

COMPARAISON DE TROIS FILIERES DE STOCKAGE D'ORDURES MENAGERESEtude du comportement des déchets en pilotes semi industriels et caractérisation des émissions liquides et gazeuses associées

Raphaël Lornage

▶ To cite this version:

Raphaël Lornage. COMPARAISON DE TROIS FILIERES DE STOCKAGE D'ORDURES MENAGERESEtude du comportement des déchets en pilotes semi industriels et caractérisation des émissions liquides et gazeuses associées. Autre. Université Claude Bernard - Lyon I, 2006. Français. NNT: . tel-00133769

HAL Id: tel-00133769 https://theses.hal.science/tel-00133769

Submitted on 27 Feb 2007 $\,$

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers. L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés. N° d'ordre : 230-2006

Année 2006

THESE

Présentée devant

L'UNIVERSITE LYON I - CLAUDE BERNARD

pour l'obtention

du DIPLÔME DE DOCTORAT

(Arrêté du 25 Avril 2002)

Ecole Doctorale de Chimie de Lyon (Chimie, Procédés, Environnement) Spécialité : Sciences de l'Environnement Industriel et Urbain

Par

Raphaël LORNAGE

Intitulée

COMPARAISON DE TROIS FILIERES DE STOCKAGE D'ORDURES MENAGERES

Etude du comportement des déchets en pilotes semi industriels et caractérisation des émissions liquides et gazeuses associées

Directeurs de Thèse : Jean-Marc CHOVELON et Jean CARRE

Soutenue le 1^{er} Décembre 2006 devant la commission d'examen

Jury:

Théodore BOUCHEZ - Chargé de Recherche au CEMAGREF d'Antony Jean CARRE - Maître de Conférences à L'INSA Lyon - Directeur de thèse Jean Marc CHOVELON - Professeur à l'UCBL Lyon I - Directeur de Thèse Geneviève FEUILLADE - Maître de Conférences à l'Université de Limoges - Rapporteur Rémy GOURDON - Professeur à L'INSA de Lyon - Président du jury Christophe GUY - Professeur à l'Ecole Polytechnique de Montréal - Rapporteur Isabelle HEBE - Ingénieur ADEME Thomas LAGIER - Responsable du Pôle stockage au CRP

Un grand merci à toutes les personnes qui ont participé de près ou de loin au bon déroulement de ce travail...

La collaboration avec Estelle, Jean, Thomas, Ludovic, Jean-louis, Théodore qui fut très agréable et de grande qualité, tient une place importante dans la réussite de ce projet.

L'appui technique du personnel de l'unité de traitement de déchet d'Auquemesnil, en particulier Sébastien et Frédéric a été, tout au long de ces trois ans, d'une aide considérable.

Il convient aussi de citer les innombrables échanges avec l'ensemble du personnel du Centre de Recherche sur la Propreté de Veolia qui ont permis de mettre en perspective le travail de thèse dans la réalité industrielle du traitement des déchets. Merci également aux personnes des laboratoires LAEPSI et LACE pour la collaboration, les discussions et les bons moments.

Je dois enfin remercier la famille et les amis qui ont été d'un soutien sans faille. Les moments de ressourcement à Nancy, Marseille, Poule, en Bretagne, à Barcelone, Chiroubles, Brisbane, Sénissiat, à Saint Lup' ou Montanay (j'en oublie), ont été, sans nul doute, des moments décisifs.

Merci enfin à Marie-Amélie pour tout le reste ...

UNIVERSITE CLAUDE BERNARD - LYON I

Président de l'U	niver	sité							M. le Pr L. COLLET
Vice-Président du Conseil Scientifique			M. le Pr J.F. MORNEX						
Vice-Président du	u Con	seil d'Adr	ninist	ration					M. le Pr J. LIETO
Vice-Président	du	Conseil	des	Etudes	et	de	la	Vie	M. le Pr D. SIMON
Universitaire									M. G. GAY
Secrétaire Géné	ral								

SECTEUR SCIENCES

Composantes

UFR de Physique	Directeur : M. le Pr A. HOAREAU
UFR de Biologie	Directeur : M. le Pr H. PINON
UFR de Mécanique	Directeur : M. le PH. BEN HADID
UFR de Génie Electrique et des Procédés	Directeur : M. le Pr A. BRIGUET
UFR Sciences de la Terre	Directeur : M. le Pr P. HANTZPERGUE
UFR de Mathématiques	Directeur : M. le Pr M. CHAMARIE
UFR d'Informatique	Directeur : M. le Pr M. EGEA
UFR de Chimie Biochimie	Directeur : Mme. le Pr H. PARROT
UFR STAPS	Directeur : M. le Pr R. MASSARELLI
Observatoire de Lyon	Directeur : M. le Pr R. BACON
Inst. des Sciences et des Techniques de l'Ingénieur de Lyon	Directeur : M. le Pr J. LIETO
IUT A	Directeur : M. le Pr M. C. COULET
IUT B	Directeur : M. le Pr R. LAMARTINE
Institut de Science Financière et d'Assurances	Directeur : M. le Pr J.C. AUGROS

Thèse préparée au Laboratoire d'Application de la Chimie à l'Environnement (LACE), UMR 5634, UCBL Lyon I, Bât. Raulin, 69621 Villeurbanne Cedex (France) et au Centre de Recherche sur la Propreté (CRP), Veolia Environnement, Zone Portuaire de Limay, 78520 Limay (France).

Listes des abréviations

ACP :	Analyse en Composantes Principales
ADEME :	Agence De l'Environnement et de Maîtrise de L'Energie
AGV :	Acide Gras Volatils
AT ₄ :	Test respirométrique statique sur 4 jours
ATD ·	Thermo Désorbeur Automatique
RMP ·	Biochemical Methane Potential (Potentiel méthanogène)
BSR ·	Bactérie Sulfato-Réductrice
BTEY ·	Benzàna Toluàna Ethylhanzàna Yulàna
C106 :	Chromosorb 106
CIOO.	Chloro Eluoro Carbona (hydrocarbura contanant du chlora at du fluora)
	Carbona Inorganique Total
CIII.	Chartered Institution of Weste Management
	Cantre National de la Dacharche Scientifique
CINKS :	Conditional Neuropha de Terrerénture et de Desseion
CNTP:	Conditions Normales de Temperature et de Pression
COT :	Carbone Organique Total
COV :	Composes Organiques Volatils
CRP :	Centre de Recherche sur la Proprete, Véolia Environnement
CSD(U):	Centre de Stockage de Déchet (Ultime)
CT :	Carbone Total
DBO :	Demande Biologique en Oxygène
DCO :	Demande Chimique en Oxygène
DE :	Déchet entrant humide
DEFRA :	DEpartment of Food and Rural Affairs (UK)
DETB :	Déchet Entrant le Traitement Biologique
DIB :	Déchets Industriels Banals
DMA :	Déchets Ménagers et Assimilés
DMDS :	DiMéthyl DiSulfure
DMS :	DiMéthyl Sulfure
DTQD :	Déchets Toxiques en Quantité Dispersée
ECD :	Détecteur à Capture d'Electron
ELIA :	Environmental Landfill Impact Assessment
ETR :	Evapotranspiration
FID :	Détecteur à Ionisation de Flamme
FPD :	Détecteur à Photoionisation de Flamme
GB ₂₁ :	(ou GB _{inf}) Potentiel de production de biogaz sur 21 jours (ou total)
GC :	Chromatographie Gazeuse
GES :	Gaz à Effet de Serre
GSB :	GéoSynthétique Bentonitique
H _t :	Humidité au temps t (en % de la masse humide)
ICPE :	Installation Classée pour la Protection de l'Environnement
MBP :	Mechanical and Biological Pretreatment
MBT :	Mechanical and Biological Treatment
MH :	Matière Humide
MIBK :	Methyl IsoButyl Ketone (3-méthyl-2-butanone)
MM :	Matière Minérale
MO :	Matière Organique
MODECOM :	MéthOde DE Caractérisation des Ordures Ménagères
MVOC :	Microbial VOC (COV d'origine microbienne en anglais)
MS :	Matière Sèche ou Spectromètre de Masse (associé avec GC-MS)
NIMBY :	Not In My Back Yard
NMOC :	Composés Organiques Non Méthaniques

NTK :	Azote Kjeldahl
OM :	Ordures Ménagères
PCDD/F:	PolyChloro Dibenzo-p-Dioxines / Furanes
PCI :	Pouvoir Calorifique Inférieur
PE:	Précipitations Efficaces
PEHD :	PolyEthylène Haute Densité
PL _t :	Production de Lixiviat au temps t
PMH :	Perte de Masse Humide
PMS :	Perte de Masse Sèche
ppb_V :	Partie par milliard en volume (.10 ⁻⁹)
ppm _V :	Partie par million en volume $(.10^{-6})$
PRG :	Pouvoir de Réchauffement Global (GWP en anglais)
PTB :	Pré Traitement Biologique
R :	Ruissellement ou Recirculation
SCA :	Service Central d'Analyse
SPME :	Solid Phase Micro Extraction
SPt :	Simulation de pluie au temps t
STEP :	STation d'EPuration
SWANA :	Solid Waste Association of North America
TAC :	Titre Alcalimétrique Complet
TIC :	Total Ion Current
TBA :	Traitement Biologique Aérobie
TBC :	Traitement Biologique Combiné (anaérobie + aérobie)
TMB :	TriMéthyl Benzène
UCB :	Université Claude Bernard
UO:	(ou UO _E) Unité Odeur (Européenne)

SOMMAIRE

INDEX DES TABLEAUX	1
INDEX DES GRAPHIQUES	4
INDEX DES FIGURES	6
INTRODUCTION GENERALE	11
Generalites	11
ENJEUX DU PROGRAMME DE RECHERCHE	13
OBJECTIFS DU PROGRAMME DE RECHERCHE	14
ORGANISATION DU MEMOIRE	15
PARTIE 1 : SYNTHESE BIBLIOGRAPHIQUE	19
CHAPITRE I : DEGRADATION DE LA MATIERE ORGANIQUE PAR VOIE BIOLOGIQUE	19
I.1 : Dégradation aérobie	20
I.2 : Dégradation anaérobie	21
I.3 : Processus de formation des composés gazeux NH ₃ , N ₂ O, CH ₄ , COV, H ₂ S	24
CHAPITRE II : LES NOUVELLES FILIERES DE STOCKAGE	26
II.1 : Généralités	26
II.2 : Le concept de Bioréacteur	26
II.3 : La filière de prétraitement biologique avant enfouissement	29
CHAPITRE III : LES COMPOSES ORGANIQUES VOLATILS	33
III.1 : Généralités (Le Cloirec, 1998)	33
III.2 : Ordures ménagères : une source de COV	33
III.3 : Volatilisation des composés organiques contenus dans le déchet	34
III.4 : Production de COV par voie microbiologique	36
III.5 : Indicateurs de la dégradation biologique : les COV	37
III.6 : Conclusion	38
III.7 : Analyse des COV dans les effluents gazeux d'ordures ménagères	39
CHAPITRE IV : LES EMISSIONS POLLUANTES DES FILIERES DE STOCKAGE : DONNEES	
DISPONIBLES	41
IV.1 : Généralités	41
IV.2 : Caractérisation des émissions de polluants liées au prétraitement biologi	que
aérobie	41
IV.2.1 : Emissions gazeuses	42
IV.2.2 : Emissions d'odeurs	48
IV.2.3 : Emissions liquides	48
IV.3 : Caractérisation des émissions de polluants liées au stockage des déchets .	49
IV.3.1 : Emissions gazeuses	50
IV.3.2 : Emissions liquides	58
PARTIE 2 : MATERIELS ET METHODES	67
CHAPITRE I : INTRODUCTION	67
CHAPITRE II : CHOIX METHODOLOGIQUE POUR LES TROIS FILIERES ETUDIEES	68
II.1 : La filière Conventionnelle	68
II.2 : La filière Bioréacteur	68

II.3 : Le prétraitement biologique avant enfouissement	69
CHAPITRE III : DESCRIPTIONS DES DIFFERENTS DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX	70
III.1 : Traitement mécanique des déchets	70
III.2 : Traitement biologique des déchets	70
III.2.1 : Andain de prétraitement biologique	
III.2.2 : Procédé d'aération pilotée	71
III.3 : Stockage des déchets	72
III.3.1 : Casiers expérimentaux	72
III.3.2 : Réseau de captage et système de débimétrie biogaz	75
III.3.3 : Simulation des précipitations et recirculation de lixiviats	75
III.3.4 : Suivi du tassement du massif de déchet	
CHAPITRE IV : DEROULEMENT DU PROGRAMME DE RECHERCHE	
CHAPITRE V : TECHNIQUES ANALYTIQUES ET OBTENTION DES RESULTATS	80
V.1 : Généralités	80
V.2 : Analyse sur le solide	80
V.2.1 : Techniques d'échantillonnage	80
V.2.2 : Caractérisation du déchet par MODECOM [®]	81
V.2.3 : Caractérisation physico-chimique du solide	81
V.2.4 : Caractérisation de la stabilité biologique du déchet	82
V.2.5 : Tests de lixiviation : matières solubles	83
V.3 : Quantification des émissions liquides et gazeuses	83
V.3.1 : Généralités	83
V.3.2 : Suivi des émissions lors du traitement aérobie	
V.3.3 : Suivi des émissions lors de la phase de stockage	88
V.4 : Qualification des émissions liquides et gazeuses	89
V.4.1 : Emissions liquides	89
V.4.2 : Emissions gazeuses	91
V.4.3 : Emissions d'odeurs	
V.5 : Bilans matières	97
V.5.1 : Andain de prétraitement biologique	
V.5.2 : Casiers de stockage	101
V.5.3 : Cas des filières PTB (traitement biologique et stockage)	103
CHAPITRE VI : RETOUR D'EXPERIENCE SUR L'ANALYSE DES COV DANS LES EFFLUE	NTS
GAZEUX ISSUS DES ORDURES MENAGERES	
VI.1 : Généralités	104
VI.2 : Caractéristiques et spécificités des adsorbants utilisés	104
VI.3 : Sensibilité et incertitudes des différentes chaînes analytiques	105
VI.4 : Effet de l'humidité sur la qualité de l'analyse	106
VI.5 : Qualité d'adsorption du Tenax et du charbon actif	107
VI.6 : Répétabilité des mesures	109
VI.7 : Conclusion	109
PARTIE 3 : RESULTATS	113
CHAPITRE I : CARACTERISATION DU DECHET ENTRANT	
I.1 : Composition massique du déchet	114
1.2 : Composition massique du déchet à la liviviation	115
13 : Caractérisation de la réactivité biologique du déchet	116
no . ca accertación de la reactifice biologique da accilection internetion	

CHAPITRE II : PRETRAITEMENT BIOLOGIQUE DES DECHETS	117
II.1 : Déroulement de l'expérimentation	117
II.2 : Evolution des paramètres procédés	117
II.2.1 : Température de l'andain	117
II.2.2 : Aération de l'andain	118
II.2.3 : Taux de consommation d'oxygène	119
II.3 : Paramètres « solide »	120
II.3.1 : Répartition granulométrique du déchet	120
II.3.2 : Perte de masse liée à l'activité biologique	121
II.3.3 : Paramètres de stabilité de la matière organique	122
II.3.4 : Influence de la préparation de l'échantillon sur la qualité des analyses sur le	solide
	124
	124
II.4 : Emissions liquides	125
II.4.1 : Production de jus	125
II.4.2 : Qualité des jus produits	126
II.4.3 : Flux de polluants	127
II.5 : Emissions gazeuses	128
II.5.1 : Méthane	128
II.5.2 : H_2S et soufrés réduits	128
II.5.3 : Composés azotés et ammoniac	129
II.5.4 : Composés organiques volatils	129
II.5.5 : Odeurs	134
II.6 : Bilans azote et carbone	135
II.6.1 : Bilan azote	135
II.6.2 : Bilan carbone	136
CHAPITRE III : SUIVI DES CASIERS DE STOCKAGE DE DECHETS	138
III.1 : Casier Témoin : stockage conventionnel	138
III.1.1 : Généralités	138
III.1.2 : Evolution de la température du massif et simulation des précipitations	138
III.1.3 : Composition et production de biogaz	140
III.1.4 : Composition et production de lixiviat	141
III.1.5 : Flux de pollution	143
III.1.6 : Estimation de la perte de masse et évolution de l'humidité du massif	147
III.1.7 : Lassement et evolution de la densite	14/
III.1.8 : Bilans carbone et azote	148
III.2 : Casier Bioréacteur : recirculation des lixiviats	150
III.2.1 : Généralités	150
III.2.2 : Evolution de la temperature du massif et recirculation des lixiviats	150
III.2.3 : Composition et production de biogaz	152
III.2.4 : Production et composition du lixiviat produit	153
III.2.5 : Flux de pollution	15/
III.2.6 : Estimation de la perte de masse et evolution de l'humidite du massif	161
III.2.7 : Lassement et evolution de la densite	102
III.2.6 : Ditails Carbone et azote	103
III.5. Cusiers FIDI et FIDZ : SLOCKage des dechets pretraites Diologiquement	103
III.3.1 : Generalites	165
m.s.z. Evolution de la temperature des massifs de déchet et simulation des précipit	ations.
•••••••••••••••••••••••••••••••••••••••	103

III.3.3 : Composition et production de biogaz	167
III.3.4 : Composition et production de lixiviat	169
III.3.5 : Flux de pollution	171
III.3.6 : Evolution de la perte de masse et de l'humidité des massifs	175
III.3.7 : Tassement et évolution de la densité	176
III.3.8 : Bilans carbone et azote	176
CHAPITRE IV : BILAN DES FILIERES : DE LA RECEPTION DU DECHET A L'ENFOUISSEMEN	NT. 178
IV.1 : Perte de masse totale et bilan hydrique	178
IV.2 : Flux de pollution	180
IV.2.1 : Polluants par voie liquide	180
IV.2.2 : Polluants par voie gazeuse	181
IV.3 : Bilans Carbone et azote	182
CHAPITRE V : LES COMPOSES ORGANIOUES VOLATILS	184
V.1 : Performances pour la quantification des COV	184
V.2 : Analyse statistique des mesures de COV effectuées sur le Biogaz des casi	ers de
stockage	187
V 2 1 · Analyse en composantes principales	187
V 2 2 · Régression linéaire multiple	190
PARTIE 4 : DISCUSSION	199
Introduction	199
IMPACTS DE LA FILIERE DE TRAITEMENT SUR LES EMISSIONS ET LE COMPORTEMENT D	U
DECHET EN CONDITIONS DE STOCKAGE	200
I.1 : Effluents gazeux	200
I.1.1 : Généralités	200
1.1.2 : Bilan gaz à effets de serre des différentes filières	204
I.1.3 : Nuisances olfactives générées par les trois filières de stockage	207
I.1.4 : Emissions de COV	208
I.2 : Effluents liquides	213
I.2.1 : Généralités	213
I.2.2 : Influence de la recirculation sur la lixiviation des déchets enfouis	214
I.2.3 : Influence du prétraitement biologique sur la lixiviation des déchets prétraités	215
I.3 : Comportement géomécanique des déchets dans les casiers de stockage	217
CONCLUSION ET DEDSDECTIVES	
CONCLUSION ET FERSFECTIVES	223
CONCLUSION ET FERSFECTIVES	223 229
CONCLUSION ET FERSFECTIVES RÉFÉRENCES :	223 229

INDEX DES TABLEAUX

Tableau 1 : Facteurs influençant la dégradation biologique en CSD (Yuen, 1999)23
Tableau 2 : Emissions de COV par différents objets de consommation courante 35
Tableau 3 : Production de COV par voie microbiologique (MVOC) 36
Tableau 4 : Production de COV, H_2S et NH_3 suivant différents traitements biologiques
Tableau 5 : Flux de COV émis par une unité de PTB en Allemagne 45
Tableau 6 : Flux de COV émis par différentes unités de PTB en Autriche 45
Tableau 7 : Caractéristiques et flux émissifs de 4 unités de PTB en Allemagne
Tableau 8 : Flux de carbone et d'azote par voie gazeuse 47
Tableau 9 : Flux gazeux de carbone et d'azote en fonction du type de déchet 48
Tableau 10 : Production de jus en fonction du type de procédé de compostage 49
Tableau 11 : Teneur des gaz majoritaires dans le biogaz en fonction de l'âge du déchet 50
Tableau 12 : Comparaison des taux de production annuels de biogaz suivant le déchet53
Tableau 13 : Listes des COV odorants et toxiques majoritaires identifiés dans un biogaz54
Tableau 14 : Comparaison des concentrations de COV dans le biogaz
Tableau 15 : Flux de COV calculés à partir de la littérature (par famille)
Tableau 16 : Flux de COV calculés à partir de la littérature (par composé)
Tableau 17 : Composition des lixiviats de CSD d'OM en fonction de l'âge des déchets60
Tableau 18 : Caractérisation de la production de lixiviats en fonction des précipitations61
Tableau 19 : Composition du lixiviat en fonction du degré de stabilisation du déchet62
Tableau 20 : Comparaison des lixiviats avec ou sans prétraitement des déchets
Tableau 21 : Différentes fractions triées lors du MODECOM [®] 81
Tableau 22 : Résultats des analyses d'un biogaz en fonction du volume de prélèvement107
Tableau 23 : Résultats du test de lixiviation pratiqué sur le déchet brut
Tableau 24 : Evolution des paramètres « solide » durant le traitement biologique
Tableau 25 : Evolution de la qualité des jus durant le traitement biologique
Tableau 26 : Flux de polluants par voie liquide lors du traitement biologique
Tableau 27 : Liste des composés identifiés dans les effluents gazeux du traitement biologique130
Tableau 28 : Masse des COV émis durant le traitement biologique 134
Tableau 29 : Perte d'azote dans le solide et par voie liquide durant le PTB
Tableau 30 : Bilan sur le carbone organique durant le traitement biologique
Tableau 31 : Composition et quantité de lixiviat produit par le casier Témoin
Tableau 32 : Flux de polluants émis par voie liquide pour le casier Témoin
Tableau 33 : Production cumulée de COV du casier Témoin146

Tableau 34 : Evolution de l'intensité olfactive du biogaz issu du casier Témoin
Tableau 35 : Bilan carbone et azote du casier Témoin
Tableau 36 : Bilan des différentes phases de recirculation du casier Bioréacteur 152
Tableau 37 : Evolution de la composition des lixiviats en sortie du Bioréacteur 154
Tableau 38 : Cumuls des flux liquides et pollution relarguée après 4 phases de recirculation157
Tableau 39 : Production cumulée de COV du casier Bioréacteur 160
Tableau 40 : Evolution de l'intensité olfactive du biogaz issu du casier Bioréacteur 161
Tableau 41 : Bilan carbone et azote du casier Bioréacteur 163
Tableau 42 : Composition et quantité de lixiviat produit par le casier PTB1 169
Tableau 43 : Composition et quantité de lixiviat produit par le casier PTB2 170
Tableau 44 : Flux de polluants émis par voie liquide pour le casier PTB1 171
Tableau 45 : Flux de polluants émis par voie liquide pour le casier PTB2 171
Tableau 46 : Production cumulée de COV du casier PTB1174
Tableau 47 : Production cumulée de COV du casier PTB2174
Tableau 48 : Evolution de l'intensité olfactive du biogaz issu des casiers PTB1 et PTB2175
Tableau 49 : Bilan carbone et azote du casier PTB1
Tableau 50 : Bilan carbone et azote du casier PTB2
Tableau 51 : Flux de pollution par voie liquide pour 1 tonne de déchets entrants les filières181
Tableau 52 : Flux de pollution par voie gazeuse pour 1 tonne de déchets entrants les filières182
Tableau 53 : Bilans carbone et azote des différentes filières 183
Tableau 54 : Comparaison des performances des tubes Tenax et charbon actif par famille chimique
Tableau 55 : Coordonnées factorielles des 10 variables pour les 3 premiers facteurs
Tableau 56 : Variables dépendantes considérées pour la régression linéaire multiple191
Tableau 57 : Variables indépendantes considérées pour la régression linéaire multiple191
Tableau 58 : Table d'ANOVA simplifiée de la RLM pour le groupe 1193
Tableau 59 : Table d'ANOVA simplifiée de la RLM pour le groupe 2194
Tableau 60 : Table d'ANOVA simplifiée de la RLM pour le groupe 3
Tableau 61 : Potentiel de réchauffement global des composés gazeux identifiés204
Tableau 62 : Bilan GES pour les filières Conventionnelle et Bioréacteur 205
Tableau 63 : Bilan GES pour les filières PTB1 et PTB2 206
Tableau 64 : Nuisance olfactive générée par les filières de traitement 207
Tableau 65 : Facteurs de corrélation entre les analyses Dr Lange et les analyses normalisées251
Tableau 66 : Chaîne analytique et conditions expérimentales pour l'analyse des tubes Tenax TA .252
Tableau 67 : Chaîne analytique et conditions expérimentales pour l'analyse des tubes Charbon actif

Tableau 68 : Liste des composés étalonnés pour l'analyse des tubes à charbon actif	.253
Tableau 69 : Liste des composés étalonnés pour l'analyse des tubes Tenax	.253
Tableau 70 : Evolution des concentrations de COV dans les effluents gazeux du PTB	.254
Tableau 71 : Evolution des concentrations de COV dans le biogaz du casier Bioréacteur	.255
Tableau 72 : Evolution des concentrations de COV dans le biogaz du casier Témoin	.256
Tableau 73 : Evolution des concentrations de COV dans le biogaz du casier PTB1	.257
Tableau 74 : Evolution des concentrations de COV dans le biogaz du casier PTB2	.257
Tableau 75 : Evolution de la qualité du lixiviat dans la cuve de stockage des lixiviats	.258
Tableau 76 : Flux de polluants émis par voie liquide durant les différentes phases de recirculation	n .259
Tableau 77 : Matrice codée pour la régression linéaire multiple	. 265
Tableau 78 : Résultats des tests de lixiviation pratiqués sur les déchets PTB1 et 2 avant et après incubation	.266

INDEX DES GRAPHIQUES

Graphique 1 : Evolution de la température et de l'aération de l'andain118
Graphique 2 : Evolution du taux de consommation de l'oxygène durant le traitement119
Graphique 3 : Evolution de la répartition granulométrique du déchet121
Graphique 4 : Evolution de la perte de masse durant le traitement biologique122
Graphique 5 : Evolution de la réactivité biologique du déchet123
Graphique 6 : Evolution du potentiel de production de biogaz et de méthane123
Graphique 7 : Evolution de la production cumulée de jus126
Graphique 8 : Evolution des concentrations des COV durant le PTB132
Graphique 9 : Evolution de l'intensité olfactive des effluents gazeux du PTB135
Graphique 10 : Evolution de la température du massif, de la composition du biogaz et de la période de simulation des précipitations pour le casier Témoin139
Graphique 11 : Production de biogaz du casier Témoin140
Graphique 12 : Evolution de la teneur dans le biogaz et des flux émissifs de N20 et H2S du casier Témoin
Graphique 13 : Evolution de la production cumulée de COV du casier Témoin145
Graphique 14 : Evolution des densités effectives et du tassement du casier Témoin148
Graphique 15 : Evolution de la température du massif, de la composition du biogaz et des périodes de recirculation de lixiviats pour le casier Bioréacteur150
Graphique 16 : Production de biogaz du casier Bioréacteur153
Graphique 17 : Evolution de la teneur en N20 et H2S du biogaz du casier Bioréacteur et flux émissifs associés
Graphique 18 : Evolution de la production cumulée de COV du casier Bioréacteur
Graphique 19 : Evolution de l'humidité du déchet dans le Bioréacteur162
Graphique 20 : Evolution des densités effectives et du tassement du casier Bioréacteur163
Graphique 21 : Evolution de la température du massif, de la composition du biogaz et de la période de simulation des précipitations pour le casier PTB1165
Graphique 22 : Evolution de la température du massif, de la composition du biogaz et de la période de simulation des précipitations pour le casier PTB2166
Graphique 23 : Production de biogaz du casier PTB1167
Graphique 24 : Production de biogaz du casier PTB2168
Graphique 25 : Concentration et flux émissifs cumulés de H_2S pour les casiers PTB1 et PTB2172
Graphique 26 : Evolution de la production cumulée de COV du casier PTB1173
Graphique 27 : Evolution de la production cumulée de COV du casier PTB2

