, S., 1998, Molecular weight changes and polymeric matrix changes correlated with the formation of degradation products in biodegraded polyethylene, *Journal of Environmental Polymer Degradation*, 6 (4), p. 187-195.
- ✉ FAYOLLE, B., RICHAUD, E., VERDU, J., FARCAS, F., 2008, Embrittlement of polypropylene fibre during thermal oxidation, *Journal of Materials Science*, n° 43, p. 1026-1032.
- ✉ GUYONNET, D., TOUZE-FOLTZ, N., NOROTTE, V., POTHIER, C., DIDIER, G., GAILHANOU, H., BLANC, P., WARMONT, F., 2009, Performance-based indicators for controlling geosynthetic clay liners in landfill applications, *Geotextiles and Geomembranes*, 27 (5), p. 321-331.
- ✉ KOUTNY, M., LEMAIRE, J., DELORT, A.M., 2006, Biodegradation of polyethylene films with prooxidant additives, *Chemosphere*, n° 64, p. 1243-1252.
- ✉ MEEDAT, 2009, *Guide de recommandations pour l'évaluation de l'équivalence en étanchéité passive d'installations de stockage de déchets*, Version 2, février 2009, 50 p.

► Consulter l'ensemble des références sur le site de la revue www.set-revue.fr

Stabilisation de terre sur flancs de casier, centre de stockage de déchets de Forcalquier (Alpes de Haute-Provence).