Graphique 28 : E	volution des densités effectives et des tassements pour les casiers PTB1 et PTB2 176
Graphique 29 : R l'espace 3	Représentation des vecteurs propres dans les 3 plans factoriels et visualisation de D
Graphique 30 : R	Représentation des individus dans le plan 1-2190
Graphique 31 : R	Représentation en histogramme de la régression linéaire multiple192
Graphique 32 : R	Représentation en histogramme de la RLM pour le groupe 1193
Graphique 33 : R	Représentation en histogramme de la RLM pour le groupe 2
Graphique 34 : R	Représentation en histogramme de la RLM pour le groupe 3195
Graphique 35 : R	Représentation des analyses normalisées en fonction des analyses Dr Lange251
Graphique 36 : E	volution de la teneur en N_20 du biogaz du casier PTB1 et flux émissif associé260
Graphique 37 : E	volution de la teneur en N20 du biogaz du casier PTB2 et flux émissif associé260
Graphique 38 : E	Evolution de la DCO, des AGV, des NH₄⁺ et du pH dans les lixiviats du casier Témoin
Graphique 39 : E Bioréacteu	Evolution de la DCO, des AGV, des NH₄⁺ et du pH dans les lixiviats du casier ur
Graphique 40 : E	Evolution de la DCO, des AGV, des NH_4^+ et du pH dans les lixiviats du casier PTB1.262
Graphique 41 : E	Evolution de la DCO, des AGV, des NH_4^+ et du pH dans les lixiviats du casier PTB2.262
Graphique 42 : R l'espace 3	Représentation des vecteurs propres dans les 3 plans factoriels et visualisation de D

INDEX DES FIGURES

Figure 1 : Casier de stockage de déchet (Del Greco, 1993)12
Figure 2 : Etapes de la dégradation d'un substrat solide (Aguilar-Juarez, 2000)
Figure 3 : Représentation schématique des principaux transferts de chaleur et matière lors de la dégradation biologique aérobie (Francou, 2003)21
Figure 4 : Evolution de la composition du biogaz au cours de la biodégradation (Rees, 1980) 22
Figure 5 : Schéma de principe du centre de stockage Bioréacteur
Figure 6 : Concept du PTB intégré dans un système global de traitement de déchets (Adib, 2005) . 30
Figure 7 : Simulation de l'effet de la recirculation de lixiviat sur la production de méthane 52
Figure 8 : Représentation de l'évolution des principaux constituants du lixiviat en fonction des étapes de la dégradation
Figure 9 : Photos du broyeur utilisé pour le traitement mécanique des déchets
Figure 10 : Schéma de principe de la double couverture de l'andain70
Figure 11 : Photos de l'andain de traitement biologique lors de sa construction71
Figure 12 : Fenêtre de fonctionnement du ventilateur de l'aération forcée
Figure 13 : Schéma d'un casier expérimental de stockage72
Figure 14 : Photo de la plaque « pied de mouton » servant à tasser les déchets
Figure 15 : Vue générale des pilotes avant et après la mise en place du compost
Figure 16 : Photos de la plaque supérieure d'un casier expérimental74
Figure 17 : Représentation schématique et photos d'un débitmètre gaz
Figure 18 : Représentation schématique des filières de stockage étudiées
Figure 19 : Chronologie de la vie des pilotes
Figure 20 : Déroulement de la procédure d'échantillonnage
Figure 21 : Effet « cheminée » au sein d'un andain
Figure 22 : Configuration du point de prélèvement
Figure 23 : Profil théorique d'émission lors d'un épisode d'aération en continu et pulsée
Figure 24 : Configuration du suivi des émissions gazeuses
Figure 25 : Représentation schématique de la caractérisation des effluents gazeux
Figure 26 : Schéma d'un tube à charbon actif SKC 226-0193
Figure 27 : Tubes Tenax en acier inoxydable thermodésorbable
Figure 28 : Représentation schématique du bilan azote
Figure 29 : Représentation schématique du bilan carbone organique100
Figure 30 : Représentation schématique du bilan hydrique du Bioréacteur

Figure 31 : Représentation de la quantité de composés piégée sur tube Tenax en fonction du volume de prélèvement
Figure 32 : Chromatogrammes d'un Tenax, un Chromosorb 106 et un Sphérocarb en série108
Figure 33 : Composition massique du déchet et sa répartition granulométrique114
Figure 34 : Répartition granulométrique du déchet après traitement mécanique115
Figure 35 : Représentation schématique du déroulement du prétraitement biologique avant enfouissement
Figure 36 : Perte de masse et bilan hydrique pour 1 tonne de déchets entrants les filières Conventionnelle et Bioréacteur
Figure 37 : Perte de masse et bilan hydrique pour 1 tonne de déchets entrants les filières PTB179
Figure 38 : Gain de vide de fouille à l'enfouissement pour 1 tonne de déchet entrant

INTRODUCTION GENERALE

INTRODUCTION GENERALE

Généralités

Les Déchets Ménagers et Assimilés

Les Déchets Ménagers et Assimilés (DMA) regroupent l'ensemble des déchets issus de la collecte municipale, c'est-à-dire les déchets des ménages (Ordures Ménagères, OM) et des petites entreprises qui y sont mêlés, les déchets banals des entreprises, les encombrants en provenance des collectes spécifiques, les déchets verts, les boues de station d'épuration et divers matériaux recyclables.

Ces déchets sont donc composés de matériaux variés qui leur confèrent un caractère très hétérogène. Le présent travail s'intéresse aux ordures ménagères.

Une méthodologie de caractérisation mise au point par l'ADEME, le MODECOM[®] permet de caractériser précisément un gisement grâce au tri d'un échantillon représentatif de déchets. Selon la caractérisation MODECOM[®] des ordures ménagères à l'échelle nationale réalisée par l'ADEME en 1993, l'humidité moyenne des ordures ménagères était de 35 % pour un taux de matière organique de 59,2 % de la matière sèche. Elles sont constituées à 28,5 % de déchets putrescibles, 25,4 % de papiers/cartons, 11,1 % de plastiques et 13,1 % de verre, le reste se répartissant entre les métaux, textiles, complexes, combustibles non classés et les déchets ménagers spéciaux.

Il est possible de distinguer deux types de fraction : la fraction organique biodégradable, composée de matière organique plus ou moins dégradable par des microorganismes (contenue dans les papiers, cartons, déchets de cuisine et de jardin, textiles et textiles sanitaires) et la fraction dite « inerte biologiquement » composée de la matière minérale et de la matière organique réfractaire (non biodégradables, exemple : plastiques).

Les Centres de Stockage de Déchet (CSD) de classe II

En France en 2002, 26,4 millions de tonnes d'ordures ménagères étaient produites parmi lesquelles 84 % provenaient directement des ménages et 16 % de l'activité des entreprises (en déchets banals). La production annuelle d'ordures ménagères au sens strict a donc représenté, en 2002, 21,9 millions de tonnes soit 359 kg par habitant et par an (ADEME, 2005).

Au total en 2002, 40 % des ordures ménagères étaient envoyées en centre de stockage de classe II contre 42 % en incinération, 12% en recyclage et 6 % en traitement biologique (ADEME, 2005).

Les objectifs fixés par la loi sur les déchets du 13 juillet 1992 (retranscription de la directive européenne 91/156/CE) ont permis de moderniser la gestion des déchets tant au niveau de leur collecte que de leur traitement.

La réduction des déchets à la source ainsi que l'encouragement du recyclage matière et énergétique ont été définis comme deux objectifs principaux. De plus, l'introduction de la notion de déchet ultime (déchet qui n'est plus susceptibles d'être traité dans les conditions techniques et économiques du moment) et la limitation de l'enfouissement à ces seuls déchets (effective depuis le 1^{er} juillet 2002), la mise aux normes des installations de traitement et la réduction des rejets polluants ont été autant de moteurs de la modernisation des filières de traitement de déchets.

Le développement des filières « nobles » de gestion de déchet telles que la collecte sélective, le tri, la valorisation matière, le recyclage ne doit pas occulter la part résiduelle constituée par les refus de ces nouvelles filières. En effet, les conditions techniques et surtout économiques du moment ne permettent pas d'éviter la mise en décharge de déchets qui contiennent encore des matières biodégradables ou valorisables dont l'accessibilité est trop faible ou dont la valorisation est jugée non rentable. Ainsi, le stockage en CSD de classe II représente encore aujourd'hui un exutoire majeur pour les OM.

Aujourd'hui, avec 361 centres de stockage d'une capacité supérieure à 3000 tonnes par an, la filière reste au centre de la gestion des déchets dans un contexte où la filière de l'incinération subit une pression sociale importante suite aux scandales sur les émissions de dioxines dans la fin des années 90.

Suite aux diverses évolutions réglementaires et notamment l'entrée en vigueur de l'arrêté du 9 septembre 1997 relatif aux CSD (consolidé en 2002 et le 19 janvier 2006), les dépôts sauvages et autres décharges brutes (plus de 25000 dépôts sauvages et 5000 décharges brutes recensées en 1999, (OPECST, 1999)) tendent à disparaître pour laisser la place à des installations qui ne peuvent plus être considérées comme de simples remblais de déchet tout venant mais comme de véritables unités de traitement où les différents flux (déchets, effluents liquides et gazeux etc...) sont gérés dans un cadre réglementaire strict (Figure 1).



Figure 1 : Casier de stockage de déchet (Del Greco, 1993)

Le centre de stockage de déchet moderne doit répondre à des standards précis concernant son emplacement (contexte géologique), son mode d'exploitation (plan d'exploitation en casiers et alvéoles, limitations des rejets liquides et gazeux) et sa post-exploitation. Les effluents liquides, appelés lixiviats, sont issus de la percolation des précipitations ou de l'eau constitutive des déchets à travers le massif de la décharge. Ils sont obligatoirement drainés, collectés puis traités avant rejet dans le milieu naturel. Les effluents gazeux, appelés biogaz, sont issus de la dégradation biologique anaérobie des

déchets. Ils sont captés, canalisés et brûlés en torchère ou valorisés énergétiquement. La production et la composition de ces deux effluents dépendent étroitement de la composition des déchets et de leur évolution bio-physico-chimique.

Le nouveau contexte législatif introduit par la directive européenne du 26 avril 1999 (1999/31/CE) concernant le stockage de déchet favorise l'émergence de nouvelles filières de traitement et tend à la disparition progressive de l'enfouissement de déchets instables biologiquement. En effet, en plus de promouvoir la réduction des quantités de déchets enfouis, cette directive impose des objectifs et des échéanciers chiffrés de réduction des quantités de matières organiques biodégradables enfouies en centre de stockage (en 2016, la quantité de matière biodégradable mise en décharge doit être réduite à 35 % de la quantité totale produite en 1995).

Enjeux du programme de recherche

La consommation de masse qui se généralise à l'ensemble des pays aboutit à une production toujours croissante de déchets (+ 100 % en 40 ans pour les OM (ADEME, 2004)). Ceci met la gestion des déchets au centre des préoccupations des collectivités. Malgré les filières « parallèles » de réutilisation/valorisation/recyclage encore peu développées, la quantité de déchets résiduels à traiter est considérable. Ils représentent des enjeux économiques importants du fait du coût associé à leur prise en charge et des enjeux environnementaux qui tiennent à leur impact potentiel sur l'environnement, les écosystèmes et les populations. Les mouvements de protestation virulents qui se développent à chaque nouveau projet pour l'installation d'unité de traitement de déchet sont la parfaite illustration des enjeux sociaux qui sont rattachés à ces dossiers.

Le métier du stockage, qui a déjà subi de profondes modifications, doit poursuivre cette dynamique afin, d'une part, de répondre aux attentes des populations en terme de limitation des nuisances et des impacts sur l'environnement et d'autre part, de pouvoir offrir une capacité de traitement des déchets suffisante à la société de demain.

Le concept du CSD conventionnel, partiellement remis en cause par la directive européenne de 1999, se trouve confronté à des problèmes quant au devenir à long terme des déchets mis en décharge (durée et coût de la post exploitation), quant à la génération de nuisances devenues inacceptables pour les populations riveraines et quant à la difficulté d'acceptabilité de l'ouverture de nouveaux sites.

Parallèlement à l'évolution des standards des CSD, deux nouvelles filières de traitement sont apparues : le Bioréacteur ou centre de stockage bioactif ou Ecométhaniseur[®] et le concept de PréTraitement Biologique (PTB) avant enfouissement.

Le concept du Bioréacteur est basé sur le constat que malgré les collectes sélectives et des taux de recyclage élevés, la fraction résiduelle des ordures ménagères contient encore de la matière organique biodégradable. Il vise à utiliser au mieux celle-ci pour une valorisation du potentiel énergétique du biogaz émis lors de sa dégradation. L'accent est alors mis, d'une part, sur l'accélération des processus biologiques conduisant à la formation du méthane et, d'autre part, sur un captage optimisé du biogaz produit pour une meilleure valorisation.

Le prétraitement biologique avant enfouissement, ou stabilisation biologique, vise à réduire la quantité et la réactivité biologique du déchet à enfouir. Les termes anglais Mechanical and Biological Treatment (MBT) ou Mechanical and Biological Pretreatment (MBP) traduisent bien la phase de traitement mécanique durant laquelle les matériaux valorisables sont retirés et le déchet préparé pour un traitement biologique dont le but est de stabiliser (par différents procédés) la matière organique du déchet.

Aujourd'hui, l'enfouissement des déchets suivant ces deux concepts suscite de nombreuses interrogations au niveau de leurs impacts sur l'environnement, des interrogations d'ailleurs pas toujours clairement élucidées en ce qui concerne le CSD conventionnel.

Le programme de recherche dans lequel s'inscrit cette thèse a trait aux impacts environnementaux des trois filières de stockage de déchets : la filière Conventionnelle, la filière Bioréacteur et la filière de PTB avant enfouissement.

Objectifs du programme de recherche

Cette thèse s'inscrit dans un programme de recherche conduit par le Centre de Recherche sur la Propreté (CRP) de Veolia Environnement et co-financé par l'Agence De l'Environnement et de Maîtrise de l'Energie (ADEME). Le programme ELIA (Environmental Landfill Impact Assessment), débuté en mars 2003, est le fruit du travail de nombreux intervenants et laboratoires extérieurs autour d'expérimentations dont la mise en place, le suivi et la maintenance ont fait partie intégrante du travail de thèse. La conception des pilotes a été réalisée avant le début du travail de thèse par l'équipe Stockage du CRP. Les travaux sur la caractérisation des émissions gazeuses de Composés Organiques Volatils (COV) ont été réalisés au Laboratoire d'Application de la Chimie à l'Environnement (LACE) de l'Université Claude Bernard Lyon I ainsi qu'au Service Central d'Analyse (SCA) du CNRS en collaboration avec l'équipe d'analyse des gaz.

Les objectifs du programme de recherche sont multiples et seuls ceux reliés au travail de thèse sont détaillés ci-dessous.

• Acquisition de données sur le comportement des déchets suivant les différents scénarii de stockage à travers le suivi des émissions liquides et gazeuses et le tassement géomécanique du massif.

• Réalisation de bilans matières des différentes filières. Le bilan matière sur le carbone permet de distinguer le carbone séquestré au sein du massif de celui relargué dans l'environnement sous différentes formes. Le bilan hydrique des trois filières permet d'évaluer le comportement des déchets en conditions de stockage tout au long de leur évolution biologique, et ainsi de prédire les flux de lixiviats, un enjeu important notamment pour la filière Bioréacteur. Le bilan massique de la filière de prétraitement biologique est une donnée importante pour évaluer la réduction de la masse de déchet à enfouir.

• Comparaison des impacts environnementaux des trois filières de stockage sur des bases communes, dans des conditions expérimentales contrôlées, avec un gisement de

déchet caractérisé et des conditions semi industrielles, garantes d'une bonne représentativité. L'accent a été mis sur l'établissement de flux de polluants, notamment des Composés Organiques Volatils (COV) qui sont au centre des préoccupations actuelles et représentent l'enjeu majeur de cette étude. L'acquisition des données quantitatives et qualitatives sur les émissions de COV au cours des différentes étapes des trois filières étudiées permet une meilleure compréhension des processus de génération des COV et des différents leviers qui conduisent à leur émission. Les données sur les émissions de gaz à effet de serre (CH₄ mais aussi N₂O) sont importantes pour l'évaluation et la comparaison de l'impact des trois filières sur le réchauffement climatique. L'acquisition de données sur les émissions d'odeurs permet d'évaluer les nuisances olfactives potentielles générées par les différentes filières.

Il est important de noter que ce travail n'a pas eu pour objectifs d'apporter des réponses définitives aux différentes questions liées au choix des différentes filières. Il a été décidé de se concentrer sur l'acquisition de données robustes, représentatives et étayées au maximum. Le travail aval de réutilisation des données pour des études de dispersion de polluants, d'impacts sanitaires ou d'analyse de cycle de vie des filières, par exemple, sort du cadre de cette thèse. Néanmoins, les caractéristiques de l'étude (la taille des pilotes, les bilans matières et le suivi des émissions en continu) seront autant de facteurs qui faciliteront l'utilisation des données. Celle-ci a déjà débuté au travers d'une étude ACV initiée en 2004 avec l'équipe d'analyse environnementale de Veolia Environnement (Aoustin et al., 2005).

Organisation du mémoire

Le mémoire de thèse est organisé en quatre parties :

- La première partie dresse une synthèse des données bibliographiques sur le sujet. Les processus biologiques de la dégradation de la matière organique du déchet sont décrits dans le premier chapitre. Le second chapitre présente les deux nouvelles filières de CSD étudiées en parallèle de la filière Conventionnelle. Le troisième chapitre aborde la problématique des COV dans les ordures ménagères notamment, les COV présents dans la matrice déchet, ceux produits par les microorganismes et présente le potentiel des COV à servir d'indicateurs de la dégradation des déchets. Le quatrième et dernier chapitre fait une revue des données disponibles concernant les émissions de polluants des trois filières de stockage étudiées.
- La seconde partie a trait aux matériels et méthodes employés durant cette étude. Après une courte introduction, les choix concernant les trois filières sont exposés. Les différents dispositifs expérimentaux mis en place et le déroulement du programme de recherche sont décrits. Puis les différentes analyses tant sur le solide que sur les effluents gazeux et liquides ainsi que les méthodes qui ont permis d'aboutir aux résultats sont présentées. Le dernier chapitre aborde les principaux retours d'expérience et enseignements concernant l'analyse des COV dans les effluents gazeux.
- La troisième partie présente les résultats de ce travail de thèse. Dans un premier chapitre, la caractérisation massique, granulométrique, physico-chimique et biologique

du déchet utilisé pour l'étude est présentée. Le prétraitement biologique des déchets est abordé dans le second chapitre suivant différents axes : d'une part, par rapport aux performances du procédé en terme de stabilisation biologique et, d'autre part, par rapport aux émissions liquides et gazeuses associées au prétraitement. Les méthodes d'échantillonage de la matrice solide sont discutées. Le troisième chapitre revient sur le suivi des casiers expérimentaux de stockage ; notamment l'évolution de la température des différents massifs de déchets, les flux hydriques et gazeux, les flux émissifs des différents constituants du biogaz et des lixiviats ainsi que l'évolution du tassement du déchet en condition de stockage. Un bilan des trois filières de traitement est présenté dans le quatrième chapitre, les données obtenues du suivi du prétraitement biologique sont utilisées avec les données des casiers pour produire des bilans « entrant filière » comparables pour les 4 scénarii de stockage. Un dernier chapitre est consacré à une analyse statistique des données sur les COV.

• La quatrième partie est consacrée à une discussion des résultats et à une comparaison des différentes filières en terme d'émissions liquides et gazeuses, de la production de gaz à effet de serre et de la génération de COV et d'odeurs ainsi que le comportement géomécanique du déchet au cours du stockage.

PARTIE 1 SYNTHESE BIBLIOGRAPHIQUE

PARTIE 1 : SYNTHESE

BIBLIOGRAPHIQUE

Chapitre I : Dégradation de la matière organique par voie biologique

Les ordures ménagères, placées dans un milieu où la température et l'humidité sont adaptées, présentent toutes les conditions pour le développement d'une flore microbiologique capable de dégrader la matière organique biodégradable.

La biodégradabilité de substrats organiques solides dépend de leur disponibilité pour les microorganismes. Les microorganismes occupent le milieu réactionnel en formant des colonies ou biofilms à la surface des particules (Molz et al., 1993). La première étape commune à toute action microbiologique est une phase d'hydrolyse au cours de laquelle les molécules organiques complexes sont, sous l'action d'enzymes, transformées en molécules solubles de plus petite taille, substrat indispensable aux réactions biologiques qui suivent. La suite de la chaîne réactionnelle dépend de la nature des accepteurs d'électrons présents dans le milieu et surtout de la présence ou non d'oxygène qui déterminera le type de processus à venir : la voie aérobie ou la voie anaérobie (cf. Figure 2).



Figure 2 : Etapes de la dégradation d'un substrat solide (Aguilar-Juarez, 2000)

I.1 : Dégradation aérobie

Une très grande diversité de microorganismes préexistants dans les déchets (principalement des bactéries, actinomycètes et champignons) consomme l'oxygène gazeux pour minéraliser la matière organique en CO_2 et H_2O (Mustin, 1987). Comme peu de microorganismes sont capables de minéraliser complètement la matière organique, les sous-produits organiques peuvent être consommés directement par d'autres microorganismes ou subsister pour un temps plus ou moins long dans la matrice déchet (Bardos, 2004). C'est cette voie métabolique qui est privilégiée lors du compostage. Elle est caractérisée par son exothermicité (2830 kJ pour une mole de glucose minéralisée, Gourdon, 2002). Ce dégagement de chaleur entraîne des modifications thermiques importantes du milieu nécessitant l'adaptation de la flore microbienne. Le profil de température au cours du processus biologique permet de définir quatre phases (Francou, 2003, d'après Leclerc, 2001) :

- 1. La phase mésophile, caractérisée par une montée en température du milieu due à la dégradation de la matière organique facilement biodégradable, principalement par des bactéries et des champignons.
- 2. Les températures élevées (de l'ordre de 60-75°C) de la phase thermophile, où seuls les microorganismes thermorésistants peuvent survivre, correspondent à une perte importante de la matière organique principalement sous forme de CO_2 et d'eau. L'assèchement du milieu souvent observé est lié à une intense évaporation.
- 3. La diminution de substrat pour les microorganismes entraîne une baisse de l'activité microbienne qui ne génère plus suffisamment de chaleur pour contrer les pertes thermiques dues à l'évaporation et les échanges de chaleur avec le milieu environnant. C'est la phase de refroidissement qui ouvre la voie à une nouvelle colonisation du milieu par une flore mésophile.
- 4. S'en suit une longue phase de maturation dominée par des processus d'humification et par la dégradation lente de matière organique difficilement biodégradable.

La mise en œuvre industrielle de la dégradation biologique aérobie peut prendre différentes formes suivant les procédés. Le plus couramment utilisé, parce que simple et économique, est la mise en andain avec ou sans apport forcé d'oxygène, retournement ou arrosage, suivant la technicité du procédé. Bien que théoriquement aérobie, le milieu peut présenter des microzones anaérobies mises en évidence par la production de méthane, du fait d'une carence de l'apport en oxygène ou d'un excès de dioxyde de carbone produit par une activité biologique intense (Kirchmann et al., 1994 ; Beck-Friis et al., 2000).

La Figure 3 représente schématiquement les différents échanges de chaleur et transferts de matière au cours de la dégradation biologique aérobie.



Figure 3 : Représentation schématique des principaux transferts de chaleur et matière lors de la dégradation biologique aérobie (Francou, 2003)

I.2: Dégradation anaérobie

La biodégradation anaérobie fait référence à un enchaînement d'étapes métaboliques souvent simultanées où les sous-produits d'une étape deviennent les substrats de l'étape suivante. Les produits de cette chaîne de réaction sont majoritairement le dioxyde de carbone (CO_2) et le méthane (CH_4), dont le mélange est communément appelé biogaz. Les trois étapes de la dégradation anaérobie de la matière organique ont été abondamment décrites dans la littérature (Aragno, 1988 ; Christensen et al., 1989) :

- 1. La fermentation acide ou l'acidogénèse des molécules hydrolysées en Acides Gras Volatils (AGV), alcools, hydrogène et dioxyde de carbone par des bactéries fermentatives.
- 2. L'acétogénèse, où les bactéries acétogènes transforment les AGV (principalement les acides organiques de 3 à 6 atomes de carbone) et les alcools en l'AGV le plus simple : l'acide acétique, en hydrogène et en dioxyde de carbone.
- 3. La méthanogénèse qui est l'étape finale conduisant à la production de méthane et de dioxyde de carbone soit à partir de l'acide acétique par les méthanogènes acétoclastes, soit par la voie hydrogénophile où les bactéries convertissent l'hydrogène et le dioxyde de carbone en méthane.

Les bactéries acidogènes sont anaérobies facultatives, c'est-à-dire qu'elles vont prioritairement consommer l'oxygène présent mais peuvent vivre en conditions anaérobies, alors que les acétogènes et les méthanogènes sont anaérobies strictes.

La chaîne de réaction de méthanisation qui transforme la matière organique en méthane et en dioxyde de carbone est faiblement exothermique par rapport à la réaction aérobie (401 kJ pour une mole de glucose convertie en 3 moles de CH_4 et trois moles de CO_2 , Gourdon, 2002). Selon Hartz et al. (1982), la température optimale de dégradation anaérobie pour les ordures ménagères est comprise entre 35 et 41°C. La méthanogénèse et plus généralement la croissance anaérobie sont ralenties à une température inférieure à 20°C (Gourdon, 2002).

En conditions réelles de centre de stockage, les trois phases de la dégradation anaérobie décrites ci-dessus sont précédées par une courte phase aérobie pendant laquelle l'oxygène résiduel contenu dans les pores du déchet est consommé par des microorganismes aérobies. La durée de cette phase est fonction des possibilités de diffusion de l'oxygène dans le massif de déchet à partir de la surface (Aguilar-Juarez, 2000), ie : le mode de mise en place des déchets (fréquence et épaisseur des couches), la qualité du compactage des déchets, la présence d'une couverture temporaire, l'intensité des précipitations pendant la phase d'exploitation. C'est pendant cette phase, grâce au dégagement de chaleur caractéristique de l'activité biologique aérobie que le déchet subit une montée en température. Durant cette phase, certains polymères difficilement biodégradables sont solubilisés et donc rendus accessibles pour la phase anaérobie à venir. D'après Aguilar-Juarez (2000), entre 5 et 15 % de la matière organique est consommée durant cette phase.



Figure 4 : Evolution de la composition du biogaz au cours de la biodégradation (Rees, 1980)

Le suivi du gaz produit tout au long de la vie d'une décharge renseigne sur les processus biologiques au sein du massif, et donc permet d'appréhender la succession des différentes phases théoriques de la dégradation de la matière organique. Le graphique publié par Farquhar et Rover en 1973, repris et complété par de nombreux auteurs (Rees, 1980; Christensen et al., 1989; Reinhart et al., 1996; Williams, 1998; Pohland et al., 1999) montre l'évolution de la composition du biogaz au cours de la stabilisation des déchets (Figure 4). Différentes phases se distinguent : la phase aérobie, la phase d'anaérobie non méthanogène, dite de transition, la phase de formation d'acides comprenant l'hydrolyse et

Facteurs	Paramètres / Commentaires	Références
d'influence		
Humidité	Taux d'humidité optimal :	
	60 % et plus	Pohland (1986) et Rees (1980)
Oxygène	Potentiel Redox optimal pour la méthanogénèse:	
	-200 mV	Farquhar & Rovers (1973)
	-300 mV	Christensen & Kjelden (1989)
	< -100 mV	Pohland (1980)
рН	pH optimal pour la méthanogénèse	
	6 to 8	Ehrig (1983)
,	6,4 to 7,2	Farquhar and Rovers (1973)
Alcalinité	Alcalinité optimale pour la méthanogénèse :	
	2000 mg.L	Farquhar and Rovers (19/3)
	Concentration en acides organiques max. pour la	
	methanogenese :	Farry bar and Powers (1072)
Tompáratura	3000 mg.L	Farqunar and Kovers (1973)
Temperature	Temperature optimale pour la methanogenese . 10°	Poor (1980)
		$\frac{1}{2}$
	41 C 34-38 °C	Mata-Alvarez et al. (1902)
Hydrogène	Pression partielle d'hydrogène pour l'acétogénèse	Mata Attaicz et al. (1700)
nyarogene	inférieure à 10 ⁻⁶ atm.	Barlaz et al. (1987)
Nutriments	Généralement en quantité suffisante sauf zone	Christensen & Kjelden (1989)
	localisée due à l'hétérogénéité des déchets	
Sulfate	Concentration de sulfates élevée ralentit la	Christensen & Kjelden (1989)
	méthanisation (compétition avec les bactéries	
	sulfactoréductrices)	
Inhibiteurs	Légère inhibition causée par les cations suivants	McCarty & McKinney (1961)
	(en mg.L ⁻) :	
	Sodium 3500-5500	
	Potassium 2500-4500	
	Calcium 2500-4500	
	Magnesium 1000-1500	
	Ammonium (total) 1500-3000	
	Métaux lourds :	
	Pas d'influence significative	Ehrig(1983)
	Composés organiques :	
	Inhibiteur pour des concentrations élevées	Christensen & Kjelden(1989)

l'acidogénèse, la phase de méthanogénèse stable puis le déclin final qui voit les concentrations en CO_2 et CH_4 chuter.

Tableau 1 : Facteurs influençant la dégradation biologique en CSD (Yuen, 1999)

L'installation des conditions nécessaires au développement des microorganismes anaérobies dans un centre de stockage peut être longue (plusieurs mois voire plusieurs années) du fait de la présence d'inhibiteurs. En effet, certaines espèces présentes dans le milieu peuvent limiter, suivant leur concentration et leur disponibilité dans le milieu, la capacité métabolique de la flore microbienne : les hydrocarbures chlorés, les AGV, les détergents, les substances analogues au méthane (chloroforme), l'ammoniaque, les oxydants tels que l'oxygène (Taylor, 1982). Les conditions du milieu comme la température, le potentiel redox, l'humidité, la quantité de nutriments, le pH peuvent aussi être responsables d'un ralentissement ou d'une disparition de l'activité microbiologique (Gourdon, 2002). Le Tableau 1, d'après Yuen (1999), résume l'état des
connaissances des différents facteurs et conditions de milieu qui affectent le développement des bactéries.

1.3 : Processus de formation des composés gazeux NH₃, N₂O, CH₄, COV, H₂S

La formation de NH₄⁺ par l'action hydrolytique de bactéries sur les formes organiques azotées telles que les protéines est appelée ammonification. Ce processus est influencé par la teneur du déchet en azote organique. Les émissions gazeuses de NH₃ sont dépendantes du comportement du couple NH₄⁺/NH₃ selon les conditions physico-chimiques du déchet. Le pKa du couple est de 9,2. Ainsi, un pH élevé favorisera la formation de NH₃. La température et l'humidité du massif sont deux facteurs qui influencent les émissions de NH₃. La littérature ne mentionne pas la présence de NH₃ dans le biogaz produit lors de la méthanogénèse malgré des concentrations importantes d'ammonium dans la phase liquide et un pH souvent basique pour un déchet dégradé. Les émissions de NH₃ sont habituellement attribuées à des conditions aérobies pour lesquelles la cinétique du processus d'ammonification est plus rapide qu'en condition anaérobie. Un second processus de formation d'ammonium est la nitrammonification ou Réduction Dissimilatrice du Nitrate en Ammonium (RDNA). Cette voie de réduction du nitrate est moins bien connue que la dénitrification et difficile à mettre en évidence (Vigneron, 2005). Celle-ci peut conduire à un dégagement de N₂O (Welsh et al., 2001).

Le protoxyde d'azote (N_2O) est, par ailleurs, un sous-produit des réactions de nitrification et de dénitrification. La nitrification est un processus en deux étapes qui permet, en conditions aérobies, l'oxydation du NH_4^+ en NO_2 , puis du NO_2 en NO_3 . La dénitrification, associée à des conditions anaérobies, est le processus dans lequel NO₃, NO_2 , NO et N_2O peuvent être utilisés par les bactéries comme accepteur final d'électrons (Cabrera, 1994). Le NO, N₂O et N₂ sont des produits ou sous-produits de cette réaction. La présence d'oxygène est un facteur déterminant dans la production de N_2O . En effet, la nitrification du NH_4^+ à des faibles pressions partielles d'O₂ entraîne une importante production de N_2O , probablement comme intermédiaire entre le NH_2OH et le NO_2 (Czepiel et al., 1996). La dénitrification est inhibée à des températures supérieures à 40°C (Focht, 1977). Inversement, la présence de traces d'oxygène lors de la réduction du NO₃ en N₂ entraîne la production de N_2O ; la réaction est, par ailleurs, complètement inhibée si la teneur en O₂ est importante (Knowles, 1982). Les émissions de N₂O en conditions de compostage (conditions aérobies) sont limitées à la période de montée en température du déchet au tout début du processus biologique et lors du refroidissement de celui-ci durant la phase de maturation (Yaowu et al., 2001).

Le méthane est le produit final de la dégradation anaérobie de la matière organique. La présence de méthane dans les émissions gazeuses d'un milieu à dominante aérobie (compostage de déchets) est, par contre, anormale et révélatrice de conditions locales anaérobies. Celles-ci sont le résultat d'un défaut d'apport en O_2 dû, par exemple, à la saturation des pores du massif en eau (rencontrée à la base des andains), à l'établissement de passages préférentiels au sein du massif ou tout simplement à une aération insuffisante (Mustin, 1987). Les zones anaérobies sont indicatrices d'un problème dans la gestion du traitement aérobie : une fréquence de retournement trop faible, une humidité trop élevée, une panne du système d'aération ou du suivi des paramètres procédés, etc... Les

émissions de méthane dépendent énormément de la mise en œuvre du traitement (box ventilé, tunnel, aération forcée, siloda, etc).

Les émissions de COV sont issues soit de la volatilisation de composés présents dans le déchet soit de l'activité des microorganismes (Parker et al., 2002). Les composés présents dans le déchet peuvent être des composés biogéniques ou anthropogéniques suivant s'ils sont naturels (terpènes dans les déchets verts par exemple) ou directement liés à l'activité humaine (composés halogénés dans les mousses isolantes) (Cowie, 2004). La provenance des COV est détaillée dans le chapitre III.

Les Bactéries Sulfato-Réductrices (BSR), anaérobies strictes, sont les responsables de la production de H_2S en réduisant les sulfates présents dans le déchet (Zhou et al., 1998). Elles permettent de convertir l'hydrogène, l'acide acétique et des AGV comme l'acide Butyrique, le carbone organique est cependant toujours oxydé en CO_2 à la différence de la méthanogénèse. La présence d'une concentration en sulfates trop élevée peut entraîner une diminution du carbone organique disponible pour la production de méthane puisque la réaction de sulfato-réduction est énergiquement plus intéressante que la méthanogénèse (Thauer et al., 1977).

Chapitre II : Les nouvelles filières de stockage

II.1: Généralités

La filière de stockage conventionnel a connu ces dernières années de profondes mutations du fait de l'accentuation des contraintes législatives et sociales et grâce à l'évolution des connaissances scientifiques liées à la gestion des déchets. Le concept du site contrôlé, introduit par l'arrêté du 9 septembre 1997 consolidé, avec l'obligation de barrière actives et passives garantissant un confinement des déchets et la récupération des effluents, est maintenant bien assimilé par les acteurs du métier du stockage.

L'apparition de la notion de développement durable a donné naissance au concept de « sustainable landfill » ou décharge durable dont un des piliers est de réduire la durée de vie d'une décharge à l'échelle d'une génération. En d'autres termes, l'équilibre environnemental, qui caractérise la fin de post-exploitation d'une décharge, doit être atteint dans un délai de 30 ans. Parallèlement, l'acceptabilité sociale du traitement de déchet est maintenant un enjeu majeur du fait du syndrome NIMBY (Not In My Back Yard) partout présent dans les pays riches. La tendance à une meilleure acceptabilité des projets ayant une consonance biologique ou renouvelable est manifeste et pousse les collectivités à opter pour des techniques innovantes dont les aspects « écologiques» sont mis en avant.

Pour ces deux raisons, environnementale et sociale, les concepts d'exploitation de centres de stockage en mode Bioréacteur et de prétraitement biologique avant enfouissement présentent de plus en plus d'intérêts pour les collectivités locales. L'objectif de ce chapitre est de définir ces deux concepts et d'identifier en quoi ils se démarquent du concept du CSD conventionnel.

II.2 : Le concept de Bioréacteur

La décharge Bioréacteur a été définie par la SWANA (Solid Waste Association of North America) comme « une décharge dont le but est la transformation et la stabilisation de la matière organique facilement et modérément biodégradable en l'espace de 5 à 10 ans à l'aide de procédés appropriés pour l'activation des processus microbiologiques. La décharge Bioréacteur permet une amélioration significative de la dégradation des déchets, du taux de conversion en méthane et de l'efficacité du procédé par rapport à ce qui peut être observé dans une décharge Conventionnelle » (Pacey et al., 1999).

Le concept du Bioréacteur dépasse les pré requis réglementaires et considère le massif de déchet comme un réacteur biologique (Leckie et al., 1979 ; Bookter et al., 1982 ; Barlaz et al., 1990) sur lequel il est possible d'agir pour favoriser l'activité des microorganismes. L'humidité du massif est le paramètre sur lequel se sont focalisés de nombreux travaux à partir des années 70. C'est, selon Polhand (1975), le facteur déterminant pour l'amélioration de la dégradation des déchets en centre de stockage. En plus de permettre l'augmentation de l'humidité du massif de déchet, la recirculation des lixiviats permet de véhiculer les nutriments et les micro-organismes et ainsi de coloniser des zones asséchées (Yuen, 1999 ; Vigneron, 2005).



Figure 5 : Schéma de principe du centre de stockage Bioréacteur

De nombreuses études conduites à différentes échelles, de la colonne de laboratoire (Mata-Alvarez et al., 1986; Barlaz et al., 1987; Purcell et al., 1997; Stegmann, 1997) aux tests réels sur site (Yuen, 1999; Yolo co., 1997; Warith, 2002) aux lysimètres de taille semi industrielle (Leckie et al., 1979; Polhand, 1980), ont montré l'influence positive de la recirculation sur la phase d'hydrolyse et d'acidogénèse (Yuen, 1999). Néanmoins, la production d'acides organiques ainsi engendrée peut conduire à un blocage de la phase méthanogène si le déchet présente un pouvoir tampon insuffisant (Walsh et al., 1986; Kinmann et al., 1987). Le pouvoir tampon des lixiviats recirculés peut aussi permettre d'atteindre des gammes de pH favorables au développement des bactéries méthanogènes (San et al., 2001). La neutralisation du pH des lixiviats avant recirculation a montré des résultats convaincants permettant un rapide démarrage de la production de méthane (Polhand, 1975; Tittlebaum, 1982). Scrudato et al. (1993) ont mis en évidence des résultats similaires grâce à la recirculation de lixiviats provenant de cellules stabilisées qui présentent une alcalinité élevée et permettent l'inoculation du déchet jeune avec des populations bactériennes méthanogènes. D'après Leuschner (1989), l'addition de boues de STEP en plus de la recirculation présente les mêmes avantages à condition que les boues ne soient pas trop acides. L'addition de nutriments au lixiviat semble, selon Tittlebaum (1982), ne rien apporter au milieu puisque ceux ci sont déjà présents en excès dans le déchet, alors que Warith (2002) montre le contraire. Ceci met en évidence l'importance de paramètres, tels que la composition du déchet, qui sont indissociables des conclusions tirées des résultats expérimentaux (Yuen, 1999).

La recirculation du lixiviat a pour conséquence :

• L'augmentation des vitesses de production de biogaz et de méthane (Reinhart, 1996) et donc la possibilité d'une valorisation énergétique du biogaz facilitée et accrue.

• La réduction rapide de la charge organique des lixiviats, traduite par une baisse significative de la DCO, qui rend le lixiviat moins difficile à traiter (Polhand, 1975; Tittlebaum, 1982). Cependant, la baisse en éléments facilement biodégradables est accompagnée par une concentration de la DCO dure, des ions ammoniums et chlorures, du fer et du manganèse (Vigneron, 2005).

• Le gain de vide de fouille engendré par une augmentation des phénomènes de tassement (Leckie et al., 1979, Buivid et al., 1981). Ceci a des conséquences positives sur la durée de vie d'un centre de stockage mais fait craindre une détérioration précoce des systèmes d'étanchéité si ces phénomènes ne sont pas anticipés.

• L'accélération de la stabilisation du massif de déchet qui entraîne la réduction du temps et du coût de la post-exploitation de la décharge (Warith, 2002).

• Le stockage temporaire des lixiviats et la possibilité d'un traitement in-situ partiel (Yuen, 1999).

Aujourd'hui, au travers des nombreuses expériences de terrain, certaines leçons peuvent être tirées par rapport à l'effet néfaste d'un compactage excessif sur la perméabilité du déchet (Olivier, 2004), par rapport aussi au système de captage du biogaz et de drainage des lixiviats qui doivent être dimensionnés en tenant compte des flux de biogaz et de lixiviat plus importants par rapport à un CSD conventionnel (Ademe, 2006). L'accroissement des tassements différentiels doit être d'avantage pris en compte lors de la conception du centre de stockage (Ademe, 2006).

De nombreuses questions subsistent quant à la conception, au dimensionnement et à la mise en place des réseaux d'injection de lixiviats notamment le type de système à employer (puits d'injection horizontaux, verticaux ou mixtes, « lagon » d'infiltration), la réelle efficacité des systèmes d'injection, leur zone d'influence, et l'appréhension de la distribution spatiale et temporelle de l'humidité (Yuen, 1999), les quantités de lixiviats réinjectées : de la simple mise à capacité au champ du déchet jusqu'au concept de lessivage (flushing) et la fréquence de réinjection : phases de réinjection périodiques adaptées à l'évolution du déchet ou recirculation permanente.

D'autres questions se posent quant à l'influence de la réinjection sur la qualité des lixiviats produits avec en particulier les phénomènes de concentration de certains ions. L'établissement de bilans hydriques, à défaut de pouvoir mesurer l'évolution de l'humidité du déchet in situ, doit permettre d'estimer les quantités de lixiviats à recirculer (Ademe, 2006). Enfin, les données permettant d'estimer les gains environnementaux de la gestion en Bioréacteur d'un CSD manquent pour pouvoir situer ce mode de gestion par rapport au CSD conventionnel et surtout par rapport aux objectifs de la directive européenne de 1999 de limiter les impacts environnementaux des décharges (Ademe, 2006).

Avec plus de 130 sites répertoriés comme pratiquant la recirculation de lixiviats (Gou et al., 1997), les Etats Unis ont été depuis deux décennies les précurseurs de la technologie

Bioréacteur. Cependant, Benson et al. (2005) déplorent le manque de suivi de ces sites, dont la plupart pratique la recirculation dans le but de diminuer leur quantité de lixiviats à traiter, sans véritable stratégie de recirculation ni d'installations dédiées.

En France, le concept du Bioréacteur semble petit à petit s'imposer comme une option potentielle pour le traitement des déchets ménagers et assimilés. La mention dans le dernier arrêté ministériel du 19 janvier 2006 modifiant l'arrêté de 1997 de la possibilité de pratiquer « la re-circulation de lixiviat destinée à accroître la cinétique de production de biogaz » est un indice de l'avenir prometteur de cette filière. Aujourd'hui, à l'échelle industrielle, quelques sites pratiquent la recirculation à titre expérimental (La Vergne, SYDOM du Jura) mais, que ce soit au niveau français ou même international, malgré des travaux scientifiques nombreux et de qualité, peu ont pu apporter des résultats pour étayer de manière irréfutable les théories établies en laboratoire (Benson et al., 2005 ; Ademe, 2006). Le facteur limitant étant le transfert des phénomènes observés en laboratoire à l'échelle d'un site. Celui-ci apparaît être le principal problème à surmonter pour pouvoir apporter les réponses aux multiples questions encore en suspend. La difficulté du transfert d'échelle réside dans l'antagonisme qui existe entre la représentativité des phénomènes, qui croît avec la taille des expérimentations, et leur observabilité spatiale et temporelle, qui diminue plus la taille du système est importante.

II.3 : La filière de prétraitement biologique avant enfouissement

Le prétraitement biologique est né du constat que les principaux désagréments techniques et écologiques (biogaz, lixiviats, tassement) liés à la mise en décharge provenaient de la présence de matière organique biodégradable dans les déchets. Un des moyens de les atténuer est de procéder à la stabilisation biologique du déchet en amont de la décharge afin de mieux pouvoir en contrôler l'évolution. L'idée qu'il est possible de récupérer une fraction des ordures ménagères pour une valorisation soit matière (par exemple les métaux), soit énergétique (fraction à haut pouvoir calorifique) afin de limiter les volumes de déchets à enfouir, en plus du besoin de préparer les déchets à la phase biologique qui suit, a conduit les acteurs du métier du déchet à concevoir un traitement mécanique poussé en amont de la stabilisation biologique du déchet (Komilis et al., 1999).

La filière de prétraitement biologique avant enfouissement (PTB ou MBT en anglais) a fait son apparition en Allemagne et en Autriche en s'intégrant dans un système global de gestion multi-filière des déchets comme le montre la Figure 6. Dans ces deux pays, le PTB est encadré par une réglementation très contraignante qui a donné naissance à une filière de haute technologie qui inclut des procédés de traitements mécaniques et biologiques très sophistiqués (Lornage et al., 2006). La particularité imposée par la réglementation est le criblage obligatoire du déchet avant le traitement biologique qui implique la séparation d'une fraction à haut pouvoir calorifique et l'entrée dans le traitement biologique de la seule fraction fine.

En France, le concept connaît un récent succès car il s'intègre parfaitement dans une logique de développement durable qui prône la réduction de la durée et de l'intensité des impacts liés à la mise en décharge des DMA. Le PTB est cependant dans bien des cas une manière de mieux faire accepter le centre de stockage qui est accolé aux bâtiments de prétraitement.



Figure 6 : Concept du PTB intégré dans un système global de traitement de déchets (Adib, 2005)

Un des axes moteurs pour les professionnels du déchet semble être le gain de vide de fouille apporté par le PTB qui permet d'étendre la durée de vie des CSD. Aujourd'hui, seules trois installations de PTB avant enfouissement sont recensées en France (Carpentras, Lorient, Mende), mais de nombreux projets, encore à l'état de pré étude, devraient voir le jour.

Les principaux prétraitements mécaniques des déchets traditionnellement utilisés pour concentrer et préparer les matières recyclables pour leur récupération ou préparer la fraction biodégradable pour un traitement biologique sont la réduction granulométrique, la séparation granulométrique et le tri des composants du déchet (Komilis, 1999). Le broyage a été identifié comme un facteur important affectant la biodégradabilité de la matière organique (Buivid et al., 1981; Bookter et al., 1982; Barlaz et al., 1990). L'utilisation de trommels (tamis rotatifs), courante dans les installations industrielles, permet de séparer les déchets en différentes fractions selon leur taille. Si ceux-ci sont équipés de griffes, ils permettent aussi l'ouverture des sacs contenant les déchets. La taille de maille du trommel utilisé permet une séparation plus ou moins efficace de la matière organique (Rousseaux et al., 1992) et permet, inversement, à une quantité plus ou moins importante du flux d'être déviée du traitement biologique. Les outils d'homogénéisation et de déferraillage (magnétique, par courant de Foucault, etc) peuvent également trouver leur place dans une chaîne de traitement mécanique. La qualité du traitement mécanique influe beaucoup sur la qualité des fractions valorisables (degré de contamination) ou sur la possibilité de dommages causés aux traitements avals.

Il existe différentes options pour le traitement biologique : soit en aérobie, soit en anaérobie, soit une combinaison des deux (Komilis et al., 1999). Les procédés aérobies ont été davantage étudiés que les procédés anaérobies ; ils représentent d'ailleurs une part importante des procédés industriels aujourd'hui en fonctionnement. En effet, l'intégralité

des unités installées en Autriche et 80 % des unités allemandes fonctionnent avec des procédés aérobies (Adib, 2005).

Les objectifs de la stabilisation biologique avant enfouissement (réduction du potentiel méthanogène, de la quantité et de la qualité des émissions liquides, de la masse de déchet à enfouir) sont différents de ceux du compostage ou de la méthanisation des déchets organiques qui visent à produire un compost stable biologiquement et valorisable en agriculture. Malgré tout, la confusion entre compostage d'ordures ménagères et PTB avant enfouissement est courante. Sans doute parce que les industriels se sont largement inspirés des procédés de compostage existants.

Il est possible de distinguer 3 types de procédés aérobies : les procédés statiques (en andain ou en containeur sans retournement), les procédés semi-dynamiques (en andain, en containeur ou en hall avec retournement automatique) et les procédés dynamiques (en tunnel rotatif fermé ou en phase liquide) (IFAS, 2006). Les procédés anaérobies peuvent quant à eux être classés selon s'ils sont destinés à traiter l'intégralité ou une partie du flux de déchet, par voie humide ou par voie sèche ou suivant le nombre d'étapes du procédé. Dans tous les cas, la fermentation anaérobie des déchets est suivie d'un traitement aérobie.

Nombreuses sont les études qui ont montré la réduction de la charge organique des lixiviats et de la production de biogaz des déchets prétraités une fois enfouis (Leikam et al., 1995 ; Rieger et al., 1995 ; Höring et al., 1999 ; Raninger et al., 1999 ; Zach et al., 1999 ; Soyez et al., 2002 ; Robinson et al., 2005). La perte de masse humide durant le traitement biologique, déterminante quant à la réduction des tonnages destinés à la décharge, peut atteindre 20 à 47 % selon le procédé, le type de déchet et la durée de traitement (Leikam et al., 1997 ; Von Felde et al., 1997 ; Scheelhaase, 2001 ; Adani et al., 2004). Suivant le degré de traitement mécanique et notamment la granulométrie du produit stabilisé, des densités de placement allant jusqu'à 1,43 t.m⁻³ ont pu être obtenues (Schulte et al., 2006), permettant ainsi d'augmenter encore le gain de place (vide de fouille) en décharge.

Il est cependant important de noter la particularité de la filière de prétraitement biologique de type allemand (ou autrichien). En France, à défaut d'une réglementation qui impose des critères très stricts d'acceptabilité en décharge, une alternative de PTB moins poussé, effectué sur l'ensemble du flux de déchet est possible (à l'image de l'unité de Lorient, mise en service en 2005 pour le traitement de 57000 tonnes de déchets ménagers résiduels). Les résultats des très nombreuses études allemandes sont donc à interpréter en tenant compte de ces particularités qui modifient la qualité du déchet stabilisé en sortie (composition, stabilité biologique et caractéristiques mécaniques), les bilans matière de la filière, les performances des traitements, etc.

Les études disponibles, en particulier dans la littérature allemande, définissent parfaitement le concept tel qu'il a été imaginé dans le contexte allemand, mais ne permettent pas de répondre à toutes les incertitudes relatives aux performances techniques et environnementales qui peuvent exister, en particulier, dans le contexte français. L'impact d'un traitement biologique moins poussé sur le comportement du déchet en conditions de stockage ou l'influence du traitement de l'intégralité du flux de déchet sur les performances du prétraitement, sur les émissions associées et sur la mise en décharge des déchets prétraités sont des questions auxquelles il est nécessaire de répondre. De plus, les études au sujet des impacts environnementaux de la filière PTB manquent afin de pouvoir comparer sur des bases communes (même gisement de déchet) et dans leur intégralité (de la réception du déchet à la phase de stockage) le PTB avant enfouissement aux autres filières de stockage.

Chapitre III : Les composés organiques volatils

III.1 : Généralités (Le Cloirec, 1998)

Selon l'arrêté du 1^{er} mars 1993 relatif aux ICPE, un Composé Organique Volatil (COV) est un composé qui contient du carbone et de l'hydrogène, lequel peut être substitué par d'autres atomes comme les halogènes, l'oxygène, le soufre, l'azote ou le phosphore, à l'exception des oxydes de carbone et des carbonates. Ces composés se trouvent à l'état de gaz ou de vapeur dans les Conditions Normales de Température et de Pression (CNTP). Cette définition peut être affinée en précisant que les COV ont une pression de vapeur supérieure à 10 Pa dans les CNTP.

L'exclusion du méthane de la liste des COV aboutit à une dénomination couramment employée : les COV non-méthaniques (NMOC en anglais).

III.2: Ordures ménagères : une source de COV

La composition du biogaz émis par les décharges d'ordures ménagères fait depuis plus de 30 ans l'objet de recherches. Déjà en 1973, Farquhar et al. proposaient un modèle de l'évolution de la composition du biogaz en gaz majoritaires durant la vie d'une décharge (cf. Figure 4). La présence de composés odorants et/ou dangereux pour la santé des opérateurs et du voisinage des décharges a été rapportée dès la fin des années 70 (Tabasaran, 1979). Les effets corrosifs de ces composés sur les installations de collecte et d'utilisation du biogaz (organochlorés, soufrés réduits) ont été largement décrits (Dernbach, 1985 ; Schweigkofler et al., 1999). Les études qui se sont intéressées à l'origine et au processus de génération de ces composés sont cependant peu nombreuses.

Une étude conduite par Stratheropoulos et al. (2005) a montré que les ordures ménagères fraîches, pour lesquelles aucune activité biologique notable n'avait été mise en évidence, pouvaient être la source de plus de 150 composés, parmi lesquels les alcanes (C5-C11), les BTEX, des alkylbenzènes en C3, C4 et C5 et les terpènes : limonène, α et β -pinène. L'étude ne permet cependant pas de conclure si leur présence n'est due qu'aux ordures ménagères ou bien s'ils sont les produits des toutes premières étapes d'une dégradation biologique naissante. Dans une étude de suivi des COV émis lors du compostage d'ordures ménagères, Pierucci et al. (2005) ont effectué une mesure des composés présents initialement dans le déchet avant le traitement biologique. Les aromatiques (toluène éthylbenzène, triméthylbenzène) et les chlorés (tri et tétrachloréthylène).

Wilkins (1994), qui a étudié les COV présents dans l'atmosphère d'une benne de déchets juste après la fin de la collecte, a observé des différences significatives entre les bennes de biodéchets et les bennes d'ordures ménagères mélangées. En effet, alors que les premières n'émettaient principalement que des alcools, cétones, esters, aldéhydes et terpènes, la totalité des hydrocarbures linéaires et aromatiques (à l'exception du pentane et du toluène) était identifiée seulement dans les bennes d'ordures ménagères mélangées. Ces données ont été complétées, dans deux études plus récentes des émissions provenant d'une benne de déchets verts (Wilkins, 1996b, 1997). Ces émissions sont très similaires à celles des biodéchets, avec très peu d'aromatiques (seul le toluène et le styrène), aucun alcane détecté, mais de nombreux alcools, cétones et terpènes.

Ces résultats permettent, d'une part, de noter que la composition des déchets est un paramètre majeur déterminant les espèces émises, et d'autre part, que les hydrocarbures linéaires ou aromatiques sont plus probablement émis par les fractions autres que les fractions fermentescibles (déchets de cuisine et de jardin). Ces fractions ne sont cependant pas exemptes de contamination par des produits tels que de l'huile, de l'essence d'une tondeuse ou des produits phytosanitaires utilisés dans les jardins, ou, pour les déchets de cuisine une contamination de la nourriture par les emballages en composés aromatiques tels que le toluène, le styrène, le benzène (Heikes et al., 1995), par exemple avec les produits conditionnés pour être réchauffés au micro-onde (Mc Neal et al., 1993).

III.3 : Volatilisation des composés organiques contenus dans le déchet

Parmi les éléments qui constituent le déchet, il convient de distinguer deux types de source de COV.

Une des deux sources, identifiée comme ayant un potentiel d'émission relativement important est constituée par les Déchets Toxiques en Quantité Dispersées (DTQD) (Reinhart, 1993). Ils regroupent des déchets hétérogènes et produits en petits volumes par de très nombreux détenteurs dispersés sur le territoire. Une étude de l'ADEME (2004) estime à 82,1 tonnes la quantité de ces déchets produits par les ménages auxquels il convient de rajouter une partie des déchets produits par les Très Petites Entreprises (TPE). Il est estimé que 7,8 Mt de DTQD sont produites chaque année par les ménages, les TPE et les laboratoires, une grosse partie étant à mettre à l'actif des activités du bâtiment. Malgré les initiatives au niveau national ou au sein des corps de métier et la multiplication des déchèteries ouvertes aux particuliers, seulement 15 % du gisement serait collecté par les filières appropriées (ADEME, 2004). La quantité de produits se retrouvant dans les unités de traitement (CSD, PTB, compostage) ne serait donc pas négligeable.

La présence de COV dans les déchets peut donc en partie être expliquée par les DTQD qui contiennent entre autre : huiles de vidange, lubrifiants, peintures, solvants, chiffons et emballages souillés, aérosols, tubes fluorescents, etc. Une fois arrivés dans un centre de traitement, ces produits vont subir les mêmes transformations que les autres déchets : volatilisation, dissolution et advection, sorption, réduction, oxydation et biotransformation (Reinhart, 1993) permettant la libération de composés organiques sous forme gazeuse ou aboutissant à la formation de produits secondaires souvent volatils. L'étude de Young et al. (1983) vient corroborer cette hypothèse puisqu'elle montre que les décharges ne recevant que des déchets industriels émettent plus de composés aromatiques et halogénés que les décharges qui reçoivent un mélange de déchets industriels et de déchets domestiques, elles-mêmes émettant plus que les décharges ne recevant que des déchets

En plus de ces produits facilement identifiables, une majorité des produits de consommation courante sont, à des degrés différents, des sources potentielles de COV. Les produits issus de l'agroalimentaire et les déchets de nourritures sont aussi concernés.

Le Tableau 2 donne une liste, non-exhaustive, des composés organiques qui ont été identifiés sur différents objets de consommation courante et sur des composants des DTQD.

Produits de consommation	COV identifiés	Références
Papiers et cartons imprimés	Alcanes linéaires C4-C14 ,BTEX, styrène, naphtalène, C3-, C4-alkylbenzènes, α- B-pinène, limonène, camphène, n- butanol, n-hexanol, formol, acétaldéhyde, propanal, butanal, pentanal, hexanal, heptanal, benzaldéhyde, acétone, 2-butanone, 2-pentyl-furane	Hansen, 2003
Brosse à dent	Naphtalène, tétrachloréthène, Tétraméthyl-benzène	Svendsen, 2004
Colle à bois, colle d'écolier	Acétaldéhyde, formaldéhyde	Nillson, 2003
Autocollants, adhésifs de loisir	Alcanes linéaires C5-C8, isobutane, cyclohexane, toluène, naphtalène, acétone, méthyl-acétate, éthyl-acétate, butyl-acétate, éthanol, n-butanol,	Nillson, 2003
Textiles (coton, laine)	Naphtalène, formaldéhyde	Laursen, 2003
Produits anti-tâches	Butyl-acétate	Glensvig, 2003
Textiles nettoyés à sec	Tétrachloréthylène	Thomas, 1991
Feuilles de merisiers, pommiers, épines de pin	α-pinène, camphène, limonène	Moukhtar, 2006 Rapparini, 2001
Vernis	Chlorobenzène, toluène, mésithylène, éthylbenzène, m,p,o-xylène	Lee, 2003
Poivrons rouges, jaunes et verts	Esters d'acide butanoïque et pentanoïque	Sousa, 2006
Boissons alcoolisées (Vodka)	Aldéhydes (C1-C6) et cétones, éthanol	Wardencki, 2003
Détergents	Alkylbenzènes	Holt, 1992
Emballages composites	Acétone, 3-heptanone, cyclohexanone, Acide acétique, acide hexanoïque, 3-méthylbutanal, 2-éthylhexanal, aldéhydes linéaires (C4-C12)	Ezquerro, 2002
Maroquinerie	Toluène, benzène	Tang, 2005
Détergent, désodorisant	BTEX	Nazaroff, 2004

Tableau 2 : Emissions de COV par différents objets de consommation courante

III.4 : Production de COV par voie microbiologique

Une importante variété de COV peut être produite par les microorganismes (Fischer et al., 1999). Il a pu être établi que certains COV ou familles de composés étaient caractéristiques de l'activité de souches microbiennes particulières (Fischer et al., 1999). Cependant, une grande majorité des études sont menées sur des souches identifiées sur site mais cultivées sur des milieux synthétiques. Aussi, Fisher et al. (1999) précisent que les composés traceurs d'une activité microbiologique sont à confirmer sur des milieux de culture réels tels que des composts. Une étude effectuée dans une unité de compostage de biodéchets a mis en évidence la présence de plusieurs souches de champignons responsables de la production de métabolites volatils appelés COV d'origine microbienne (Microbial VOC, MVOC) (Fischer et al., 2000). Selon l'auteur, l'impact sur la santé des champignons présents dans les atmosphères de ce genre d'unité ne peut être évalué correctement, qu'en étudiant à la fois la flore fongique et les métabolites volatils produits par ces espèces.

Environnement	Microorganismes	Métabolites volatils	Références
Céréales	Moisissures	3-méthyl-furane	Börjesson, 1989, 1990
Lipides	Penicillium glabrum	1-octèn-3-ol	
Blé, avoine	Penicillium glabrum P. brevicompactum P. roqueforti	Acétone, 2-butanone, pentanone propanol, isobutanol, isopentanol, xylène, méthyl- furane, limonene, octanone	Börjesson,
Blé, avoine	Aspergillus flavus A. versicolor A. candidus	Methyl-butanone, methyl-propanol, xylène, ethylbenzène, 1-pentèn-3-ol, octadiène	1992
Compost	A. fumigatus	Camphène, β-phéllandrène, α-pinène, isopentanol, isobutanol, limonène	
	P. clavigerum	Limonène, myrcène, terpinène, ispentanol, isobutanol, styrène, diméthyl-disulfure	Fischer, 1999
Compost	Paecilomyces variotii	4-carène, myrcène, ocimène, B-phéllandrène.	
	A. Versicolor	6-méthyl-2-heptanone, myrcène limonène, isopentanol, 1-octèn-3-ol	
Collecte de déchet	AMI 386	Diméthyl sulfure, 2-propanol, 2-butanone, diméthyl-disulfure, diméthyl-trisulfure, limonène, diméthyl-tétrasulfure	Wilkins, 1996b
Planches de sapin, plaques de plâtre d'aggloméré	A. versicolor Fusarium culmorum P. chrysogenum Ulocladium botrytis Wallemia sebi	2-heptanone, isobutanol, 3-carène, aldéhydes	Claeson, 2002
Compost biodéchet	Bacillus cereus B. pumilus B. subtilis	Ethanol, butanol, isobutanol, isopentanol, benzène, éthyl-acétate, acétone, diméthyl- sulfure, diméthyl-disulfure	Pöhle, 1994
Carottes	Botrytis cinerea Erwinia carotovora Aspergillus niger Fusarium avenaceum	Isopentanol, 1-pentanol, isobutanol, 2,3- butanedione, 1-methoxy-3-methyl-butane éthoxy-éthane	Vikram, 2006

Tableau 3 : Production de COV par voie microbiologique (MVOC)

Börjesson et al. (1990) ont mis en évidence une corrélation entre la production de CO_2 et celle de métabolites volatils pour une espèce de champignon identifiée dans les déchets. D'après les mêmes auteurs (1992), il serait possible d'utiliser un ou une série de composés caractéristiques d'un champignon (ou d'une lignée) comme un indicateur de l'activité fongique. Ceci montre par ailleurs, que la minéralisation du déchet par voie biologique aérobie ne conduit pas seulement à la production de CO_2 et d'H₂O.

Selon Mustin (1987), les odeurs aromatiques (et donc les molécules correspondantes) des sols ou des composts mûrs sont dues aux actinomycètes. Les bactéries, bien que moins décrites dans la littérature, sont aussi responsables de la production de COV avec la même dépendance au substrat et au type de bactérie. Le Tableau 3 donne une liste non exhaustive de quelques études qui ont mis en évidence des MVOC produits par des microorganismes.

III.5 : Indicateurs de la dégradation biologique : les COV

Relier l'activité biologique et la production de COV semble intéressant et se pratique déjà beaucoup dans l'agroalimentaire pour détecter une dégradation de la qualité de fruits et légumes liée à l'activité de microorganismes (Vikram et al., 2006), ou le développement de champignons qui réduisent la valeur des céréales lorsqu'ils sont stockés en silo (Börjesson et al., 1992).

En ce qui concerne le déchet, les émissions de COV apparaissent comme des indicateurs potentiels de l'activité biologique au sein du déchet (Scott et al., 1988; Knox, 1990). L'ordure ménagère est cependant une matrice contenant une flore microbiologique très riche, et aussi de nombreux composés organiques volatilisables provenant de toutes les fractions qui la composent (cf. Tableau 2). Il est possible que cela entraîne un bruit de fond en terme d'émission de COV dans lequel il peut apparaît difficile d'identifier des indicateurs d'une activité biologique très diversifiée. En effet, différencier l'émission de COV d'origine microbiologique (MVOC) de la volatilisation des produits présents dans les déchets apparaît complexe puisque la première dépend de la composition des déchets responsables de la seconde ; le risque étant que les MVOC spécifiques aux flores microbiologiques intervenant dans les réactions aérobies ou anaérobies soient des composés déjà présents dans le déchet. Quelques auteurs ont travaillé à l'identification de composés utilisables comme indicateurs de l'activité biologique. Seules les conditions de stockage ont fait l'objet de recherche en ce sens, puisque pour le cas de traitement aérobie type compostage, le déchet est suffisamment accessible pour directement suivre la dégradation biologique à partir d'indicateurs sur la matrice solide.

Christensen et al. (1996) différencient les composés d'origine biologique des composés anthropogéniques. Pour les premiers, ils distinguent 3 familles de COV qui seraient générés pendant le processus de dégradation biologique dans une décharge.

• Les composés oxygénés : ils seraient présents dans le biogaz de décharge pendant la phase initiale de production de gaz.

• Les composés soufrés : ils proviendraient de la dégradation de la matière facilement biodégradable.

• Les hydrocarbures : en particulier les terpènes qui seraient naturellement générés puisque déposés avec les déchets enfouis.

L'étude conduite par Young et al. (1983) conclut que les composés oxygénés tels que les alcools sont des produits de dégradation biologique et sont des indicateurs d'une décharge jeune qui produit peu de méthane. Ikeguchi et al. (1991) présentent le ratio éthylène sur éthane comme un indicateur intéressant de l'état de décomposition du déchet. L'étude ne s'appuie cependant que sur 3 sites dont l'historique reste flou. Schwarze et al. (1997) ont conduit une étude dont le but était d'identifier des COV indicateurs de l'avancement de la dégradation du déchet en suivant l'évolution de la teneur en COV de deux pilotes abiotiques (inhibés au NaN₃ et au $C_7H_{13}ClHg$) en parallèle de deux pilotes témoins. Les auteurs ont mis en avant le 1-pentène comme un composé d'intérêt pour le suivi de la dégradation et la 2-butanone, le n-butanol et le butyl-butanoate comme indicateurs d'un déséquilibre ou d'une inhibition de la population microbienne. Cependant, l'étude est basée sur 4 points de mesure en 170 jours, aucune activité notable (production de biogaz) n'a été mesurée dans les pilotes témoins et les pilotes inhibés ont présenté des concentrations en CO₂ importantes (jusqu'à 85 %). Chiriac (2003) a comparé un biogaz jeune (alvéole en exploitation) avec un biogaz d'une alvéole agée de 15 ans (non-dégazée) et a conclu à la présence d'alcools, esters et cétones pour le biogaz jeune, et à une nette prédominance des alcanes lourds (n-C9 - n-C13) et des aromatiques pour le biogaz vieux. Inversement, Parker et al. (2002) ont décelé, sur un même site, une quantité de composés oxygénés plus de dix fois supérieure dans la partie âgée de la décharge comparée au biogaz issu d'un déchet âgé seulement de trois ans. Ces disparités montrent que les données doivent être comparées sur des bases communes en parallèle des données relatives à l'historique du site (dégazage, couverture du site), la composition des déchets, etc. Peu d'études ont utilisé les outils statistiques (type ACP) pour identifier des corrélations entre les différents paramètres d'influence et les émissions gazeuses.

III.6 : Conclusion

L'étude de la littérature montre que le déchet représente une source importante de COV du fait de sa composition. Les DTQD sont responsables de la présence de produits halogénés et aromatiques, il apparaît aussi que de nombreuses familles de COV peuvent être émises par des objets de la vie quotidienne et des produits agro-alimentaires. Parallèlement, les microorganismes peuvent être responsables de l'émission de métabolites volatils très variés dépendant de la composition du déchet, du type de microorganismes et de leur métabolisme. Il faut noter que les COV d'origine microbienne ou ceux présents dans le déchet peuvent devenir à leur tour un substrat pour d'autres microorganismes. En effet, de nombreuses études attestent de la biodégradation des composés tels que les alcanes (Zengler et al., 1999), les BTEX (Wang et al., 1998), les composés halogénés (Chaudhry et al., 1991).

Il n'existe aucune certitude sur la capacité des COV à servir d'indicateurs de la dégradation biologique. Les études déjà entreprises n'ont commenté que les concentrations relatives des composés présents dans le biogaz ou dans les effluents de traitements biologiques aérobies sans y associer une notion de flux d'émissions. De plus, aucune n'aborde d'une manière complète les facteurs qui influencent les émissions de COV tels que la température, la composition du déchet, la production de biogaz et l'activité biologique et les caractéristiques physico-chimiques des composés émis.

III.7 : Analyse des COV dans les effluents gazeux d'ordures ménagères

Depuis une vingtaine d'années, un grand nombre d'études ont été conduites sur la caractérisation des émissions de COV dans les effluents issus des ordures ménagères et des déchets biodégradables. Les études entreprises ont été réalisées grâce à l'accumulation des composés sur un ou des adsorbants avant une analyse par GC-MS (Parker et al., 2003). Les détecteurs à ionisation de flamme (FID) sont préférés pour leur sensibilité mais ne permettent pas l'identification des composés (Distler et al., 1991 ; Schwarze et al., 1997 ; Parker et al., 2003). Les détecteurs à capture d'électron (ECD) permettent la détection et l'identification des composés azotés, chlorés ou soufrés (Deipser et al., 1994). Le détecteur à photométrie de flamme (FPD) est utilisé pour la détection des composés soufrés (Nakasaki et al., 1998).

Les faibles concentrations des composés dans les atmosphères ambiantes des sites de traitement de déchets et dans les effluents eux-mêmes interdisent l'analyse en direct. L'utilisation d'un pré-concentrateur en ligne avec une μ GC-MS apparaît comme le seul outil fiable utilisable sur site (Davoli et al., 2003 ; Chiriac, 2004a).

Pour un prélèvement par accumulation sur tube et une analyse en laboratoire, c'est le choix du ou des adsorbants qui présente la principale difficulté de l'analyse des COV (Parker et al., 2003; Chiriac et al., 2004b). De nombreux adsorbants de différents types existent : les polymères poreux (Tenax, Chromosorbs, résines XAD, Porapaks), les tamis moléculaires carbonés (carbosieve, spherocarb), les charbons actifs (les plus courants proviennent de noix de coco calcinées), les gels de silice (Harper, 2000). Depuis quelques années, les tubes multicouches, contenant plusieurs lits d'adsorbants se sont imposés grâce à leur efficacité améliorée par la combinaison d'adsorbants complémentaires. Parmi les études menées avec ce type de tube, les précurseurs pour les analyses sur le biogaz de décharge, Allen et al. (1996), ont développé une méthode de prélèvement avec un tube triple composé de Tenax TA - Chromosorb 102 - Carbosieve III. Parker et al. (2002) ont repris cette méthode en la comparant à un tube dual composé de Tenax TA - Sphericarb conditionné dans un tube sulphinert Silco Steel garantissant une inertie totale par rapport aux composés soufrés qui ont tendance à se dégrader thermiquement. Schwarze et al. (1997) ont préféré l'association du Tenax TA avec du Carbosieve S III. Les tubes multicouches sont construits de manière à présenter une succession d'adsorbants possédant une capacité d'adsorption croissante. L'élargissement du spectre de composés retenus sur ce type de tube peut poser des problèmes lors de la désorption thermique et nécessite l'emploi d'un piège froid adapté refroidi à des températures très basses (au moins -30°C). Il devient alors nécessaire de soigner la séparation des composés notamment en allongeant la longueur des colonnes chromatographiques et en choisissant des colonnes très polaires.

L'utilisation de fibres SPME pour l'analyse des COV apparaît intéressante pour l'aspect qualitatif (très bonne sensibilité des fibres) (Davoli et al., 2003) mais semble inadaptée pour l'aspect quantitatif (Lornage et al., 2005).

Enfin, l'adsorption sur charbon actif, qui est de loin la technique la plus couramment utilisée pour l'étude des atmosphères de travail (Harper, 2000), a aussi été très utilisée pour l'étude des COV issus des déchets ménagers (Parker et al., 2002 ; Cernushi et al., 2003 ; Chiriac, 2004a, Chiriac et al., 2004b, 2006).

De ces nombreuses études, il ressort que les méthodes d'analyses très performantes pour l'étude des atmosphères intérieures doivent être adaptées à l'étude des effluents de déchets infiniment plus complexes du fait de l'hétérogénéité de la matrice, de la présence d'eau et de la concentration importante des différentes espèces. Malgré une importante diversité d'adsorbants ou de combinaisons d'adsorbants éprouvée, il apparaît qu'aucune méthode ne soit universelle et qu'il convient de considérer les résultats des différentes études avec prudence, surtout lorsqu'il s'agit de comparer des résultats entre eux.

Chapitre IV : Les émissions polluantes des filières de stockage : données disponibles

IV.1: Généralités

L'évaluation de l'impact environnemental des filières de stockage de déchets ménagers repose en partie sur les données caractérisant les émissions liées aux filières. De la qualité de celles-ci dépend, en grande partie, la robustesse et la justesse de l'évaluation.

L'objectif de ce chapitre est de faire un bilan des données disponibles dans la littérature permettant de dresser les caractéristiques qualitatives des émissions liquides et gazeuses en fonction de la filière de traitement et d'établir, dans la mesure du possible des bilans de filière sur le carbone ou l'azote par exemple, ou des bilans hydriques. Il s'agit également de réunir les données relatives aux flux émissifs de polluants suivant les filières : Conventionnelle, Bioréacteur et PTB.

Les données rapportées dans la littérature ne sont réellement valorisables et intercomparables que si elles sont accompagnées des données contextuelles afférentes (Parker, 2002) comme par exemple la composition et l'âge du déchet, les données physiques du déchet (température, humidité, densité), ou au moins une estimation, les paramètres procédés (aération, retournement, humidification, granulométrie pour un traitement biologique, taux, fréquence et méthode de recirculation pour un Bioréacteur par exemple), les conditions expérimentales de la prise de mesure, etc. Dans la suite de ce chapitre, une attention particulière sera apportée au renseignement de ces informations, lorsqu'elles sont disponibles, en même temps que les données directement relatives aux émissions de polluants.

IV.2 : Caractérisation des émissions de polluants liées au prétraitement biologique aérobie

Le traitement biologique aérobie des déchets, quel que soit le type de procédé employé, s'apparente à la gestion d'un déchet ayant subi (ou non) un traitement mécanique, auquel il est fourni l'oxygène et l'eau nécessaires à l'activité des microorganismes pour la dégradation de la matière organique biodégradable qu'il contient (Eitzer, 1995). Le traitement, qui a une durée variable suivant le procédé et les objectifs de stabilisation, entraîne des émissions gazeuses liées à la minéralisation du carbone organique et à l'entraînement de divers composés par le flux d'air insufflé à travers le déchet. Elles sont principalement composées de CO_2 , d'eau, de NH_3 , de N_2O , de CH_4 et de COV (Swan et al., 2002). Les émissions liquides, appelées jus par analogie au compostage où elles sont nommées jus de compost, proviennent de la percolation de l'eau perdue par le déchet par déstructuration de la matière organique ou produite par la réaction biologique aérobie et de l'eau « procédé » qui est apportée au déchet pour palier à l'éventuel assèchement du massif. Les quantités de jus de compostage sont relativement faibles.

Le compostage d'ordures ménagères résiduelles, bien que différent du PTB dans l'utilisation du produit final obtenu (valorisation agronomique au lieu de la mise en

décharge), présente des similitudes avec le PTB aussi bien pour le produit initial à traiter que pour les procédés employés. Il semble donc pertinent de s'intéresser aux nombreuses études qui ont été menées sur ce sujet.

IV.2.1 : Emissions gazeuses

IV.2.1.1 : Etudes sur le compostage

Les émissions de NH₃ et de N₂O ont été décrites dans plusieurs publications (Hellmann et al., 1997; Beck-Friis et al., 2000, 2001). Peu d'études relatent de la teneur en NH₃ des émissions gazeuses puisque, souvent, ce composé est mesuré par une technique intégrative par barbotage dans une solution d'acide sulfurique. Les flux émissifs de NH₃ représentent suivant le déchet, entre 26 et 62 % de l'azote total contenu dans le déchet initialement (Kirchmann et al., 1994 ; Eklind et al., 2000). Beck-Friis et al. (2001) ont mesuré des taux de production de NH₃ durant le compostage d'ordures ménagères pouvant atteindre jusqu'à 3,8 kg NH₃.t⁻¹_{déchet entrant}.jour⁻¹ pour une émission total de 25,1 kg NH₃.t⁻¹_{déchet entrant}, ce qui représente environ 33 % de l'azote total initialement contenu dans le déchet. Dans le même temps, 0,4 % de l'azote initial était émis sous forme de N_2O . Au total, plus de 98 % de l'azote perdu sous forme gazeuse était émis sous forme de NH₃, pour environ 1 %sous forme de N₂O. Hellmann et al. (1997), dans une étude du compostage d'ordures ménagères, ont mis en évidence une dépendance de la production de N₂O avec la température, les émissions se produisant le premier jour durant la montée en température puis après le 35^{ème} jour de compostage lorsque la température était retombée en dessous de 45°C. Beck-Friis et al. (2000) ont mesuré des concentrations en N₂O variant de 1 à 328 ppm suivant la durée de compostage. Les auteurs ont observé deux pics respectivement à la première semaine et à la 26^{ème} semaine de compostage d'ordures ménagères.

Les émissions de méthane sont souvent négligées dans les études d'impact environnemental du compostage puisque ce procédé a pour but d'éviter les carences en oxygène pour favoriser la dégradation biologique aérobie de la matière organique (DEFRA, 2004). Cependant, les microzones anaérobies sont inévitables et les émissions de méthane peuvent parfois être assez importantes (Hellmann et al., 1997). Beck-Friis et al. (2000) ont mesuré des concentrations en CH₄ variant entre 0,2 et 9,5 % sur des andains de compostage d'ordures ménagères. Les auteurs ont observé que le méthane était produit en profondeur dans l'andain et qu'il était oxydé partiellement dans les couches superficielles mieux oxygénées. Hellmann (1995) a montré lors d'une expérience de compostage d'un mélange OM - déchets verts (40/60 % en masse humide) que la fréquence de retournement des andains jouait un rôle important dans la formation de méthane. Les flux de CH₄ ont été de 267, 628 et 831 g CH₄.t⁻¹_{déchet entrant} respectivement pour les andains retournés quotidiennement, tous les trois jours ou toutes les semaines. Le méthane a été émis majoritairement durant la phase thermophile entre le 5^{ème} et le 30^{ème} jour de compostage.

Les émissions de COV durant le compostage d'ordures ménagères ont été étudiées par de nombreux auteurs (Eitzer, 1995; Kim et al., 1995; Komilis et al., 2000,2004; Pierucci et al., 2005). Tous sont unanimes sur le fait que la grande majorité des émissions se produit au début du processus de compostage, validant ainsi l'hypothèse selon laquelle la volatilisation des composés organiques initialement présents dans le déchet joue un rôle prépondérant dans le processus d'émission. Les différentes études font état d'une très large gamme de composés émis. Qualitativement, une grande part des composés identifiés dans les émissions gazeuses des traitements biologiques aérobies sont aussi présents dans le biogaz produit par la dégradation anaérobie du déchet, la description qualitative des émissions est développée dans le chapitre IV.3.1.4 portant sur les émissions des COV en condition de stockage.

Eitzer (1995), grâce à l'étude des concentrations de COV dans l'air ambiant de 8 platesformes de compostage aux Etats-Unis, a montré que les hydrocarbures aromatiques, en particulier le toluène et l'éthylbenzène, présentaient les concentrations les plus élevées. Les composés halogénés (CFCs) et le limonène se trouvaient parmi les composés majoritaires. Les concentrations les plus élevées ont été retrouvées au déchargement des déchets, lors de leur broyage et sur les andains de compostage fraîchement mis en place.

Smet et al. (1999) ont conduit une étude sur les émissions gazeuses produites durant le compostage d'un mélange de déchets de jardin, de cuisine et de papiers non-recyclables (respectivement 70 % / 20 % / 10 % en masse humide). Les auteurs ont suivis deux lots : le premier composté en pilotes de 224 L pendant 12 semaines (Traitement Biologique Aérobie, TBA), le second composté dans les mêmes conditions après un séjour de trois semaines dans un méthaniseur thermophile par voie solide (Traitement Biologique Combiné, TBC). La production de biogaz durant la méthanisation est d'environ 100 m³.t⁻¹_{déchet entrant}, indiquant une dégradation significative de la matière organique durant cette première phase. Les détails et les flux de polluants cumulés sont donnés dans le Tableau 4.

DE : déchet entrant	Т	ВА		TE	BC		
	Traiteme	nt aérobie	Traitement anaérobie		Traitement aérobie		
Taux d'aération ou biogaz produit	5234 N	Nm ³ .t ⁻¹ _{DE}	100 N	$m^3.t^{-1}DE$	1165 Nm ³ .t ⁻¹ _{DE}		
Familles et composés prédominants	Emissions (g.t ⁻¹ _{DE})	Conc. max (mg.m ⁻³)	Emissions (g.t ⁻¹ _{DE})	Conc. max (mg.m ⁻³)	Emissions (g.t ⁻¹ _{DE})	Conc. max (mg.m ⁻³)	
Alcools dont :	285	-	4,4	44	-	-	
2-propanol	134	95	1,4	14	-	-	
Ethanol	133	194	2,2	22	-	-	
Cétones dont :	158	-	2,8	28	0,6	-	
Acétone	125	114	0,7	7,4	0,2	19	
2-Butanone	22	61	0,8	7,8	0,1	8,3	
Terpènes dont :	82	-	206	2060	2,1	-	
Limonène	56	57	68	679	0,7	3,4	
p-cymène	2,9	3,4	123	1233	0,8	5,1	
Esters dont :	53	-	0,3	3,1	-	-	
Acétate d'éthyle	35	66	0,3	3,1	-	-	
Souffrés dont :	9,2	-	1,7	17	0,2	-	
DMS*	8,2	8,2	0,3	3,3	-	-	
COV totaux	590	-	217	2172	3	-	
NH ₃	152	227	1,8	18	41	> 500	
H ₂ S	-	-	17	170	-	-	
* DMS : diméthyl sulfure	diméthyl sulfure (D'après Smet et al., 1999)				•		

Tableau 4 : Production de COV, H_2S et NH_3 suivant différents traitements biologiques

Il est intéressant de noter, pour le TBA, que le 2-propanol, l'éthanol, l'acétone, le limonène et l'acétate d'éthyle représentent 82 % des émissions totales de COV et qu'une très faible quantité d'hydrocarbures aliphatiques et aromatiques ont été émis (< 3 mg.t_{déchet entrant}⁻¹). L'auteur précise que les hydrocarbures proviennent principalement de l'air ambiant servant à aérer les déchets. Les déchets utilisés pour cette étude étant principalement des biodéchets, le risque de contamination par ce type de composés est moindre.

La composition initiale du déchet en terpènes a été mesurée par distillation à la vapeur suivie d'une extraction par solvant. Cette analyse révèle une teneur en terpènes des biodéchets de 199 g.t⁻¹_{déchet humide}, dont 180 g.t⁻¹_{déchet humide} pour le limonène. Les flux de terpènes pour les deux lots montrent que seulement 41 % des terpènes contenus dans le déchet ont été émis durant le TBA. Ceci indique soit une volatilisation incomplète des composés volatils et leur rétention sur la matrice solide, soit une dégradation de ces composés par voie biologique.

Les deux procédés biologiques ayant atteint les mêmes degrés de stabilité biologique, il est possible de comparer les émissions totales de COV avec les volumes de gaz qui ont transité au travers du déchet (cf. Tableau 4). Ceci permet de mettre en évidence l'importance du phénomène de « stripping » (entraînement mécanique des composés volatils par le flux de gaz) dans le processus d'émissions des COV étant donnée la différence significative des volumes gazeux mis en jeu (respectivement 5234 et 1265 Nm³.t⁻¹_{déchet entrant}).

L'absence d'émissions d' H_2S au cours des deux périodes de compostage est en accord avec la prédominance de conditions oxydantes pour ce procédé mais contredit la formation de DMS durant le traitement biologique aérobie.

IV.2.1.2 : Etudes sur des unités de PTB

Fricke et al. (1997) ont suivi les émissions gazeuses brutes (avant traitement) d'un prétraitement biologique de déchets ménagers. L'air insufflé durant les 4 semaines de fermentation intensive correspond à 5000 Nm^3 .t⁻¹ de déchet dont 3000 Nm^3 .t⁻¹ pour les 2 premières semaines. Les flux de polluants mesurés sont reportés dans le Tableau 5.

Les émissions de PCDD/F ont été estimées à 1,4 ng.t⁻¹ de déchets entrants dans le prétraitement biologique. Les auteurs précisent par ailleurs que, quels que soient les composés, environ 95 % des émissions ont eu lieu pendant les 14 premiers jours de traitement. Ceci confirme les études conduites sur le compostage.

PTB Allemagne, 4 semaines intensives			
Gaz brutes avant traiten	nent, Fricke et al., 1997		
Composés Flux en g.t _{DETB} ⁻¹			
NH ₃	172		
COV	236		
Toluène	4,6		
Xylènes (m, p, o)	13,7		
Limonène	49,4		
Pinène ($\alpha \& \beta$)	16,4		
Acétone 24,0			
2-butanone	23,8		
Acétate d'éthyl	18,2		
Décane	24,1		
Acétaldéhyde	1,1		

Tableau 5 : Flux de COV émis par une unité de PTB en Allemagne

Différentes études autrichiennes visant à évaluer les flux de polluants de trois installations de PTB ont été conduites (Angerer et al., 1998, 1999a, 1999b). Les détails des installations n'étant pas fournis, il est difficile d'exploiter ces données. Un résumé des trois études montrant les ordres de grandeur des flux de polluants est donné dans le Tableau 6.

Usines de Kurfstein, Siggerwiesen et Allerheiligen (Angerer et al., 1998, 1999a, 1999b)			
Composés	Flux en g.t _{DETB} ⁻¹		
NH ₃	183 - 546		
COV			
Toluène	0,5 - 8,3		
Xylènes (m, p, o)	1,5 – 12,5		
Limonène	19,9 – 130,0		
Pinène (α, β)	2,7 - 15,9		
Acétone 6,8 -160,0			
2-butanone 1,3 – 190,0			
Acétate d'éthyle	1,2 -10,7		
Décane	1,1-8,9		
Acétaldéhyde 7,2 – 145,2			

Tableau 6 : Flux de COV émis par différentes unités de PTB en Autriche

Le travail de thèse de Cuhls (2001) concerne la caractérisation des émissions gazeuses du traitement biologique du déchet. L'auteur a étudié 4 unités de PTB allemandes : Bassum, Friesland, Lüneburg et Horm. Le Tableau 7 résume les caractéristiques des étapes de la phase intensive des 4 unités et leurs émissions associées. Les flux de polluants sont rapportés à la tonne de déchets entrants le traitement biologique (DETB), en amont du traitement par laveur et biofiltre sauf pour le N₂O qui a aussi été mesuré en aval du biofiltre.

Unités	Bassum	Friesland	Lüneburg	Horm
Capacité totale (t.an ⁻¹)	75 000	45 000	83 000	150 000
Granolumétrie	< 80 mm	< 120 mm	< 100 mm	< 80 mm
Procédé	Hall avec	retourneur aut	omatique	Tunnel
Durée (semaines)	8	2	15-16	1
Aération (Nm ³ .t _{DETB} ⁻¹)	14 - 25 000	15 - 28 000	20 - 32 000	1 100 - 1 200
CO_2 (kg.t _{DETB} ⁻¹)	110 - 120	100 - 105	185	12
NMOC (g C.t _{DETB} ⁻¹)	590 - 720	500 - 700	704 - 880	266 - 360
$CH_4 (g.t_{DETB}^{-1})$	1 200	400	12 000	6
$N_2O (g.t_{DETB}^{-1})$	19 (110*)	17 (500*)	400 (745*)	1,5 (6*)
\mathbf{NH}_{3} (g.t _{DETB} ⁻¹)	300 - 1 300	180 - 1 100	400 - 1 600	6 - 42

* flux mesuré en aval du biofiltre

(D'après CUHLS, 2001)

Tableau 7 : Caractéristiques et flux émissifs de 4 unités de PTB en Allemagne

Il faut noter que la durée de traitement et l'aération varient de manière importante d'une installation à l'autre. Les chiffres concernant l'unité de Horm sont donnés à titre indicatif et apportent un éclairage intéressant sur la cinétique des émissions mais doivent être considérés avec précaution puisque les performances de stabilisation biologique, liées à la faible durée de traitement (1 semaine), ne sont pas comparables avec les autres unités. Les flux de CO_2 émis traduisent l'ampleur de la dégradation biologique. Assez logiquement, les flux de CO_2 vont croissant avec la durée de traitement biologique. Les flux de méthane varient de plusieurs ordres de grandeur suivant les unités et il semble que plus le traitement est long, plus la quantité de méthane produite est importante. La formation importante de méthane relevée sur l'installation de Lüneburg révèle la présence de microzones anaérobies dues à une aération insuffisante. Les données provenant de cette installation reflètent les performances de l'usine juste après sa réception et avant l'optimisation du procédé (augmentation de l'aération et de la fréquence des retournements). Elles permettent de mettre en évidence l'importance de la gestion du procédé dans le processus d'émission gazeuse.

Etant donnée la configuration de la gestion des effluents gazeux de l'usine, les données de l'unité de Friesland correspondent à la fois aux émissions de la partie biologique et à celles du traitement mécanique des déchets. L'auteur souligne que le traitement mécanique (trommel et broyage) représente 4 % des émissions gazeuses totales. Par ailleurs, pour cette unité qui fonctionne avec deux régimes d'aération: une aération nocturne faible et une aération diurne élevée (valeurs non précisées), il est intéressant de noter la charge polluante des émissions plus élevée en journée (100 - 130 mg C.Nm⁻³) par rapport à celles la nuit (60 - 80 mg C.Nm⁻³). L'augmentation du débit d'aération, au lieu de diluer les émissions, favorise le phénomène de stripping des composés retenus dans le déchet. Fricke et al. (1997) ont montré que la majeure partie de la dégradation biologique se produit durant les 2 premières semaines de traitement ; c'est aussi lors de cette période que 95 % des NMOC et une grande partie de l'ammoniac sont émis. Les semaines supplémentaires n'ont, au niveau de la dégradation biologique, qu'une efficacité limitée

(décroissance exponentielle de la réactivité biologique du déchet) et favorisent l'émission de méthane. Elles sont néanmoins nécessaires pour atteindre les seuils de stabilité de la réglementation allemande ou autrichienne.

Il est possible à partir de ces données d'exprimer des flux gazeux de carbone et d'azote. La composition initiale du déchet n'étant pas indiquée, il n'est pas possible de rationaliser ces flux au carbone organique ou à l'azote initial. Les flux totaux de carbone et d'azote gazeux sont donnés au Tableau 8.

Unités	Bassum	Friesland	Lüneburg	Horm
Flux total de carbone (gazeux) (kg C.t _{DETB} ⁻¹)	32,9	28,9	60,2	9,3
Fraction émise sous forme de : C-CO ₂ C-CH ₄ (%) C-NMOC	95,3 2,7 2,0	96,8 1,0 2,2	83,7 14,9 1,4	96,6 0,1 3,3
Flux total d'azote (gazeux) (g N.t _{DETB} ⁻¹)	670,9	537,9	1078,1	20,7
Fraction émise sous forme de : N-N ₂ O N-NH ₃ (%)	1,8 98,2	2,0 98,0	23,6 76,4	4,6 95,4

(Daprès CUHLS, 2001)

Tableau 8 : Flux de carbone et d'azote par voie gazeuse

L'extrapolation de ces données est délicate puisque peu d'informations sont fournies au sujet des niveaux de stabilité biologique du produit atteint par les différentes unités. De plus, les phases intensives des installations de Friesland et Horm sont suivies de phases de maturation plus ou moins longues (15 - 30 semaines pour Friesland) qui ne sont pas prises en compte dans les flux d'émissions. Il est donc difficile de comparer les unités entre elles. De la même manière, il convient de rappeler que les unités autrichiennes et allemandes ne traitent que la fraction fine des ordures ménagères, puisqu'ils sont contraints par la réglementation de valoriser thermiquement la fraction grossière. C'est une fraction importante en terme de contamination par des COV liés à l'activité humaine qui est déviée du traitement biologique (Cf. III.3).

Le traitement des effluents gazeux des unités de traitement biologique par biofiltration nécessite un abattement préalable de l'ammoniac afin d'éviter la production de N_2O . Celle-ci est due à la nitrification incomplète du NH_3 à cause principalement d'un temps de séjour trop faible du gaz dans le biofiltre. Cuhls (2001) a montré un doublement des concentrations de N_2O dans les effluents après leur passage sur un biofiltre en l'absence d'un lavage acide de l'ammoniac en amont.

Une comparaison des émissions de CO_2 , CH_4 et N_2O en fonction du produit entrant en traitement biologique aérobie est donnée dans le Tableau 9.

Les ordures ménagères présentent l'émission de CO_2 la plus faible du fait de leur plus faible teneur en carbone biodégradable. Les émissions de CH_4 et de N_2O sont du même ordre de grandeur quel que soit le produit considéré. Les émissions de CH_4 suivent celles de N_2O , ainsi, une aération optimisée lors du traitement biologique aura pour effet de diminuer à la fois les émissions de CH_4 et de N_2O .

Produits	$C-CO_2$ (kg. t_{DE}^{-1})	$C-CH_4 (g.t_{DE}^{-1})$	$N-N_2O$ (g.t _{DE} ⁻¹)
Ordures ménagères	4 - 57	5 - 8620	1 - 241
Biodéchets	59 - 167	45 - 3766	1 - 29
Déchets verts	236	5068	54
])	D'après CLEMENS, 2003)

Tableau 9 : Flux gazeux de carbone et d'azote en fonction du type de déchet

IV.2.2 : Emissions d'odeurs

Les émissions de COV odorants par les unités de traitement biologique de déchet entraînent des nuisances olfactives qui peuvent être importantes si elles ne sont pas contrôlées. La réglementation allemande a prévu dans ce sens une limitation des émissions d'odeurs à 500 UO/Nm³ pour les unités de PTB. En France, la réglementation pour les usines de compostage fixe des valeurs de débit d'odeurs pour les émissions canalisées et des limites de concentrations d'odeurs en fonction de l'éloignement du premier tiers (Arrêté du 7 janvier 2002, ICPE n°2170).

Binner et al. (2003) ont montré que la température influençait positivement l'émission d'odeurs en favorisant la volatilisation des composés odorants. Le pH, lorsqu'il devient basique, permet un transfert de l'ammoniac dans la phase gazeuse. Le NH₃ joue un rôle prépondérant dans la puissance olfactive des effluents de traitement biologique. D'après Cuhls (2001), les émissions d'odeurs sont dues, dans un premier temps (2 premières semaines), à l'émission de COV odorants dont la volatilisation est favorisée par la montée en température des premiers jours. Puis, lorsque le milieu a perdu son acidité, c'est le NH₃ qui devient le principal responsable des odeurs.

Leikam et al. (1995) ont montré une nette décroissance de la concentration d'odeurs en fonction de la durée de traitement biologique d'une ordure ménagère criblée à 80 mm, traitée en container. La concentration d'odeurs passe par un maximum au 10^{ème} jour (environ 5000 UO.Nm⁻³) avant de décroître linéairement pour atteindre des concentrations inférieures à 100 UO.Nm⁻³ après 90 jours.

Aucune donnée de flux d'odeurs n'a été identifiée dans la littérature.

IV.2.3 : Emissions liquides

Les unités de traitement biologique aérobie sont réputées pour être sans rejet liquide. En effet, le jus produit durant le traitement biologique est réutilisé dans le procédé pour humidifier le déchet. L'eau qui est produite par voie biologique est principalement évacuée par voie gazeuse. La production de jus due à la percolation des eaux pluviales au travers du déchet est donc évitée. Peu de données sur les émissions liquides du PTB sont disponibles. Les études effectuées en laboratoire ne favorisent pas non plus la production de jus du fait de la taille des pilotes et de leur configuration qui favorisent l'évaporation et donc l'assèchement du déchet. Quelques données concernant le compostage de différents produits sont néanmoins disponibles.

Type de procédé	Production de jus de compost (en L.t ⁻¹ _{déchet entrant})	
Procédé extensif (andain en aération passive)	14 - 60	
Procédé en tunnel rotatif : aération passive aération forcée	48 - 63 44 - 56	
Procédé en tunnel (aération active)	100 - 200 (susceptible d'être recirculé)	

Le Tableau 10 présente les volumes de jus produits en fonction du type de procédé de compostage.

(D'après CIWM, 2003)

Tableau 10 : Production de jus en fonction du type de procédé de compostage

Le suivi de la composition chimique du déchet apporte des informations sur son potentiel de lixiviation. Zach et al. (1999, 2000) ont montré une diminution de 85 % de la teneur en azote ammoniacal dans les éluats de lixiviation des déchets et une remontée significative du pH qui atteint 8,2 après 8 semaines de traitement biologique. Dans le même temps, la DCO et la DBO₅ des éluats baissent respectivement de 85 et 99 %, indiquant un net abattement de la charge polluante organique. Le rapport DBO₅/DCO, qui passe de 0,64 à 0,06, montre que la pollution carbonée est de moins en moins facilement biodégradable. Cette baisse met en évidence le phénomène d'humification de la matière organique.

IV.3 : Caractérisation des émissions de polluants liées au stockage des déchets

La dégradation de la matière organique en condition anaérobie entraîne la production de biogaz au cours de la période nommée « phase active » de la décharge. Comme il a été montré au paragraphe I.2, l'évolution de la composition du biogaz pour un déchet de type ordure ménagère brute, peut se décomposer en 5 phases (Cf. Tableau 11). Ces 5 phases ne sont cependant pas représentatives d'un déchet ayant subi un prétraitement ou faisant l'objet d'une recirculation de lixiviat. Il en va de même pour le lixiviat dont la composition et les flux seront grandement affectés par le type de déchet et le mode d'opération du centre de stockage.

Ce paragraphe a pour but de dresser un bilan des données liées à la composition des effluents et aux flux de polluants associés au stockage des ordures ménagères en condition anaérobie ainsi que leur modification éventuelle suivant les deux scénarii de traitement étudiés (filière PTB ou Bioréacteur).

IV.3.1 : Emissions gazeuses

IV.3.1.1 : Potentiel de formation de méthane et cinétique de production

De nombreuses études se sont attachées à caractériser le biogaz de décharge, notamment sa composition en CH_4 , CO_2 , O_2 , N_2 et la teneur en éléments traces. Les 5 phases qui marquent l'évolution de la composition du biogaz sont résumées dans le Tableau 11.

Phase	Âge du	Composition du biogaz en %			
Thase	déchet	CH_4	CO ₂	O ₂	N ₂
I	0 - 1 ans	< 1%	0 - 20 %	21-0 %	79 - 60 %
II	0,5 - 3 ans	1 - 5 %	20 - 80 %	< 1 %	60 - 0 %
III	2 - 5 ans	5 - 55 %	80 - 45 %	< 1 %	< 1 %
IV	3 - 40 ans	55 - 65%	45 - 35 %	< 1 %	< 1 %
V	30 - 50 ans	55 - 0 %	50 - 0 %	1 - 21 %	1 - 79 %

(d'après Farquhar et al., 1973)

La mise en place de la méthanogénèse peut être relativement longue dans un centre de stockage conventionnel. Cette phase de latence est le terrain de nombreuses interactions chimiques et biologiques qui mettent en jeu des microorganismes aérobies et anaérobies facultatifs, ainsi que des inhibiteurs potentiels (cf. paragraphe I.2). Une fois cette phase de latence terminée, la production de biogaz suit une cinétique propre à chaque site qui dépend principalement de la composition du déchet (Willumsen, 1996).

Les études expérimentales permettent l'estimation du potentiel de production de biogaz dans des conditions d'incubation optimisées. Harries et al. (2001a, 2001b) ont rapporté des taux de production de méthane pour les ordures ménagères de 85 à 125 Nm³ CH₄.t⁻¹_{MS}, avec des disparités entre les différentes fractions biodégradables : de 127 à 167 Nm³ CH₄.t⁻¹_{MS} pour les papiers, 209 Nm³ CH₄.t⁻¹_{MS} pour les cartons, 94 à 142 Nm³ CH₄.t⁻¹_{MS} pour les textiles/textiles sanitaire, 28 Nm³ CH₄.t⁻¹_{MS} pour le bois et 16 à 94 Nm³ CH₄.t⁻¹_{MS} pour les déchets putrescibles. Une étude similaire menée par Eleazer et al. (1997) a montré des taux de production de méthane très supérieurs pour les déchets de cuisine (290,1 Nm³ CH₄.t⁻¹_{MS}) alors que l'ordure ménagère étudiée par les auteurs a produit 87,9 Nm³ CH₄.t⁻¹_{MS}. La différence pour les déchets de cuisine et de jardin met en évidence l'importance des conditions expérimentales pour ce type de test qui n'est pas normalisé.

De nombreux modèles mathématiques permettent la prédiction de la production de biogaz. Parmi les plus reconnus, celui de El-Fadel et al. (1996) a pour but d'estimer la production de biogaz à partir des taux de dégradation des différents constituants du déchet.

Sur les sites, la production de biogaz se répartit entre le biogaz réellement capté, le biogaz perdu par les émissions diffuses et celui oxydé dans la couverture (Bogner, 2003). Le biogaz capté contient souvent une part d'air qui vient diluer les deux principaux produits de la dégradation de la matière organique : le CO_2 et le CH_4 .

Selon la DEFRA (2004), le taux de production de biogaz d'une ordure ménagère est en moyenne de 200 (\pm 74) Nm³.t_{déchet enfouis}⁻¹. Cette valeur varie beaucoup suivant les sites et les déchets. La moyenne des taux de production de biogaz par les décharges en Grande-Bretagne, par exemple, est de 222 Nm³.t_{déchet enfouis}⁻¹ (DEFRA, 2004), la proportion de méthane n'étant pas précisée.

La cinétique de production du biogaz est un paramètre fondamental qui permet de déterminer le temps nécessaire à la stabilisation biologique du déchet mis en décharge. Pour la détermination des cinétiques de dégradation in situ des déchets, les études de laboratoire n'apportent qu'une information limitée car il est presque impossible de recréer les conditions représentatives d'une décharge qui détermineront à quelle vitesse la biodégradation va avoir lieu. Ces conditions sont en outre caractéristiques à chaque site, voir même à chaque casier de chaque centre de stockage. En général, plus l'échelle est petite, plus les cinétiques de dégradation sont importantes. Dans ce cas, l'échelle du milieu réactif est un facteur limitant pour la représentativité des cinétiques de biodégradation rencontrées sur un site réel.

Là encore, des modèles mathématiques ont été développés afin de prédire à quelle vitesse va se dérouler la dégradation biologique. Des modèles du 1^{er} ordre ont vu le jour au début des années 80, ils font l'hypothèse d'une décroissance exponentielle de la quantité de substrat biodégradable en fonction du temps. Le volume de biogaz produit en fonction du temps P(t) (Nm₃.(t.j)⁻¹) est alors égal à $P_{MAX}(1-e^{-kt})$ avec P_{MAX} le potentiel maximal de production de biogaz (Nm³.t⁻¹) et k la constante cinétique (j⁻¹). Plus tard, d'autres modèles plus élaborés ont fait leur apparition comme le modèle de la Solid Waste Association of North America (SWANA), qui prend en compte la phase de latence et deux étapes de croissance et de décroissance de la production de biogaz. D'après Ogor et al. (2005), le temps de demi vie, qui correspond au temps au bout duquel la moitié du potentiel de biogaz a été produit, varie suivant les modèles de 7 à 17 années. L'étude de 6 modèles de prédiction de biogaz effectuée par Scharff et al. (2005) confirment la variabilité des résultats selon les modèles, qui, selon les auteurs, ne constituent pas un outil robuste pour la prédiction des émissions de méthane.

Les taux de production de 86 sites ont été rassemblés par Willumsen (1996). Ils varient entre 0,5 et 10 $\text{Nm}^3 \text{CH}_4.(\text{t.an})^{-1}$ avec une moyenne à environ 2,5 $\text{Nm}^3 \text{CH}_4.(\text{t.an})^{-1}$.

IV.3.1.2 : Effet du Bioréacteur sur la production de biogaz

La recirculation de lixiviat, en augmentant et homogénéisant l'humidité au sein du massif de déchet, accélère la biodégradation de la matière organique (Reinhart et al., 1996; Yuen, 1999). La production de biogaz et de méthane est de ce fait plus rapide, réduisant ainsi la période active de la décharge. L'homogénéisation de l'humidité du massif permet d'éviter les zones « sèches » ou présentant une carence en humidité qui sont peu favorables au développement de l'activité méthanogène. La recirculation de lixiviat permet la dégradation de fractions telles que les papiers/cartons qui, sans apport d'humidité peuvent rester en l'état dans une décharge pendant de nombreuses années (Reinhart et al., 1998). De plus, la recirculation donne une « seconde chance » aux microorganismes pour minéraliser complètement la matière organique biodégradable qui a été lessivée, surtout lors des phases d'hydrolyse et d'acidogénèse lorsque la DBO du lixiviat est importante. Watson-Craik et al. (1989) ont montré qu'il était possible en

recirculant le lixiviat de convertir en méthane une quantité importante de phénol présent dans les lixiviats (188 mg.l⁻¹). Cependant, certains auteurs mettent en évidence un risque d'inhibition de l'activité microbiologique lors de la recirculation de lixiviats chargés, notamment du fait de la forte concentration en AGV (Kinman et al., 1987 ; Purcell et al., 1997 ; Bouchez et al., 2001).

Chugh et al. (1998) ont montré une amélioration de la production et de la qualité du biogaz avec des taux de recirculation variant de 20 à 300 L.Nm⁻³_{déchet enfouis}. A l'échelle d'un site industriel, le Bioréacteur expérimental de Yolo County est l'exemple le plus robuste de l'augmentation de la production de biogaz (Augenstein et al., 2005). Neuf années d'expérimentation sur 2 cellules de 9 150 tonnes chacune, une cellule témoin et une ayant subi une recirculation cumulée d'environ 9 m³.t_{déchet enfouis}⁻¹, ont montré un doublement de la production de biogaz de la cellule Bioréacteur par rapport au Témoin. Il semble que la recirculation de lixiviat doit atteindre ce taux élevé pour être réellement efficace et produire des effets observables à l'échelle d'un site (Benson et al., 2005).

Barlaz et al. (2002) donnent à titre d'exemple la simulation de deux scénarii de production de biogaz d'une décharge qui a reçu 286 000 tonnes de déchet par an pendant 20 ans avec et sans recirculation de lixiviat effectuée à l'aide du modèle de l'EPA américaine.



(d'après Barlaz et al., 2002)

Figure 7 : Simulation de l'effet de la recirculation de lixiviat sur la production de méthane

Il est intéressant de noter que, dans un laps de temps de 30 ans après la fin d'exploitation de la décharge (t=50 ans), le déchet avec recirculation ne présente plus qu'une production de biogaz résiduelle alors que le déchet sans recirculation n'atteint ce niveau que 50 ans plus tard. Même si des études à l'échelle de laboratoire ont pu le démontrer expérimentalement, les résultats à l'échelle d'un site ne sont pas tous concluants, principalement du fait de la difficulté liée à l'échelle (cf. II.2), la difficulté d'effectuer un suivi correct et suffisamment long d'une cellule de stockage et à cause de l'absence, dans bien des cas, d'une cellule Témoin qui permette la comparaison des productions de biogaz (Benson et al., 2005).

IV.3.1.3 : Effet du prétraitement biologique sur la production de biogaz

Un des objectifs du prétraitement biologique avant enfouissement est de diminuer la matière organique biodégradable mise en décharge. Leikam et al. (1997) ont montré qu'il était possible de réduire de plus de 90 % le potentiel de biogaz des déchets avec un prétraitement biologique aérobie de 16 semaines, résultant en un potentiel méthanogène résiduel de 20 Nm³.t⁻¹_{MS}. L'expérience a été conduite sur la fraction fine d'un déchet tamisé à 80 mm. De nombreuses études ont montré des résultats analogues (Zach et al., 1999, 2000; Binner et al., 1999, 2002; Jokela et al., 2002).

En plus du potentiel total de biogaz, le prétraitement biologique modifie radicalement l'établissement de la méthanogénèse et la cinétique de production de biogaz résiduel. En effet, comme le montrent Bockreis et al. (2003), le traitement biologique prépare le déchet idéalement pour une mise en place rapide de la méthanogénèse, quasi instantanément après la mise en conditions anaérobies dans le cas d'expérimentations en lysimètres de laboratoire. Komilis et al. (1999) précisent que la matière organique facilement biológique aérobie. De plus, la matière organique plus récalcitrante est rendue disponible pour les microorganismes méthanogènes. Les phases initiales d'hydrolyse et d'acidogénèse sont absentes du processus biologique, ce qui explique l'apparition très précoce de la production de méthane. Bockreis et al. (2003) ont mis en évidence des ratios CH_4/CO_2 supérieurs à 5 (jusqu'à 45) pour un déchet prétraité sans pour autant pouvoir expliquer cette teneur en méthane. Les auteurs mettent en évidence une première phase durant laquelle le biogaz est très riche en méthane (ratio CH_4/CO_2 important) avant de se stabiliser à une teneur constante (ratio CH_4/CO_2 environ égal à 50-60 % de son maximum).

Tout comme le potentiel méthanogène, les cinétiques de production de biogaz matérialisées par les taux de production annuels sont réduites. Le Tableau 12 montre les taux de production annuelle durant les deux premières années de différents déchets prétraités ainsi que d'un déchet brut (Bockreis et al., 2004). Le biogaz potentiel résiduel peut être produit en 3 à 5 ans après la mise en décharge suivant le déchet et sa stabilité biologique.

Taux de production annuel de biogaz (m³.(t.an) ⁻¹)	Déchet Brut	Déchets prétraités
1 ^{ère} année	27	1 ⁻ 15
2 ^{ème} année	11	2 - 5
(D'après Bockreis et al., 2004)		

Tableau 12 : Comparaison des taux de production annuels de biogaz suivant le déchet

Malgré une réduction du potentiel global de production de biogaz de l'ordre de 95 %, le temps de demi-vie du déchet prétraité peut se trouver allongé d'un facteur 2 à 3 ($T_{1/2vie} \approx$ 20-40 ans) (Doedens et al., 2000).

IV.3.1.4 : Composition du biogaz en éléments traces et flux de polluants associés

Parker et al. (2002) ont recensé à travers la littérature plus de 500 composés organiques volatils dans le biogaz de décharge. Les auteurs ont construit à partir de ces composés

deux listes de composés prioritaires suivant leur pertinence en terme de toxicité ou selon leur potentiel à participer à l'odeur du biogaz. Ces deux listes ont été établies à partir de la toxicité intrinsèque ou du seuil de détection olfactive de chaque composé mais aussi selon leur probabilité d'apparition dans le biogaz et leur mobilité potentielle (pression de vapeur saturante et constante d'Henry). Les auteurs déplorent que de nombreuses données physico-chimiques manquent pour établir sérieusement ces deux listes. Les investigations ont abouti aux deux listes présentées dans le Tableau 13.

Il est intéressant de noter que, parmi les 12 composés odorants majoritaires, 6 sont de la famille des soufrés, surtout à cause de leur faible seuil olfactif. L'H₂S et le CS₂, en plus d'être de puissants odorants, font partie des 20 composés les plus toxiques (respectivement $16^{\text{ème}}$ et $17^{\text{ème}}$). Ce sont les composés chlorés qui dominent la liste des COV les plus toxiques avec 7 espèces prioritaires sur les 12 premiers composés. Deux composés gazeux inorganiques, l'arsenic et le mercure, ont leur place dans ce classement mais ont été enlevés pour ne conserver que les 12 composés organiques les plus toxiques.

Composés odorants majoritaires		Composés toxiques majoritaires	
(Les composés sont donnés par ordre décroissant de leur importance)			
Nom	Formule	Nom	Formule
Hydrogène sulfuré	H₂S	Benzène	C ₆ H ₆
Méthanethiol	CH₃SH	Chloroéthane	C₂H₅Cl
Disulfure de carbone	CS ₂	Chloroéthène	C ₂ H ₃ Cl
1-propanethiol	C ₃ H ₇ SH	2-butoxy-éthanol	$C_6H_{14}O_2$
Acide butyrique	C ₃ H ₇ COOH	Formol	CH ₂ O
Disulfure de diméthyle	$S_2(CH_3)_2$	1,3-butadiène	C_4H_6
Acétaldéhyde	CH₃COH	1,1-dichloroéthane	$C_2H_4Cl_2$
Ethanethiol	C_2H_5SH	1,1-dichloroéthène	C_2H_2Cl
1-butanethiol	C₄H₀SH	Tétrachlorométhane	CCl₄
1-pentene	C_5H_{10}	Trichloréthylène	C_2HCl_3
Sulfure de diméthyle	S(CH ₃) ₂	Furane	C₄H₄O
Butyrate d'éthyle	$C_3H_7COOC_2H_5$	TCDD*	$C_{12}H_4Cl_4O_2$

*Tétrachlorodibenzodioxine

(d'après Parker et al., 2002)

Tableau 13 : Listes des COV odorants et toxiques majoritaires identifiés dans un biogaz

En plus de ces composés d'une importance particulière, il est possible de trouver dans le biogaz des composés appartenant à quasiment toutes les familles chimiques (alcools, acides organiques, cétones, esters, aldéhydes, furanes, dioxines, soufrés, halogénés, hydrocarbures aliphatiques, cycliques, aromatiques ou polycycliques, amines, terpènes, siloxanes). Le Tableau 14 résume les résultats des travaux majeurs effectués dans ce domaine. Les données de Allen et al. (1997) proviennent de l'étude de 7 décharges en Grande-Bretagne et sont comparées à des données d'autres études.

Familles chimiques	Allen et al. (1997)	Brookes et al. (1983)	Dent et al. (1986)	Parker et al. (2002)	
Concentration en mg.Nm ⁻³					
Alcanes	302 - 1543	619	0 - 1738	360 - 470	
Alcènes	-	-	-	9 - 10	
Cycloalcanes	80 - 487	49	0 - 56	80 - 170	
Terpènes	35 - 652	414	-	190 - 470	
Aromatiques	36 - 1906	117	0 - 553	430 - 940	
Alcools	0 - 1418	1052	0 - 5053	2 - 49	
Halogénés	264 - 1239	524	22 - 1342	50 - 510	

Tableau 14 : Comparaison des concentrations de COV dans le biogaz

Il est important de noter que la difficulté de l'étude des COV dans le biogaz réside dans les étapes de prélèvement et d'analyse de composés très variés au sein d'une matrice très complexe et peu propice à l'analyse de gaz. L'étude de Parker et al. (2002) est pour cette raison très instructive. Les auteurs ont en effet évalué 2 techniques de prélèvement de COV, toutes les deux couramment utilisées dans ce domaine : l'accumulation sur charbon actif et sur un adsorbant multicouche (Tenax - C 102 - CS III). Du fait de l'hétérogénéité des résultats obtenus avec les deux méthodes, les auteurs ont éliminé la méthode charbon actif en invoquant les difficultés analytiques et les caractéristiques intrinsèques des adsorbants pour expliquer les importantes différences observées entre les deux méthodes (les concentrations de charbon actif étaient supérieures d'un facteur 1000). Les données sur la composition du biogaz sont en quelque sorte dépendantes de la technique analytique utilisée.

Malgré tout, il est possible à partir de la littérature de dégager quelques grandes tendances. Le processus d'émission de COV est souvent divisé en trois phases qui suivent la progression de la dégradation du déchet (Knox, 1990) : la phase aérobie lorsque le déchet a été fraîchement enfoui, la seconde phase de méthanogénèse intense lorsque le taux de production de biogaz est important et la phase de décroissance quand la production de biogaz est résiduelle. Scott et al. (1988) ont montré qu'un déchet jeune présentait des concentrations en alcanes légers et en alcènes relativement importantes surtout lors de la phase aérobie. Les concentrations de nombreux composés sont maximales juste après la mise en décharge des déchets probablement à cause de leur volatilisation, parmi les prédominants, le toluène. La même observation a été faite pour les esters qui proviennent plus probablement de la réaction chimique d'estérification entre les alcools et les acides organiques présents dans le déchet jeune. Le nonane et le décane sont les principaux alcanes retrouvés dans le biogaz une fois la méthanogénèse bien engagée. Sur les trois sites étudiés par les auteurs, le limonène a été le composé le plus concentré dans les 3 biogaz étudiés.

De nombreuses études ont été effectuées sur des sites présentant des problèmes de nuisances olfactives ou de toxicité de l'ambiance de travail. Les concentrations élevées de mercaptans retrouvées aux limites d'un site à Athènes (Loizidou et al., 1992) ou la présence significative de chlorure de vinyle dans le biogaz d'une décharge du New Jersey (Distler et al., 1991) par exemple, ne sont pas représentatives de l'ensemble des sites.

Une grande partie de la composition du biogaz en éléments traces est déterminée par la présence ou non de déchets industriels mélangés aux déchets ménagers (déchets de démolition, déchets toxiques de l'artisanat), de la teneur en déchets ménagers spéciaux ou de la présence de déchets à teneur en matière organique biodégradable élevée (boues de station d'épuration, déchets verts ou biodéchets de collectivité) (Reinhart, 1993). La provenance des COV et les processus d'émissions dans le déchet ont été détaillés dans le chapitre III.

La plupart des études sur le terrain ont permis la détermination de compositions locales de biogaz, soit dans l'air ambiant d'un centre de stockage (Zou et al., 2003 ; Chiriac, 2004a), soit à la surface du déchet avec des chambres à flux (Bogner et al., 1997, Scheutz et al., 2003), soit au sein du massif à l'aide de cannes de prélèvement mais très peu ont abouti à l'établissement de flux de production de COV. Il est possible à partir des gammes de concentrations issues de la littérature (cf. Tableau 14) d'établir des gammes de flux de COV en considérant le potentiel total de biogaz moyen d'un déchet. Ce calcul est présenté dans le Tableau 15.

Potentiel de biogaz moyen	200 Nm ³ .t _{déchet enfouis} ⁻¹		
Familles de COV	Gamme de concentration	Flux calculé	
	(mg.nm)	(g. Cdéchet enfouis)	
Alcanes	302 - 1738	60 - 348	
Alcènes	9 - 10	2	
Cycloalcanes	49 - 487	10 - 97	
Terpènes	35 - 652	7 - 130	
Aromatiques	36 - 1906	9 - 381	
Alcools	2 - 5053	<1 - 1011	
Halogénés	22 - 1342	4 - 268	

Tableau 15 : Flux de COV calculés à partir de la littérature (par famille)

Les valeurs calculées sont très approximatives étant donné que les concentrations des différents composés dans le biogaz varient en fonction de l'âge du déchet. La valeur haute du flux d'alcools par exemple apparaît comme disproportionnée puisque les fortes concentrations en alcools surviennent dans les premiers temps de la dégradation alors que la production de biogaz n'est pas à son maximum (Scott et al., 1988). De la même manière et avec les mêmes limites, il est possible d'utiliser les données de Parker et al. (2002) pour calculer des flux émissifs des composés prioritaires à partir d'un potentiel de biogaz moyen. Les résultats sont présentés dans le Tableau 16.

L'enfouissement de déchets industriels tels que des solvants dans les anciennes décharges n'est pas rare et aboutit à des biogaz très chargés en composés halogénés (Parker et al., 2002).

Une étude de laboratoire a été menée par l'équipe de M. Barlaz (Université de caroline du Nord (Ihnatolya, 2002; Barlaz, 2004) sur des réacteurs anaérobies de 8 L remplis d'ordures ménagères ou de différentes fractions biodégradables. Les auteurs ont mesuré des flux de COV non méthaniques (NMOC) sans discrimination ni identification des COV. Les flux ont été de : 113, 38, 222 et 16 g $C.t^{-1}_{MS}$ respectivement pour une ordure ménagère brute, du déchet vert (branches et herbe), du déchet de cuisine et différents types de

papiers. Une expérience similaire a été réalisée par Thomas et al. (1999). Les auteurs ont mis en évidence des flux de NMOC variant de 76 à 105 g C.t⁻¹_{MS} pour une ordure ménagère synthétique sans déchets spéciaux.

Composés odorants et toxiques majoritaires (d'après Parker, 2002)				
Composés	Conc. Moy. (mg.Nm ⁻³)	Nbre de mesure	Flux calculé (g. t ^{·1} déchet enfouis)	
Potentiel de biogaz moyen : 200 Nm ³ .t ⁻¹ _{déchet enfouis} (d'après DEFRA, 2004)				
Méthanethiol	7,3	453	1,46	
Acide propionique	3,0	24	0,60	
Acide butyrique	2,3	26	0,46	
Acétaldéhyde	2,6	24	0,52	
1-Pentène	1,7	23	0,34	
Butyrate d'éthyle	32,1	26	6,42	
Propionate de propyle	10,2	20	2,04	
Cyclohexane	6,7	57	1,34	
Benzène	4,9	103	0,98	
Toluène	86,2	152	17,24	
Ethylbenzène	37,8	81	7,56	
Xylènes	23,9	169	4,78	
Triméthylbenzène	10,9	2	2,18	
Propyl-benzène	23,8	40	4,76	
n-Butane	67,4	70	13,48	
n-Hexane	19,8	75	3,96	
Chloroéthane	77,9	1408	15,58	
Chloroéthène	64,7	1418	12,94	
1,1-dichloroéthane	476,2	1418	95,24	
1,1-dichloroéthène	10,7	1389	2,14	
Tétrachlorométhane	5,3	71	1,06	
Trichloréthylène	11,3	1446	2,26	
Tétrachloréthylène	112,7	1456	22,54	
Chlorobenzène	246,6	1378	49,32	
Acétone	8,8	54	1,76	
2-Butanone	13,6	47	2,72	
Méthanol	9,7	22	1,94	
1-Propanol	9,1	16	1,82	

Tahleau 16 ·	Flux de COV	calculés à	nartir de la	littérature	(nar comnosé)
Tubleuu TO.		cultules u	purtir ue iu	<i>inclerature</i>	(pur compose)

IV.3.1.5 : Emissions de H₂S

La formation de H₂S dans les décharges d'ordures ménagères, qui est le fruit de l'action de bactéries sulfacto-réductrices, pose un véritable problème en terme de nuisance olfactive étant donné le très faible seuil olfactif de l'H₂S (0,5 ppb_v) (Ruth, 1986). Parker et al. (2002) avance une teneur moyenne en H₂S dans le biogaz de décharge de 134,2 mg.Nm⁻³ (88,6 ppm_v) sur un total de 1181 mesures. En appliquant le potentiel de biogaz moyen d'une ordure ménagère donné par la DEFRA (2004) (200 Nm³.t_{déchet enfouis}⁻¹), le flux de H₂S moyen obtenu serait d'environ 26,8 g H₂S.t_{déchet enfouis}⁻¹. La production de H₂S dépend très principalement de la quantité de soufre présent dans le déchet, sous forme de plâtre par exemple. Les études sont souvent menées dans un contexte de problèmes d'odeurs et ne

sont pas représentatives de l'ensemble des sites. De plus, elles s'intéressent principalement à la teneur en H_2S de l'air ambiant, à son émission diffuse au travers de la couverture finale et à sa dispersion en limite de site sans caractériser le réel flux de production du massif de déchet.

IV.3.1.6 : Influence de la recirculation de lixiviat sur l'émission des composés traces

A notre connaissance, aucune étude comparative n'a étudié l'influence de la gestion en mode Bioréacteur d'une décharge sur les émissions de COV. James et al. (1997) ont montré que les bassins de collecte de lixiviats étaient responsables d'une élévation significative des concentrations en COV dans l'air ambiant du site. Par analogie, la recirculation des lixiviats peut entraîner une volatilisation de composés organiques d'abord évacués du massif sous la forme de lixiviat puis réintroduit lors de la recirculation. En effet, le lixiviat concentre les composés les plus solubles (Karnik et al., 2001). Deipser et al. (1994) ont montré que les composés tels que les BTEX, l'hexane et un grand nombre de composés halogénés étaient présents dans le lixiviat surtout lors de la phase d'acidogénèse lorsque le pH est bas. Thiel (2005) a relevé une augmentation des problèmes d'odeur du fait de la recirculation de lixiviat pratiqué sur un site. Peu de données robustes viennent toutefois étoffer la relation directe entre recirculation et augmentation de la production d'odeur.

IV.3.1.7 : Influence du prétraitement biologique sur l'émission des composés traces

A l'image du Bioréacteur, aucune étude comparative n'a été menée afin de mettre en évidence l'influence du PTB sur les émissions de COV lors de la phase de stockage. En effet, les études sur l'enfouissement de déchets stabilisés se sont focalisées sur la production de biogaz (CH₄, CO₂), la charge des lixiviats et le comportement géomécanique des déchets. Cependant, la baisse de l'activité biologique (et de la production de MVOC associée) ainsi que la réduction du biogaz produit (gaz vecteur des émissions) laisse penser à une diminution significative des flux de COV. De plus, par analogie au traitement des sols pollués par venting ou bioventing, le déchet lors du traitement biologique est en quelque sorte « épuré » des composés organiques qui étaient présents au sein de sa matrice.

IV.3.2 : Emissions liquides

IV.3.2.1 : Composition du lixiviat en polluants et flux associés au stockage de déchets

Le contrôle de la quantité d'eau qui entre dans la décharge et qui percole au travers du déchet représente un des enjeux majeurs de la gestion des déchets en centre de stockage.

L'évolution de la qualité des lixiviats émis par un massif de déchet est représentative des processus microbiologiques au sein du massif lui-même (Hjelmar et al., 2000). Une partie de l'évolution de la composition du lixiviat suit l'évolution de la composition du biogaz décrite aux chapitres I.2 et IV.3.1.1. La Figure 8 représente l'évolution de la DCO, la DBO, les ammoniums, les chlorures et les métaux lourds en fonction des principales étapes de biodégradation du déchet.



(d'après Kjeldsen, 2002)

Figure 8 : Représentation de l'évolution des principaux constituants du lixiviat en fonction des étapes de la dégradation.

D'après Barlaz et al. (1993), la courte phase aérobie qui suit la mise en décharge est peu propice à la production de lixiviat, le déchet étant à cette période encore trop sec. Une fois l'oxygène consommé, le pH des lixiviats est influencé par l'activité de la flore acidogène qui, en produisant des acides organiques, fait baisser le pH durant les premiers temps d'enfouissement. Les lixiviats produits durant cette période présentent une DCO élevée (jusqu'à 100 g $O_2.L^{-1}$). La mise en place de la méthanogénèse implique une consommation croissante des acides et des matières organiques solubles. L'acidité du milieu, accentuée par la dissolution du CO_2 produit, entraîne une dissolution de constituants inorganiques. La formation de complexes entre les molécules organiques et inorganiques maintient une concentration en métaux élevée. A mesure de l'établissement d'une méthanogénèse stable, la charge organique des lixiviats diminue (COT ou DCO) (Ham 1982 ; Barlaz, 1989b). Durant la phase de méthanogénèse active, la DCO est composée à 60-90 % par les acides organiques.

La composition des lixiviats est très variable d'un site à l'autre (Halvadakis et al., 1983) du fait qu'un lixiviat est souvent la représentation de l'état microbiologique de différentes sections d'une décharge qui ne sont pas toutes au même état d'avancement. Ehrig (1988) a rassemblé les compositions de lixiviats d'une quinzaine de décharges allemandes à différents âges. Le Tableau 17 présente la composition moyenne des lixiviats et les différences observées suivant l'âge du déchet.
paramètres	Déchet	Déchet phase	Paramòtros	Quelque soit
	jeune	méthanogénèse	Faranieres	l'âge du déchet
			NH_4 (mg N.l ⁻¹)	30 - 3000
рН	4,5 - 7,5	7,5 - 9	NTK (mg N.l ⁻¹)	10 - 4250
$DBO_5 \ (mg\ O_2.l^{\text{-1}})$	4000 - 40000	20 - 550	$N_{total} \ (mg \ N.l^{-1})$	50 - 5000
DCO (mg $O_2.l^{-1}$)	6000 - 60000	500 - 4500	$NO_3 (mg N.l^{-1})$	0,1 - 50
$SO_4 (mg.l^{-1})$	70 - 1750	10 - 420	$NO_2 \ (mg \ N.l^{-1})$	0 - 25
Ca (mg.l ⁻¹)	10 - 2500	20 - 600	P_{total} (mg P.l ⁻¹)	0,1 - 30
Mg (mg.l ⁻¹)	50 - 1150	40 - 350	Cl (mg.l ⁻¹)	100 - 5000
Fe (mg.l ⁻¹)	20 - 2100	3 - 280	Na (mg.l ⁻¹)	50 - 4000
Mn (mg.l ⁻¹)	0,3 - 65	0,03 - 45	K (mg.l ⁻¹)	10 - 2500
Zn (mg.l ⁻¹)	0,1 - 120	0,03 - 4	Alc $(mg_{CaCO3}.l^{-1})$	300 - 11500
			AOX (mg Cl.l ⁻¹)	320 - 3500

(D'après Ehrig et al., 1988)

Tableau 17 : Composition des lixiviats de CSD d'OM en fonction de l'âge des déchets

Il est intéressant de noter que certains composés comme les chlorures ne sont pas affectés par les variations de pH, ce qui n'est pas le cas d'espèces comme le fer qui présentent une évolution marquée entre la phase acide et la méthanogénèse stable. L'acidification du milieu entraîne l'augmentation de la solubilité et de la mobilité des métaux.

La quantité de lixiviats produit dépend de l'humidité initiale du déchet, de la densité de placement qui détermine la capacité au champ que le déchet peut atteindre, la qualité de la couverture finale, la présence ou non de couverture intermédiaire ou temporaire lors de l'exploitation de la décharge, la surface d'exploitation exposée aux précipitations et surtout les taux de précipitations et d'évapotranspiration.

Le bilan hydrique d'une cellule de stockage peut être écrit comme suit (Circulaire n°1364 du 16 octobre 1984) :

Lixiviats = $P - ETR - Pertes + \Delta H - R$

Avec P les précipitations, ETR l'évapotranspiration à la surface de la cellule, ΔH la variation d'humidité du déchet, R le ruissellement et Pertes les pertes au travers des couches étanches (considérées comme négligeables).

Les données concernant la production de lixiviats sur différents sites en Europe ont été rassemblées par Hjelmar et al. (1994) et sont présentées dans le Tableau 18.

Pays	Précipitations	Volume de lixiviat	Références
Suède	-	10 - 40 mm.an ⁻¹	Nilsson (1993)
Danemark	71 4 mm an ⁻¹	350 mm.an ⁻¹ pendant l'exploitation	Hjelmar et al.
7 14 11111.dll	7 14 mm.an	75 mm.an ⁻¹ après couverture	(1988)
	(22	320 - 400 mm.an ⁻¹ pendant l'exploitation	Hjelmar
633 mm.an		56 - 89 mm.an ⁻¹ après couverture	(1989)
Allemagne	510 -1160	10 - 1160 25 - 340 mm an ⁻¹	
	mm.an ⁻¹		
Espagne	400 mm an ⁻¹	7 mm an ⁻¹ sur une période de 2 ans	Gössele et al.
400 min.an		initiality survive periode de 2 dis	(1993)
Italie -		92 mm an ⁻¹	Baldi et al.
		62 mm.an	(1993)
Grèce	387 mm.an ⁻¹	$40 - 60 \text{ mm an}^{-1}$	Kouzeli-Katsiri
			(1993)

1 mm.an⁻¹ = 10 m³.(ha.an)⁻¹; PE : précipitations efficaces

(D'après Hjelmar et al., 1994)

Tableau 18 : Caractérisation de la production de lixiviats en fonction des précipitations

Il est possible à partir de ce tableau d'effectuer un calcul afin de ramener la production de lixiviats à la tonne de déchets enfouis. En considérant une hauteur de déchet de 10 m avec une densité moyenne de placement de 0,9 et en négligeant la durée d'exploitation, une production moyenne de 7 - 90 mm.an⁻¹ est équivalente à 0,8 - 10 L.an⁻¹.t_{déchet enfouis}⁻¹.

L'absence de données quant au comportement à long terme des décharges empêchent d'établir des flux de polluants et oblige les auteurs à faire des hypothèses pour prévoir la durée et le déroulement de la période qui suit celle de production active de biogaz (Kjeldsen et al., 2002). D'après Hjelmar et al. (1994), un taux de lixiviation de 3 à 4 m³.t_{déchet enfouis}⁻¹ serait nécessaire pour atteindre des niveaux de charge polluante (DCO, COT, N_{total}) compatibles avec un rejet en milieu naturel. Les auteurs estiment que plusieurs dizaines d'années voire plusieurs centaines seraient donc nécessaires pour atteindre ces niveaux. Belivi et al. (1989), par exemple, estiment qu'il faudrait environ 80 ans pour atteindre des concentrations en azote ammoniacal inférieures à 5 mg.L⁻¹ et entre 500 et 1700 ans pour atteindre des concentrations en C_{organique} inférieures à 20 mg.L⁻¹. Le modèle employé par les auteurs est néanmoins très empirique et ne prend pas en compte les transformations biologiques, la variation du potentiel redox et la mobilisation des composés par sorption ou précipitation (Kjeldsen et al., 2002).

Une manière de prévoir le potentiel global de pollution par voie liquide est de pratiquer un test de lixiviation qui permette d'estimer la quantité totale de polluant lessivable sur la durée de vie d'une décharge. Cependant, ce test couramment pratiqué à un ratio liquide / solide (L/S) de 10 en test batch sur une durée de 24 h (norme NF 12457, 2002) ne doit être considéré que comme une surestimation du potentiel de polluant lessivable puisqu'il ne permet pas de prendre en compte la dégradation biologique et le changement des conditions de milieu au cours de la vie du déchet dans une décharge (François, 2004). De plus, l'utilisation d'eau favorise l'échange de polluants vers la phase liquide. François (2004) a d'ailleurs montré que la quantité de charge polluante relargable par un déchet est fonction de la composition de la phase liquide en contact avec celui-ci. A ce sujet, il est intéressant de noter que dans une alvéole, seuls les déchets de surface seront au contact de l'eau d'infiltration après la fermeture de l'alvéole et que les déchets des couches inférieures ne seront en contact qu'avec une eau déjà chargée, ceci jusqu'à ce que les couches supérieures soient totalement lessivées.

Globalement, peu de données robustes concernant les flux de polluants par voie liquide issus des centres de stockage ne sont disponibles dans la littérature, principalement du fait d'une méconnaissance du bilan hydrique d'une cellule de stockage sur l'ensemble de sa vie et surtout de la méconnaissance du comportement à la lixiviation à long terme des déchets.

IV.3.2.2 : Influence de la recirculation sur la qualité des lixiviats.

La recirculation des lixiviats issus de la même cellule de stockage permet la réintroduction dans le système des composés qui ont été lessivés. Pour les composés biodégradables, c'est une « seconde chance » pour être dégradés par les microorganismes.

Phases de biodégradation	Transition	Acidogénèse	Méthanogénèse	Maturation
Avec recirculation				
DBO (mg O_2 .l ⁻¹)	0 - 6893	0 - 28000	100 - 10000	100
DCO (mg $O_2.l^{-1}$)	20 - 20000	11600 - 34550	1800 - 17000	770 - 1000
Acides volatils (mg acétique.l ⁻¹)	200 - 2700	1 - 30730	0 - 3900	-
DBO/DCO	0,1 - 0,98	0,45 - 0,95	0,05 - 0,8	1,05 - 0,08
NH₄ (mg N.l ⁻¹)	76 - 125	0 - 1800	32 - 1850	420 - 580
рН	5,4 - 8,1	5,7 - 7,4	5,9 - 8,6	7,4 - 8,3
Conductivité (µmhos.cm ⁻¹)	2200 - 8000	10000 - 18000	4200 - 16000	-
Sans récirculation				
DBO (mg O_2 .l ⁻¹)	100 - 10000	1000 - 57000	600 - 3400	4 - 120
DCO (mg O_2 .l ⁻¹)	480 - 18000	1500 - 71000	580 - 9760	31 - 900
Acides volatils (mg acétique.l ⁻¹)	100 - 3000	3000 - 18800	250 - 4000	0
DBO/DCO	0,23 - 0,87	0,4 - 0,8	0,17 - 0,64	0,02 - 0,13
$NH_4 (mg N.l^{-1})$	120 - 125	2 - 1030	6 -430	6 - 430
рН	6,7	4,7 - 7,7	6,3 - 8,8	7,1 - 8,8
Conductivité (µmhos.cm ⁻¹)	2450 - 3310	1600 - 17100	2900 - 7700	1400 - 45000

(D'après Reinhart, 1998)

Tableau 19 : Composition du lixiviat en fonction du degré de stabilisation du déchet

Ainsi, la recirculation de lixiviats avec une DBO élevée s'apparente à un traitement in situ de la pollution lessivée. Pour les composés non biodégradables, soit ils sont réadsorbés sur la matrice solide (effet de fixation), soit ils suivent l'écoulement pour ressortir du massif dans un temps plus ou moins long (effet conservatif ou accumulatif). La recirculation entraîne une augmentation du flux de liquide qui transite au travers du

déchet et améliore le lessivage physique du massif de déchet. Cependant, la composition des lixiviats peut jouer un rôle important dans l'établissement des équilibres entre la matrice solide et le lixiviat et ainsi limiter les quantités de substances lessivées.

Reinhart et al. (1998) ont rassemblé les caractéristiques des lixiviats suivant les différentes phases de biodégradation pour les décharges conventionnelles et celles pratiquant la recirculation (cf. Tableau 19).

Ces auteurs montrent que la recirculation ne change pas fondamentalement les caractéristiques du lixiviat suivant les différentes étapes de dégradation. Ces données mettent en évidence le meilleur lessivage des acides organiques durant la phase d'acidogénèse grâce à la recirculation qui peut permettre d'éviter le blocage de l'activité biologique à cause de l'accumulation de ces composés au sein des pores du déchet.

De plus, la recirculation permet d'accélérer la baisse de la teneur en matière organique des lixiviats. Reinhart (1995) a calculé un temps de demie vie pour la DCO (période au bout de laquelle la moitié de la DCO a été abattue) respectivement de 10 ans pour une décharge Conventionnelle et de 230 - 380 jours pour une décharge Bioréacteur. La recirculation de lixiviat peut entraîner l'accumulation progressive de polluants conservatifs (NH₄⁺, Cl⁻ par exemple) à mesure que le lixiviat est recirculé et le temps nécessaire pour le lessivage de ces substances peut s'allonger considérablement si elles ne sont pas traitées en amont de la recirculation. L'accumulation de NH₄⁺, conduisant à l'inhibition de la méthanogénèse, a par ailleurs été mise en évidence sur un site qui ne pratiquait la recirculation (Wens et al., 2001). Gould et al. (1989) ont montré que la recirculation de lixiviat stimulait la précipitation des métaux lourds en favorisant les conditions réductrices et la formation de sulfites, et ainsi diminuait leur concentration dans les lixiviats.

Dans un premier temps, la recirculation a pour effet un lessivage de la pollution plus rapide. Mais la méconnaissance du comportement à long terme des espèces dans les lixiviats et leurs interactions avec une matrice solide stabilisée empêche de tirer des conclusions. Les pratiques, notamment la mise en place d'un traitement en amont de la recirculation, la recirculation de lixiviats jeunes sur du déchet stabilisé et inversement, la modification des taux de recirculation tout au long de la vie du Bioréacteur, qui restent encore aujourd'hui à définir, seront déterminantes dans le bilan global de cette filière. Le manque actuel de données et l'absence de normalisation des pratiques industrielles et d'uniformisation des protocoles expérimentaux ne permettent pas de tirer des conclusions définitives.

IV.3.2.3 : Influence du prétraitement biologique

Le prétraitement biologique des déchets a un impact important sur la composition des lixiviats issus des CSD ayant reçu des déchets stabilisés (Brumbach et al., 1996). Le Tableau 20 résume les caractéristiques principales des lixiviats issus de déchets prétraités ou non. Ces données montrent très clairement l'absence des phases préliminaires de la dégradation anaérobie du déchet caractérisées par un lixiviat acide et très chargé en matière organique. Les formes azotées présentent aussi des concentrations très inférieures à un lixiviat de déchet brut. Binner et al. (2002) ont montré qu'en plus d'être moins chargés en pollution, les lixiviats issus de déchets prétraités présentent des caractéristiques relativement constantes dans le temps. Les mêmes observations ont été

faites par Stegmann et al. (1995). Les auteurs ont démontré que le relargage de charge polluante par les lixiviats était diminué de près de 90 % grâce au prétraitement des déchets. La comparaison de résultats de tests de lixiviation sur un déchet frais, des déchets excavés (5 - 35 ans de mise en décharge) et deux déchets prétraités (Stegmann et al., 2006) montre la même tendance. Les lixiviats de déchets prétraités présentent les mêmes caractéristiques qu'un déchet en fin de méthanogénèse. Les auteurs soulignent qu'il existe tout de même un potentiel de relargage sur le long terme de composés organiques difficilement biodégradables dominés par les acides fulviques et humiques.

Paramètres	Déchets non prétraités		Déchets prétraités	
i di di lictico	début	fin	début	fin
рН	5,5	7,5	7,5	7,5
$DBO_5 \ (mg\ O_2.l^{-1})$	28 000 - 30 000	100	1 000	20 - 100
DCO (mg $O_2.l^{-1}$)	35 000 - 48 000	1 000 - 2 000	1 500 - 2 500	600 - 1 000
TOC (mg.l ⁻¹)	7 800 - 16 900	500 - 1 100	600 - 1 000	400 - 580
N_{total} (mg.l ⁻¹)	1 600	1 000	140	250
NH_4^+ (mg.l ⁻¹)	1 400	200 - 1 000	30	200

(D'après Brumbach et al., 1996)

Tableau 20 : Comparaison des lixiviats avec ou sans prétraitement des déchets

A l'image de la décharge conventionnelle, et à plus forte raison pour cette filière nouvelle dont peu de retours d'expérience sont disponibles, il n'est pas possible d'évaluer les flux de polluants émis par les déchets stabilisés. Cependant, l'étude de tels déchets pourrait permettre une avancée significative de la compréhension du comportement à long terme de la matière organique stabilisée et de la matrice déchet en général.

PARTIE 2 MATERIELS ET METHODES

PARTIE 2 : MATERIELS ET METHODES

Chapitre I : Introduction

Le présent travail de thèse est basé principalement sur la conduite de 4 pilotes expérimentaux construits dans le cadre du projet ELIA par le Centre de Recherche sur la Propreté. Les pilotes ont été conçus par l'équipe Stockage du CRP avant le début de la thèse. Le travail de thèse a débuté à partir de la mise en place du dispositif expérimental.

Lorsqu'il s'agit d'ordures ménagères et en particulier de simulation de conditions de stockage, la taille des pilotes est le principal garant de la représentativité des résultats. En effet, l'hétérogénéité du déchet et sa granulométrie importante rendent le volume (la masse) représentatif élémentaire important. Pour la caractérisation d'une ordure ménagère par MODECOM par exemple, il est admis de trier au moins 500 kg de déchet pour avoir une vision représentative de sa composition. La taille semi industrielle des pilotes a permis de s'affranchir de ces problèmes de représentativité.

Pour chacune des trois filières, objet de l'étude expérimentale, il a fallu faire le choix de paramètres et de caractéristiques, pour garantir la meilleure adéquation avec des conditions réelles de site, tout en prenant en compte les spécificités et les contraintes liées aux pilotes et à la conduite de l'expérimentation.

Les processus actifs au sein du déchet étant relativement complexes et multiphasiques, il est important de suivre l'évolution de nombreux paramètres tant dans la phase liquide (lixiviat) que dans la phase gazeuse (biogaz) et lorsque c'est possible, directement dans la matrice solide. Les différentes informations apportées par le suivi des émissions liquides et gazeuses sont essentielles pour appréhender les conditions bio-physico-chimiques au sein du déchet.

Ce chapitre a pour objectif de présenter le dispositif expérimental utilisé pour ce travail de thèse ainsi que de lister les différentes méthodes qui ont abouti aux résultats de la présente étude.

Dans un premier temps, le choix des filières sera étayé, puis la physionomie générale des différents pilotes mis en place sera présentée. La chronologie du programme de recherche sera brièvement évoquée. Enfin, les analyses mises en œuvre lors de l'étude seront détaillées en s'attachant à mettre en évidence les avantages et inconvénients des différentes méthodes et leur précision respective.

Chapitre II : Choix méthodologique pour les trois filières étudiées

La filière de stockage Conventionnel a été comparée à deux « nouvelles » filières de stockage : la décharge Bioréacteur et le Prétraitement Biologique (PTB) avant enfouissement. L'impératif de pouvoir comparer le comportement du déchet selon les trois filières a nécessité d'utiliser dès le début de l'étude un déchet provenant du même gisement. La caractérisation du déchet utilisé est donnée au chapitre I de la partie 3.

II.1 : La filière Conventionnelle

La filière Conventionnelle consiste à enfouir le déchet « tout venant » dans une cellule de stockage, appelée aussi alvéole, en couches successives à l'aide d'un engin qui étale et tasse le déchet. Une fois la côte nominale de la cellule atteinte, le déchet est recouvert d'une couverture finale faite d'argile faiblement perméable. Les lixiviats et biogaz issus de cette alvéole sont captés. Le déroulement des processus bio-physico chimiques au sein du massif est naturel sans intervention extérieure pour modifier ou améliorer les conditions du milieu.

II.2 : La filière Bioréacteur

La filière Bioréacteur repose sur le principe de fournir aux microorganismes, responsables de la dégradation du déchet, des conditions de milieu optimales à leur développement. La préparation (mécanique, chimique ou biologique) du déchet avant sa mise en décharge est envisageable, tout comme il est possible d'agir sur le taux d'humidité du massif de déchet par ajout d'eau ou recirculation de lixiviat et de jouer sur la teneur en différents éléments nutritifs ou composés inhibants en dopant ou traitant le lixiviat avant sa réinjection. Cependant, étant données les conditions industrielles qui prévalent : échelle importante des alvéoles (typiquement 5000 m² de surface pour une hauteur de 8-10 m) et les contraintes économiques liées au coût de mise en décharge des ordures ménagères, ces pratiques sont réservées au domaine de la recherche. Pour la présente étude, une préparation mécanique sommaire du déchet (broyage grossier) a été effectuée avant son stockage. Il a alors été pratiquée une recirculation de lixiviat plus ou moins intensive selon le taux de production de lixiviat du casier et la qualité de celui-ci. Le taux de recirculation théorique, qui a été dimensionné à partir de la bibliographie, est de 8 L.t_{MS}⁻¹.jour⁻¹. Le dimmensionnement permet d'atteindre les taux maximums de recirculation en conditions réelles relevées dans la littérature (7,9 L.t_{DE}⁻¹.jour⁻¹; Leckie et al., 1979). Il a été décidé d'effectuer une recirculation en alternance, par mode gravitaire par bâchée à la surface du déchet, c'est-à-dire par déversement instantané du lixiviat dans une couche supérieure drainante pour une infiltration lente du lixiviat au sein du massif. Afin de palier au manque de lixiviat pour une recirculation soutenue, de l'eau a été ajoutée au système. En plus de modifier le bilan hydrique du procédé, ces ajouts ont permis la dilution des lixiviats avant recirculation. L'impact de cette pratique sera discuté lors de l'exposé des résultats.

II.3 : Le prétraitement biologique avant enfouissement

La filière de PréTraitement Biologique (PTB) avant enfouissement peut se décliner en de nombreuses formules suivant les objectifs de stabilisation, suivant aussi les débouchés pour les matériaux valorisables et bien entendu selon le type de déchet entrant.

La préparation mécanique du déchet consiste presque toujours en une combinaison broyage/criblage de laquelle ressortent au moins deux fractions granulométriques (parfois 3 ou 4). La fraction fine riche en matières organiques est destinée au prétraitement biologique alors que les fractions grossières sont plus intéressantes pour la valorisation énergétique du fait de leur haut pouvoir calorifique. En cas d'absence de valorisation énergétique, ces fractions sont couramment enfouies directement. Le prétraitement mécanique peut être complété par une séparation des matériaux ferreux et non ferreux. La fraction fine destinée à être stabilisée peut subir soit un traitement biologique aérobie, soit anaérobie, soit une combinaison des deux.

Le degré de technicité de la chaîne de prétraitement, qui définit la composition et la stabilité du déchet final destiné à être enfoui, est directement relié au contexte réglementaire en vigueur et fixe le coût de traitement engendré. Contrairement aux pays germanophones (Allemagne et Autriche) qui se sont dotés d'une réglementation stricte en matière d'enfouissement, notamment au niveau des critères d'acceptabilité des déchets en centre de stockage (stabilité biologique poussée, faible pouvoir calorifique, faible teneur en COT), la France n'impose aucune restriction quant à la qualité des déchets mis en décharge (Ademe, 2006). Ainsi, les filières à haute technicité qui engendrent des coûts de traitement élevés (120-150 euros.t_{initiale}⁻¹: Umweltbundesamt, 1999 ; Ecologic, 2004) ne trouvent pas forcément leur place dans le contexte français. Les débouchés pour la fraction à haut pouvoir calorifique en France sont peu évidents puisque les incinérateurs français fonctionnent déjà à pleine capacité. Nombreux sont ceux qui pensent que le PTB avant enfouissement n'a de l'avenir en France que s'il apporte une certaine valeur ajoutée à la filière conventionnelle sans engendrer des coûts de traitement prohibitifs que la société française n'est actuellement pas prête à accepter. L'objectif principal du PTB en France serait alors la réduction de la masse de déchet à enfouir et le gain de vide de fouille, permettant d'accroître les capacités de stockage des décharges.

Dans le cadre de l'étude, il a été ainsi décidé d'opter pour une filière simple, bas-coût avec un traitement mécanique sommaire dont la particularité est de traiter l'ensemble du flux de déchet sans séparation avant l'enfouissement. Comme pour la plupart des installations en Allemagne (80%) et l'intégralité des installations Autrichiennes (Adib, 2005), c'est la modalité aérobie qui a été choisie pour le traitement biologique. Afin de tester deux scénarii, correspondants à deux degrés de stabilité du déchet à enfouir, le traitement biologique a été conduit pendant 12 semaines avant l'enfouissement d'une moitié du déchet traité. Le traitement biologique a été poursuivi pendant 13 semaines sur la seconde partie des déchets avant leur enfouissement en pilote.

Chapitre III : Descriptions des différents dispositifs expérimentaux

III.1 : Traitement mécanique des déchets

Les déchets destinés aux filières Bioréacteur et PTB ont subi un traitement mécanique consistant en un broyage grossier à l'aide d'un broyeur à marteaux industriel (TOLEMACH DRG) dont deux photos sont données en Figure 9. Ce traitement mécanique s'apparente davantage à une homogénéisation du déchet avec l'ouverture des sacs poubelles.



Figure 9 : Photos du broyeur utilisé pour le traitement mécanique des déchets

III.2 : Traitement biologique des déchets

III.2.1 : Andain de prétraitement biologique



Figure 10 : Schéma de principe de la double couverture de l'andain

L'andain de prétraitement biologique a été mis en place afin de récréer expérimentalement un procédé de traitement par aération forcée. Après la pesée et une

humidification initiale, le déchet a été déposé sur une bâche PVC permettant la récupération des jus. L'andain, de géométrie trapézoïdale, a été recouvert d'une double couche « géodrain-géomembrane » qui permet, d'une part, la canalisation des gaz émis par l'andain vers une conduite de sortie et d'autre part, la recondensation de la vapeur d'eau dans les alvéoles du géodrain et sa réinfiltration dans le déchet (cf. Figure 10). Au total, 37,46 tonnes de déchets ont été disposées en un andain de 21 m de long, 6 m de large et environ 2 m de haut.



Vues de l'andain lors de sa construction (à noter la bâche inférieure, le ventilateur (au premier plan à droite) et les deux canalisations d'aération)



Figure 11 : Photos de l'andain de traitement biologique lors de sa construction

Le procédé utilisé a été développé pour l'occasion par la société ACES Environnement qui commercialise des systèmes de compostage industriels.

III.2.2 : Procédé d'aération pilotée

L'aération de l'andain est assurée par un ventilateur d'un débit nominal de 2850 Nm³.h⁻¹, qui souffle de l'air à travers 2 canalisations perforées placées à la base de l'andain.

L'aération du massif est commandée par la teneur en O_2 et la température du massif de déchet qui sont enregistrées en continu. Ces deux caractéristiques décrivent une fenêtre de fonctionnement du ventilateur explicitée par la Figure 12. Les temps de fonctionnement du ventilateur sont enregistrés en continu.



Figure 12 : Fenêtre de fonctionnement du ventilateur de l'aération forcée

III.3 : Stockage des déchets

III.3.1 : Casiers expérimentaux



Figure 13 : Schéma d'un casier expérimental de stockage

Les 4 casiers expérimentaux sont tous construits sur la même base : une cuve en acier à base carrée de 2,5 m de coté et d'une hauteur de 4 m. Le fond est constitué d'une double pente afin d'obtenir un point bas dans un coin du pilote pour la récupération des lixiviats par voie gravitaire. Le casier en acier est doublé par une cellule étanche composée d'un complexe « géotextile - géomembrane - géotextile » identique aux types de matériaux rencontrés sur les sites réels. Le jus de condensation qui peut se créer entre la paroi du pilote en acier et la géomembrane peut être récupéré gravitairement par une seconde sortie prévue à cet effet. Au fond de chaque casier est disposée une couche drainante de 15 cm faite de silex concassés non calcaires (diamètre 30-40 mm), surmontée d'une géogrille en polyéthylène de maille 2 mm empêchant le colmatage du massif drainant. Viennent ensuite les déchets qui sont disposés en couches minces d'environ 20-30 cm puis tassés à l'aide d'une plaque munie de pieds de mouton appuyée par une pelle mécanique (cf. Figure 14).



Figure 14 : Photo de la plaque « pied de mouton » servant à tasser les déchets

Tous les 70 cm, un drain horizontal relié à un piézomètre est disposé dans la diagonale du casier afin de favoriser le drainage du biogaz vers le sommet du massif et de permettre, le cas échéant, de mesurer la pression hydraulique dans le casier ou de détecter des nappes perchées de lixiviat. Les cinq piézomètres ainsi disposés affleurent à la surface du massif dans un coin du casier.

Au centre du déchet à la côte d'environ 2 mètres, une thermosonde permet la mesure de la température au sein même du massif. Le déchet est enfoui jusqu'à environ 25 cm du haut du casier où une seconde couche de silex d'environ 15 cm est disposée. Ce second massif drainant permet le drainage du biogaz émis par le massif ou provenant du réseau de piézomètres, mais accueille aussi les têtes de recirculation permettant, la simulation des précipitations (cas des pilotes PTB 1 & 2 et du casier Témoin) ou la recirculation des lixiviats (cas du Bioréacteur). La géomembrane, qui constitue la première entité étanche, est repliée et thermosoudée par-dessus cette dernière couche drainante, en laissant traverser la canalisation de recirculation et une canalisation pour capter le biogaz. La géomembrane est couverte d'une couche mince d'argile surmontée d'un géosynthétique bentonitique (GSB) et d'une seconde couche d'argile d'environ 25 cm. Enfin, le casier en acier est refermé par une plaque d'acier soudée équipée de passe-parois pour les canalisations de recirculation et de biogaz ainsi que d'un trou d'homme permettant l'accès

au réseau de piézomètres. Cette plaque est munie de deux tassomètres placés dans la diagonale qui reposent sur le sommet du massif et qui permettent de suivre le tassement du déchet (cf. Figure 13 et Figure 16).

Afin de simuler l'inertie thermique d'un massif de déchet réel et de conserver une température proche de 40°C dans les pilotes, les casiers ont été isolés grâce à du compost d'ordures ménagères en cours de maturation (cf. Figure 15).



Figure 15 : Vue générale des pilotes avant et après la mise en place du compost



1 : vue d'ensemble des casiers Témoin, PTB 1 & 2 après la mise en place des plaques supérieures

- 2 : trou d'homme et barre de mesure du tassement (tassomètre)
- 3 : passage étanche pour la canalisation de simulation de pluie
- 4 : vue de face du casier PTB 2

Figure 16 : Photos de la plaque supérieure d'un casier expérimental

III.3.2 : Réseau de captage et système de débimétrie biogaz

Les 4 casiers sont équipés d'un réseau de captage de biogaz. Les canalisations sont disposées de manière à obtenir une légère pente pour favoriser l'écoulement des condensats jusqu'à un point bas où ils sont collectés. Le système de captage du biogaz, calqué sur un système de dégazage classique est basé sur le principe du pompage grâce à une légère dépression appliquée au pilote. Ce système permet l'évacuation et surtout la quantification du biogaz produit grâce à un système de débitmètres « cloche » (cf. Figure 17).



(A noter, le flotteur avec la vis de réglage au centre (photo de droite)

Figure 17 : Représentation schématique et photos d'un débitmètre gaz

Ce système, une fois calibré, permet l'acquisition en continu du débit de biogaz capté pour chaque pilote grâce à un automate qui enregistre les évènements de vidange des cloches. Le réglage du niveau d'arrivée du biogaz par rapport au niveau d'eau extérieur permet l'ajustement de la dépression appliquée au pilote. Cette dépression a été maintenue entre -0,2 et -0,5 mbar, conformément à ce qui se pratique sur un réseau de dégazage classique d'un centre d'enfouissement moderne. Sur chaque canalisation de biogaz est situé un point de piquage sur lequel sont effectués les prélèvements de biogaz, il est placé en aval du piège à condensat avant le débitmètre gaz (cf. Figure 24). La précision de la mesure des flux de production de biogaz a été estimée à 10 %.

Remarques :

• L'eau des débitmètres a été maintenue à un pH inférieur à 4 afin de limiter la dissolution du CO_2 .

• Les canalisations de biogaz, de couleur noire, ont été isolées afin de limiter les effets des variations des conditions climatiques. En effet, il a été mesuré que l'ensoleillement, en agissant sur la température et donc la pression du gaz dans le réseau, perturbe la régulation de la dépression appliquée au pilote de plusieurs millibars.

III.3.3 : Simulation des précipitations et recirculation de lixiviats

Concernant le casier Bioréacteur, le choix a été fait de ne pas simuler de précipitations pour recréer les conditions d'une couverture étanche du massif de déchet. La pose de ce type de couverture (souvent une géomembrane en PEHD soudée sur les flancs du massifs) est pratiquée sur certains Bioréacteurs industriels (Bioréacteur de La Vergne, France, ou Yolo County, USA) afin d'améliorer l'efficacité du captage du biogaz et la qualité du biogaz en limitant les émissions diffuses et les entrées d'air. Celle-ci a en outre pour conséquence d'isoler le massif des précipitations extérieures, chose qui n'est pas pénalisant dans le cas du Bioréacteur. Ce casier a été équipé d'un système de recirculation automatisé permettant la réinjection par bâchée du lixiviat produit par le casier au sommet du massif. Le dispositif est décrit plus précisément par la Figure 30.

Concernant les trois autres casiers, une simulation de pluie a été mise en place afin de recréer les infiltrations d'eau consécutives aux évènements pluvieux sur un CSD. La simulation de pluie a initialement été prévue en deux phases : une phase dite d'exploitation, correspondant à un casier ouvert où le ruissellement des eaux de pluie est négligé et une phase dite de post exploitation pour laquelle une couverture finale d'argile et de terre végétale (argile : épaisseur de 1 m et perméabilité hydraulique de 2x10⁻⁹ m.s⁻¹ et 0,30 m de terre végétale) est prise en compte. Les taux d'infiltration de ces deux phases, calculés à partir des précipitations moyennes annuelles de la Baie de Somme sont respectivement de 255,3 et 94,9 mm.an⁻¹. Avec une surface de 6,25 m² par pilote, la simulation est égale à 1408 et 593 L.an⁻¹ suivant les deux scénarii. Initialement, il était prévu de simuler une phase d'exploitation de 6 mois puis de maintenir la simulation selon le second scénario. En fonction des contraintes expérimentales, la simulation a été adaptée pour chaque pilote avec comme objectif que chacun ait reçu au terme de l'étude la même quantité d'eau ramenée à la tonne de matière sèche enfouie dans les casiers pour simuler un taux de lixiviation identique pour les trois casiers.

III.3.4 : Suivi du tassement du massif de déchet

Le tassement d'un massif de déchet est le résultat de différents mécanismes qu'il est possibles de diviser en 3 principales catégories (Olivier, 2004) :

• Les actions mécaniques liées à l'application de surcharges qui entraînent un réarrangement, une distorsion et une déformation des divers composants du déchet.

• Les actions biochimiques, sous la forme de la dégradation aérobie ou anaérobie de la matière organique du déchet, qui entraînent un transfert de masse de la phase solide vers les phases liquide et gazeuse. La désagrégation de la structure particulaire du déchet qui en résulte s'accompagne d'un tassement à plus ou moins long terme.

• L'effet de tamisage subi par le déchet qui, au fur et à mesure de sa dégradation, présente une réduction de la taille caractéristique de ses constituants. Ceux-ci sont en quelque sorte tamisés au travers des macropores du déchet. Cette migration des éléments fins dégradés peut être accentuée par la percolation au travers du massif induite soit par l'infiltration des précipitations soit par la recirculation de lixiviats.

Il est possible de décomposer le tassement d'un massif de déchet en 2 phases : le tassement primaire qui résulte de la compression et de la distorsion du squelette solide du déchet sous l'effet de son propre poids et du poids de la couverture d'argile et le tassement secondaire lié principalement aux actions biochimiques décrites ci-dessus, dont les effets se font sentir sur le plus long terme.

Le tassement des massifs a été mesuré à l'aide des tassomètres mis en place sur les casiers (cf. Figure 13 et Figure 16). Les mesures effectuées mensuellement conduisent à l'estimation de l'évolution de la hauteur du massif de déchet (h_t) , et donc de son volume (V_t) . Le tassement (w_t) peut s'exprimer directement par la variation de la hauteur du massif ou normée par rapport à la hauteur de déchet initiale (h_0) selon les formules :

$$w_t = h_0 - h_t$$
 (en m) ou $w_t = \frac{h_0 - h_t}{h_0}$ (en %)

Ces données, reliées à l'évolution de la masse sèche ou humide du déchet stocké, permettent de connaître l'évolution des densités volumiques sèche (ps) et humide (ph) (en t.m⁻³) effectives de chaque casier définies par les formules suivantes :

$$\rho s_t = \frac{MS_t}{V_t}$$
 et $\rho h_t = \frac{MH_t}{V_t}$

Avec MS_t et MH_t les masses humide et sèche enfouies au temps t, et V_t le volume du massif de déchet au temps t. Les densités sèche et humide dites apparentes se calculent de la même façon en considérant les masses sèches et humides initialement enfouies dans le casier MS_{init} et MH_{init} (sans prendre en compte la perte de matière et l'évolution du déchet au cours du temps).

Chapitre IV : Déroulement du programme de recherche

Le déchet utilisé pour l'étude provient du centre de tri compostage d'Auquemesnil dans la région de Dieppe (Seine Maritime). Environ 60 tonnes de déchet, provenant de la collecte de différentes collectivités de la région, ont été prélevées le jour du lancement de l'étude (27 août 2003) (cf. Figure 18). Après avoir vérifié l'absence d'encombrants et après homogénéisation, 500 kg de déchets ont été prélevés pour pratiquer une caractérisation de type MODECOM[®] (cf. V.2.2). Dans le même temps, 10 tonnes ont été prélevées pour le remplissage du casier Témoin représentant la filière « décharge conventionnelle ». Le reste du gisement a subi le traitement mécanique. Le déchet ainsi obtenu a permis, d'une part, le remplissage du casier Bioréacteur et d'autre part, la constitution de l'andain de prétraitement biologique (cf. Figure 18). Après 12 semaines de traitement, la moitié des déchets de l'andain a servi au remplissage du casier PTB1, alors que l'autre moitié servait à reconstruire un andain de plus petite taille pour la poursuite du prétraitement. Le déchet final, alors âgé de 25 semaines, a été utilisé pour remplir le casier PTB2.



Figure 18 : Représentation schématique des filières de stockage étudiées

La Figure 19 donne la chronologie des différentes phases importantes de la vie des pilotes. Il est intéressant de remarquer que les temps 0 d'enfouissement ne correspondent pas aux mêmes dates pour les 4 casiers du fait des 12 et 25 semaines de prétraitement biologique pour les casiers PTB1 & 2. Les différentes phases de recirculation de lixiviat du casier Bioréacteur ainsi que les périodes de simulation des précipitations pour les autres pilotes sont représentées sur les axes chronologiques. La fin de l'acquisition de données a été fixée au 1^{er} juin 2006, soit un peu plus de 33 mois après le début des expérimentations. Les données devraient être acquises encore pendant au moins 24 mois à compter de cette date. Les conditions de température des pilotes seront à relier à la phase d'hivernage puis à l'isolation thermique des pilotes qui a eu lieu en novembre 2004 (respectivement mois 15, 12 et 9 pour les casiers Bioréacteur et Témoin, PTB 1, PTB 2).



Figure 19 : Chronologie de la vie des pilotes

Chapitre V : Techniques analytiques et obtention des résultats

V.1: Généralités

Les réactions qui surviennent au sein d'un massif de déchet, qu'il soit en conditions aérobies ou anaérobies, sont complexes, de différentes natures (réactions chimiques, biochimiques ou biologiques) et multiphasiques. La science du déchet, qui s'intéresse entre autre à l'évolution de la matrice solide au cours de différents procédés de traitement, a adapté des techniques d'analyses, souvent dédiées aux sciences du sol, afin de suivre et de comprendre les processus bio-physico chimiques qui se produisent au sein du déchet. Néanmoins, d'innombrables études menées sur le déchet, en particulier l'ordure ménagère en condition de dégradation biologique, ont montré la nécessité de suivre l'évolution des effluents liquides et gazeux en parallèle des caractéristiques du solide afin de pouvoir comprendre les multiples phénomènes complexes qui se produisent au sein du milieu réactionnel que constituent les déchets. C'est en ce sens que, pour cette étude, les émissions liquides ou gazeuses, et le solide lorsque cela a été possible, ont été suivis de la manière la plus exhaustive possible.

V.2: Analyse sur le solide



V.2.1 : Techniques d'échantillonnage

Figure 20 : Déroulement de la procédure d'échantillonnage

La caractérisation d'un déchet solide peut être effectuée selon différentes approches suivant les informations désirées. Cependant, quelle que soit l'approche, la première étape, qui détermine, pour une grande part, la qualité de cette caractérisation, est l'obtention d'un échantillon représentatif du déchet. Etant données l'hétérogénéité de l'ordure ménagère et les faibles quantités souvent requises pour la pratique des différentes analyses sur solide, il est nécessaire de pratiquer une réduction granulométrique des déchets afin d'homogénéiser l'échantillon. Le synoptique de la Figure 20 décrit le cheminement aboutissant à la prise d'un échantillon représentatif.

Le tamisage à 10 mm de l'échantillon broyé permet de récupérer environ 80 % de l'échantillon de départ. Les analyses sur solide ont été effectuées sur la fraction < 10 mm.

V.2.2 : Caractérisation du déchet par MODECOM®

Après constitution de l'échantillon de 500 kg représentatif du déchet brut, une procédure simplifiée de MODECOM[®] a été appliquée pour caractériser le déchet. Le tri manuel et l'utilisation de tamis ont permis de classer les déchets suivant 3 fractions granulométriques, chacunes caractérisées suivant 7 sous-fractions différentes détaillées au Tableau 21.

Fraction > 100 mm	Déchets organiques, Plastiques,
Fraction 20 - 100 mm	Textiles, Métaux, Verre,
Fraction < 20 mm	Déchets spéciaux, Autres déchets

Tableau 21 : Différentes fractions triées lors du MODECOM®

V.2.3 : Caractérisation physico-chimique du solide

Le déchet solide a été caractérisé à sa réception, durant le traitement biologique et au moment de son enfouissement en casier de stockage.

V.2.3.1 : Mesure de l'humidité du déchet

La détermination de la matière sèche, et par déduction de l'humidité, a été effectuée par séchage de la matière à 105°C jusqu'à stabilisation de la masse (pendant environ 24h) selon la norme NF ISO 11465.

V.2.3.2 : Mesure de la matière organique

La mesure de la Matière Organique (MO) ne permet pas de fournir une mesure directe de la stabilité d'un déchet puisqu'elle prend en compte aussi bien la MO biodégradable que celle non biodégradable telle que les plastiques, les textiles ou les substances humiques stables. Toutefois, ce paramètre reste très intéressant puisqu'il est facile de mise en œuvre et qu'en cours de traitement biologique, l'évolution de la matière organique totale est directement liée à la dégradation des composés organiques biodégradables.

Cette mesure a été réalisée par calcination à 550°C de la matière sèche dans un four à moufle puis pesée des résidus. La matière résiduelle après calcination est considérée comme la matière minérale (MM).

V.2.3.3 : Mesure des paramètres agronomiques : COT, $N_{kjeldahl}$, rapport C/N, pH, formes minérales azotées

Ces mesures ont été réalisées par le laboratoire LCA de La Rochelle.

Le carbone organique total (COT) exprimé en g $C.kg_{MS}^{-1}$, a été calculé en appliquant la formule COT = MO / 2, la mesure de la MO ayant été déterminée selon la norme EN 13039. La teneur en azote kjeldahl (NTK) exprimé en g $N.kg_{MS}^{-1}$, a été déterminée selon la norme NF EN 13342. Le rapport C/N, qui est souvent utilisé en compostage pour évaluer la maturité d'un compost est calculé à partir des deux grandeurs citées précédemment (COT et NTK). Le pH du déchet, qui est très instructif sur l'état du processus biologique au sein de la matrice solide (phase acidogène, d'alcalinisation) a été mesuré selon la norme NF EN 13037. Les formes minérales azotées, constituées de l'azote ammoniacal (NH₄⁺) et l'azote nitrique (NO₃⁻), ont été mesurées respectivement selon des méthodes dérivées des normes NF T 90-015-2 par spectrophotométrie et NF EN ISO 10304-2 par chromatographie ionique.

V.2.4 : Caractérisation de la stabilité biologique du déchet

Il existe de nombreux paramètres de stabilité biologique de la matière organique présente dans les déchets ménagers. Etant donné le flou qui règne dans ce domaine, notamment par rapport à l'adoption d'un paramètre fiable et reconnu par l'ensemble de la communauté scientifique, il a été décidé, dans le cadre de cette étude, d'utiliser le plus grand nombre de paramètres possibles afin, d'une part, de caractériser au mieux l'état biologique du déchet brut et son évolution notamment lors du traitement biologique, et d'autre part, de pouvoir comparer les différents paramètres, leur pertinence et leur mise en œuvre. Le premier paramètre, qui a déjà été décrit, est la teneur en MO du déchet qui est intéressante pour un suivi de la dégradation biologique en relatif. Seuls deux tests sont détaillés dans le présent manuscrit : la mesure du potentiel de biogaz et l'indice AT₄.

V.2.4.1 : Mesure du potentiel méthanogène du déchet (BMP et GB₂₁)

Les mesures du potentiel biochimique méthanogène (BMP) ont été réalisées au CRP selon un protocole interne. Le principe est de placer 30 g de déchets secs en solution (600 mL d'eau distillée) dans un réacteur de 1L, d'y ajouter une quantité de boues issues d'un digesteur anaérobie (quantité déduite de la teneur en MO du déchet testé) avec une solution tampon et deux solutions nutritives. La mesure du BMP n'est pas normalisée, et il incombe à chaque laboratoire d'établir sa propre procédure notamment dans l'ajout des solutions nutritives et de l'inoculation du milieu. Le réacteur ainsi préparé est incubé à 35° C pendant environ trois mois durant lesquels le biogaz produit par méthanogénèse est quantifié et analysé. Le test s'interrompt lorsque la production de biogaz est nulle et que l'intégralité du potentiel est atteint. Les résultats sont exprimés en NL CH₄ . kg_{MS}⁻¹, il est possible aussi d'exprimer le potentiel de formation de biogaz où le CO₂ formé est aussi pris en compte.

Il existe dans la réglementation allemande (AbfAblV, 2001) une norme concernant le test GB_{21} dont le principe, très proche des tests BMP réalisés, consiste à quantifier le potentiel de formation de biogaz du déchet en 21 jours en prenant en compte la phase de latence. Ce paramètre est utilisé en Allemagne et en Autriche pour définir des critères d'acceptabilité de mise en décharge. Ainsi, afin de pouvoir comparer les résultats de

l'étude à la littérature allemande, malgré les légères différences de protocole (utilisation d'eau du robinet, absence de solution tampon, 50 g de déchet), il a été décidé d'exprimer un potentiel méthanogène en 21 jours à partir des tests BMP.

V.2.4.2 : Mesure de l'indice AT₄ : respirométrie statique

La mesure de l'AT₄ consiste en une mesure respirométrique qui permet de déterminer la quantité d'oxygène consommée par les micro-organismes pendant une durée de 4 jours. La consommation en oxygène est exprimée en mg $O_2.g_{MS}^{-1}$.

Plus un déchet est stable biologiquement, plus l'activité respirométrique est faible. Typiquement, des ordures ménagères "fraîches" peuvent atteindre un AT_4 de 70-80 mg $O_2.g_{MS}^{-1}$.

L'analyse, qui répond à une norme allemande (AbfAblV, 2001), s'effectue sur 40 g de déchet broyé à 10 mm à l'aide d'un SAPROMAT. Ces analyses ont été réalisées par l'INSA de Toulouse. Les analyses de l'AT₄ présentent une répétabilité satisfaisante avec un écart type moyen d'environ 3 %.

V.2.5 : Tests de lixiviation : matières solubles

Le déchet, quelle que soit sa stabilité biologique, contient des éléments solubles potentiellement mobilisables lorsque la matrice solide entre en contact avec une phase liquide. Le test de lixiviation, qui répond à la norme EN 12457-4, consiste à mettre en contact le déchet séché et broyé à 10 mm selon un ratio massique liquide / solide (L/S) égal à 10. Le test dure 24 h pendant lesquelles le mélange est agité par retournement au rythme de 10 tours.min⁻¹. La phase liquide est alors recueillie puis filtrée à 0,45 µm. Le lixiviat est analysé suivant les paramètres classiques DCO, DBO₅, NTK, Anions, cations, COT, CT, Conductivité, potentiel redox, pH. Ce test permet entre autre d'évaluer le potentiel d'un déchet à relarguer la pollution par voie liquide. Il ne permet cependant pas de prendre en compte les phénomènes de dégradation biologique, de sorption, précipitation, et les réactions physico-chimiques qui sont susceptibles de modifier ce potentiel au cours du temps.

Les tests de lixiviation ont été réalisés à l'INSA de Lyon par le LAEPSI.

V.3 : Quantification des émissions liquides et gazeuses

V.3.1 : Généralités

L'étude de la bibliographie a montré qu'il y avait une certaine carence de données par rapport à la caractérisation des émissions liquides et gazeuses pour les trois filières de stockage étudiées. Les données, lorsqu'elles existent sont souvent inexploitables du fait de l'absence d'informations contextuelles indispensables telles que la composition du déchet, les conditions physico-chimiques, le mode opératoire d'un prélèvement, etc. L'étude d'une partie seulement d'une filière (prétraitement biologique sans la phase d'enfouissement), la taille des expérimentations (réacteur de laboratoire de faible contenu), l'utilisation d'ordures ménagères reconstituées, l'expression de concentrations sans notion de flux émissifs, l'absence d'expérimentations Témoin sont aussi des raisons pour lesquelles l'exploitation de telles données, notamment pour la comparaison des filières entre elles, est difficile.

Il apparaît aussi que les émissions gazeuses des différentes filières sont relativement méconnues. Même si les émissions de méthane ou de dioxyde de carbone ont été largement décrites dans la littérature, ceci est particulièrement vrai pour les émissions des composés à l'état de traces. De nombreuses études se sont attachées à étudier des cas « problématiques » (situation singulière des sites ou des scénarii étudiés) sans jamais approfondir la définition des mécanismes de génération de ces émissions.

Fort de ce constat, une attention toute particulière a été portée sur le suivi qualitatif et quantitatif des émissions liquides et gazeuses en vue de l'établissement de flux émissifs.

Les émissions liquides et gazeuses au niveau des étapes d'enfouissement des trois filières considérées ont été suivies de la manière la plus complète possible. Pour la partie traitement biologique aérobie de la filière PTB, l'accent a été mis sur l'évolution des émissions liquides et gazeuses à l'exception de la consommation d'oxygène et de la production de CO_2 , ce déficit étant comblé par un suivi rigoureux de l'évolution de la matrice solide durant le traitement.

V.3.2 : Suivi des émissions lors du traitement aérobie

V.3.2.1 : Emissions liquides

Les lixiviats issus du traitement biologique, qui peuvent être qualifiés de jus, ont été récupérés gravitairement au point bas de l'andain, volontairement installé sur une pente douce. Des poches souples étanches, utilisées dans le monde viticole (Poches CAVIN 10, 25, 200 L), ont été utilisées pour collecter le lixiviat en évitant après prélèvement tout contact avec l'air et de ce fait les réactions d'oxydation. La détermination de la quantité a été effectuée par pesée avec une balance d'une précision de 10 g. La densité du lixiviat a été vérifiée puis considérée comme identique à celle de l'eau. Les jus ainsi collectés ont été caractérisés selon le protocole décrit au paragraphe V.4.1.

Les flux de chaque élément (N, COT, DCO, etc) ont été obtenus en multipliant les données qualitatives (concentrations) issues de la caractérisation des lixiviats (explicitée au chapitre V.4.1) aux volumes de jus recueillis. Les flux ont été exprimés suivant les cas, soit par rapport à la tonne de déchet sec entrant, notée « $.t_{MS}^{-1}$ », soit par rapport à la tonne de déchet entrant humide, notée « $.t_{DE}^{-1}$ ». Le rapport entre les deux correspond à l'humidité initiale du déchet entrant.

V.3.2.2 : Emissions gazeuses

V.3.2.2.a : Représentativité du point de mesure

Pour obtenir un échantillon représentatif d'une source d'émission surfacique tel qu'un andain, il est possible de considérer la totalité du flux émissif d'une portion plus ou moins grande de la surface émissive. Cette approche, qui s'apparente à la technique de la chambre à flux, nécessite au préalable un screening initial de la surface émissive, dont le comportement est souvent très hétérogène spatialement et variable dans le temps (Bockreis, 2005). Pour la présente étude, dont le but était de suivre l'évolution des émissions totales de l'andain, il a été choisi de considérer une fraction représentative du flux émissif de l'ensemble de la surface émissive.

La canalisation du flux émissif a été réalisée grâce à la double couverture géodrain - bâche PVC. Le géodrain, en facilitant le drainage du gaz vers le sommet de l'andain, a favorisé la représentativité du flux tandis que la bâche PVC a apporté une étanchéité suffisante pour canaliser environ 50 % du flux émissif lors des épisodes d'aération $(49 \pm 4 \%)$. Cette valeur a été calculée à partir de mesures réalisées à l'aide d'un anémomètre à hélice sur la canalisation d'aspiration du ventilateur (débit insufflé) et celle d'évacuation des gaz d'émissions (débit canalisé). En l'absence d'aération, pour des émissions qualifiées de passives, c'est l'effet cheminée qui prédomine (cf. Figure 21), aussi, il est probable qu'un pourcentage encore supérieur du flux (très faible dans le cas d'émissions passives) soit canalisé puisque l'effet de drainage du géodrain se combine avec celui de l'effet cheminée.



Figure 21 : Effet « cheminée » au sein d'un andain

Comme il n'a pas été possible de vérifier la réelle représentativité en composition du flux canalisé, l'hypothèse suivante a été effectuée.

Hypothèse n°1:

Le flux canalisé est représentatif de l'ensemble des émissions. Ainsi, une mesure quantitative des concentrations réalisée dans cette veine gazeuse peut être considérée comme caractéristique de l'ensemble du flux émissif.

V.3.2.2.b : Variation quantitative des émissions

Les émissions de l'andain peuvent être caractérisées par la succession de deux régimes successifs : le régime correspondant à une aération active et le régime correspondant à une aération passive (absence de ventilation).

Pour le premier régime, il s'agit d'un phénomène d'évacuation de l'air vicié contenu dans les pores du massif par l'air neuf poussé par la soufflerie. Le ventilateur alimentant l'andain en air neuf a été dimensionné de manière à pouvoir faire remonter le taux d'O₂ au sein du massif relativement rapidement (quelques minutes), ce qui donne au régime d'aération active un caractère relativement bref. Il entraîne néanmoins des débits volumiques d'émission importants directement en lien avec le débit nominal du ventilateur et les pertes de charge que subit celui-ci. Lors du second régime, le phénomène qui régit l'émission est la convection naturelle due au gradient de température au sein du massif (effet cheminée). Le débit volumique entraîné par ce phénomène peut être considéré comme faible, d'autant plus que la double couverture géodrain - bâche PVC gêne les échanges du massif avec l'air extérieur. La durée des régimes d'émission passive est dépendante de la cinétique de consommation de l'O₂ au sein du massif. Cette cinétique est fonction de l'activité biologique aérobie variable au cours de la stabilisation et définit le temps nécessaire pour atteindre le seuil bas en O₂ synonyme de remise en route de l'aération.

Quantitativement, le profil du flux émissif peut donc être assimilé à une succession de phases de très faibles débits (émissions passives) et de phases à forts débits (régime d'aération) semblables à des pulses.

Etant donné l'objectif de l'étude qui est bel et bien la caractérisation des flux de polluants, une seconde hypothèse a été formulée.

<u>Hypothèse n°2 :</u>

En l'absence d'aération forcée, les émissions gazeuses sont considérées comme négligeables par rapport à celles durant une phase d'aération de l'andain. Les émissions totales sont alors réduites aux émissions dites « actives ».

V.3.2.2.c : Protocole de prélèvement

La canalisation des effluents par la double couverture vers la conduite de sortie a été considérée comme représentative de la surface émissive matérialisée par les flancs de l'andain. Le volume de la conduite de sortie (environ 200 L) a fait office de chambre de prélèvement (cf. Figure 22).

Le temps nécessaire pour réaliser tous les échantillonnages pour la caractérisation du mélange est d'environ 30 à 45 min. L'aération de l'andain pendant une période si longue ne permettant pas l'obtention d'un flux de qualité constante (cf. Figure 23), il a été décidé de procéder à une aération pulsée lors des séances d'échantillonnages.



Figure 22 : Configuration du point de prélèvement

La fréquence des pulses a été déterminée pour que le gaz de cette chambre soit continuellement renouvelé et que sa qualité soit la plus constante possible. Elle a été de un pulse de 30 secondes toutes les 2 minutes, soit 1 minute de ventilation toute les 5 minutes. Pour homogénéiser l'émission, la ventilation a été mise en route pendant 2,5 minutes avant le début de la période d'échantillonnage. L'influence de l'air extérieur lors de l'arrêt de la ventilation (effet de dilution) a été contournée en obturant partiellement la sortie de la canalisation d'évacuation. Un orifice situé sur le coté, au milieu de la canalisation a servi de point de prélèvement. Les prélèvements gazeux ont été effectués directement dans la chambre de prélèvement.



Figure 23 : Profil théorique d'émission lors d'un épisode d'aération en continu et pulsée

V.3.2.2.d : Expression des flux

Les émissions gazeuses de l'andain ont été assimilées à une succession d'épisodes d'émissions actives qui ont lieu lors de l'aération du massif de déchet. Pour le calcul du flux émissif, il est fait l'hypothèse que le débit molaire d'air insufflé par le ventilateur dans le massif de déchet est égal au débit molaire de gaz émis par l'andain. Cette hypothèse n'est valide qu'à plusieurs conditions :

• Le cœfficient respiratoire (production de CO_2 / consommation de O_2) est compris entre 0,83 et 1 lorsque la concentration en oxygène est supérieure à 5 % (Aguilar-Juarez, 2000). Il est considéré en première approximation égal à l'unité.

• L'apport d'air, autre que par la ventilation (convection naturelle par exemple) est négligé. C'est un des effets de la double couverture de l'andain.

• Les réactions anaérobies, qui se produisent dans des microzones anoxiques inévitables dans un massif de déchet très hétérogène, sont négligées.

• Le phénomène de dissolution du CO_2 dans la phase aqueuse est considéré comme négligeable par rapport à la production par minéralisation de la matière organique.

L'échauffement du massif au cours du traitement entraîne inévitablement un réchauffement de l'air qui transite au travers, ainsi, il est nécessaire d'adopter pour toutes les mesures et les calculs (débit, flux, concentration) les conditions normales de température et de pression (0° C et 1 atm).

Les flux de polluants émis par l'andain peuvent donc être calculés en intégrant sur le temps le produit du débit d'émission par la concentration en un polluant donné par la méthode des trapèzes suivant la formule suivante :

$$M^{i} = \sum_{0}^{Tf} \left(V_{t-1}^{t} \times \frac{C_{t-1}^{i} + C_{t}^{i}}{2} \right)$$

Avec M^i le flux de polluant i émis durant le traitement biologique en mg, V_{t-1}^i le volume de gaz émis entre le temps t-1 et le temps t en Nm³, C_{t-1}^i et C_t^i les concentrations dans l'effluent du composé i aux temps t-1 et t en mg.Nm⁻³ et *Tf* la durée du traitement biologique. Le volume de gaz émis est calculé à partir du débit réel du ventilateur en conditions expérimentales et des temps de fonctionnement de celui-ci relevés durant le traitement.

V.3.3 : Suivi des émissions lors de la phase de stockage

V.3.3.1 : Emissions liquides

De la même manière que pour l'andain de traitement biologique, les lixiviats issus des casiers de stockage ont été collectés mensuellement dans des poches CAVIN puis pesés et caractérisés (cf V.4.1). Les flux de chaque élément ont aussi été calculés de manière similaire, ramenés à la tonne de déchets secs enfouis dans le casier sans tenir compte de la perte de masse occasionnée par la dégradation anaérobie de la matière organique.

V.3.3.2 : Emissions gazeuses

V.3.3.2.a : Protocole de prélèvement

Les émissions gazeuses, sous forme de biogaz issus de la méthanogénèse, ont été, pour les quatre casiers, suivies de manière identique. Chaque casier a été relié à son propre débitmètre de biogaz par un réseau de dégazage indépendant directement connecté à la géomembrane PEHD. Un point de prélèvement qui est situé entre le piège à condensat et le débitmètre gaz a permis la connexion d'une ligne d'analyse indépendante pour chaque pilote (cf. Figure 24). Chaque ligne a été équipée d'un second piège à condensat refroidi à 4°C. Une pompe a permis d'amener le biogaz à un analyseur infrarouge pour le suivi en continu de la teneur en CO_2 et CH_4 ou de remplir un sac TEDLAR pour une caractérisation approfondie du biogaz.

V.3.3.2.b : Expression des flux

Le volume total de biogaz est obtenu en additionnant le biogaz recueilli par le débitmètre et le biogaz pompé pour les analyses. L'enregistrement systématique des évènements débitmètre et analyse par un automate permet le suivi précis du volume cumulé de biogaz pompé en fonction du temps. Les flux de polluants sont calculés de la même manière que pour l'andain de traitement biologique (cf. V.3.2.2.d) en intégrant le produit du volume de biogaz pompé et des concentrations en polluants par la méthode des trapèzes.

PARTIE 2



Figure 24 : Configuration du suivi des émissions gazeuses

V.4 : Qualification des émissions liquides et gazeuses

V.4.1 : Emissions liquides

Les différents paramètres permettant de caractériser les émissions liquides de l'andain et des casiers de stockage ont été :

• Le **pH** : le pH varie significativement selon les différentes phases de l'activité biologique aérobie ou anaérobie. De plus, il conditionne un grand nombre d'équilibres physico-chimiques. La mesure a été réalisée avec un pH mètre étalonné selon la norme NF T 90 008.

• La **Conductivité** (µS.cm⁻¹) : la conductivité renseigne sur la salinité des lixiviats (teneur en sels dissous). La conductivité a été mesurée selon la norme NF EN 27888.

• La DCO (mg O_2 , L⁻¹), Demande Chimique en Oxygène (mg O_2 , L⁻¹) : la DCO est liée à la matière organique dissoute ou en suspension, biodégradable ou non, susceptible d'être oxydée par un oxydant chimique puissant, le dichromate de potassium. Elle traduit la quantité d'oxygène nécessaire à l'oxydation de la matière organique contenue dans les lixiviats. La mesure a été réalisée avec le kit rapide Dr LANGE LCK 914 ou selon la norme NF-T 90-101.

• Le COT (mg C.L⁻¹), Carbone Organique Total (mg C.L⁻¹) : le COT a été mesuré à l'aide du KIT rapide Dr LANGE LCK 380 ou selon la norme NF EN1484 .

• Le **TAC** (°f): Titre Alcalimétrique Complet: ce titre mesure les teneurs en hydroxydes, carbonates et bicarbonates dans le lixiviat. Il a été mesuré par dosage à l'acide en présence d'hélianthine selon la norme NF T 90 036.

• Les AGV (mg.L⁻¹ eq. Acétique), Acides Gras Volatils : les AGV sont des espèces principalement produites lors de la phase d'acidogénèse. Ils ont été déterminés à la suite de la mesure du TAC, par titrage à l'acide sulfurique jusqu'à un pH de 3,5. Après ébullition pendant 10 min, les fonctions R-COOH ont été dosées à la soude entre pH 4 et pH 7. Cette méthode ne permet de doser que 75 % environ des AGV en solution.

• Les formes azotées (mg N.L⁻¹), l'azote total, NH₄⁺, NO₃⁻: la dynamique de l'azote, son potentiel lixiviable et son évolution au cours de la dégradation biologique du déchet est très intéressante, notamment pour les lixiviats issus des casiers de stockage. Les analyses de l'azote total, des formes ammoniacales et nitriques ont été effectuées avec les kits rapides Dr Lange LCK 338, 305 et 339, respectivement par oxydation au péroxydisulfate puis titrage des nitrates, et par réaction colorée dosable par un spectrophotomètre pour les deux formes minérales.

• Les **cations** (mg.L⁻¹), Ca²⁺, Mg²⁺ : ces deux éléments traduisent de la dureté des lixiviats. Le magnésium est déterminé à l'aide du kit rapide Dr Lange LCK 326. Le calcium est déduit de l'analyse de la dureté résiduelle.

• Les anions (mg.L⁻¹), Cl⁻, $SO_4^{2^-}$: les ions chlorures sont qualifiés de conservatifs puisque ils sont très solubles et ne participent peu ou pas aux réactions chimiques et biologiques. Les sulfates forment un couple redox avec le H₂S et sont intéressants à corréler avec la présence de H₂S sous forme gazeuse suivant le pH du milieu. Les trois mesures ont été réalisées à l'aide des kits rapides Dr Lange LCK 311, 353.

• Le P_{total} (mg P.L⁻¹) et le Fer (mg.L⁻¹) sont mesurés à l'aide des kits Dr Lange LCK 348 et 320. Le suivi des espèces Fe dans le lixiviat est un indicateur du comportement des espèces métalliques.

La validation des kits rapides Dr LANGE a été effectuée en pratiquant en parallèle des analyses normalisées. Les points obtenus ont permis, d'une part, de retenir (ou pas) le kit en fonction de ses performances et d'autre part, de calculer une coefficient de correction lorsqu'une erreur systématique a été identifiée entre l'analyse rapide et l'analyse normalisée. Les détails des calculs sont donnés dans l'Annexe 1.

Remarque :

Les analyses normalisées ont été effectuées par le laboratoire CAE (Saint Maurice) et les analyses Dr Lange ont été effectuées par Julien Goeury et Estelle Redon du CRP. La mise en forme et l'exploitation des résultats a fait partie intégrante du travail de thèse.

V.4.2 : Emissions gazeuses

V.4.2.1 : Généralités

Les effluents gazeux, qu'ils proviennent du traitement biologique aérobie ou des casiers de stockage anaérobies, sont constitués de deux types de gaz :

• Les gaz majoritaires (plutôt de l'ordre du %) : N_2 , O_2 , CO_2 , H_2O pour les effluents aérobies (N_2 et O_2 provenant de l'air insufflé dans l'andain et CO_2 et H_2O provenant de la dégradation aérobie de la matière organique) et CO_2 , CH_4 et dans une moindre mesure N_2 et O_2 pour les effluents anaérobies appelés biogaz (CO_2 et CH_4 étant les produits de la méthanogénèse, O_2 et N_2 provenant soit de l'air résiduel contenu dans les pores du déchet, soit d'un excès de pompage par le dispositif de collecte du biogaz).

• Les gaz minoritaires ou gaz traces (souvent de l'ordre du ppm ou du mg.Nm⁻³) : le NH₃, le N₂O, l'H₂S, les COV. Les conditions de formation et d'émission varient suivant les caractéristiques du milieu (pH, aérobiose, température, composition de la matrice solide) (cf. 1.3).

V.4.2.2 : Les gaz majoritaires

Seuls le CO_2 et le CH_4 ont été suivis en continu sur les casiers de stockage grâce à un analyseur infrarouge BINOS équipé d'un condenseur à effet Peletier et d'un petit automate, le BIOS'AR, développé par l'INSA de Toulouse, permettant de balayer les 4 voies d'analyse correspondant aux 4 casiers expérimentaux. La cadence d'acquisition a été de 1 point de mesure par pilote toutes les 12 heures. Ponctuellement, les teneurs en O_2 et N_2 ont été mesurées soit avec un micro chromatographe VARIAN 4200 équipé d'une colonne à tamis moléculaire, soit à l'aide d'un analyseur portable GA 94 de Analytical Instruments ou encore avec des tubes colorimétriques Drägger capables de détecter la présence d'O₂.

Concernant l'andain de traitement biologique, seule la teneur du massif en oxygène a été mesurée grâce à une canne de prélèvement crépinée reliée à une sonde oxygène déportée permettant la régulation de la ventilation de l'andain. Cette mesure, ponctuelle spatialement, ne permet pas d'estimer la consommation d'O₂ globale de l'andain mais seulement celle de l'environnement proche de la canne de prélèvement. Le suivi de la teneur en CO_2 des émissions n'a pu être effectué, seules des mesures conduites par piquages ponctuels à l'aide de l'analyseur GA 94 ont permis d'identifier des zones très actives (consommation importante d'O₂ et production de CO_2) et des zones localisées d'anaérobiose synonymes de mauvaises conditions d'aération.

V.4.2.3 : Les gaz minoritaires

Les gaz minoritaires ont été suivis ponctuellement une fois par mois pour les casiers de stockage et une fois par semaine puis toutes les deux semaines pour le traitement biologique selon les méthodes décrites dans les paragraphes suivants. La Figure 25 présente un synoptique d'une campagne de caractérisation des effluents gazeux.



Figure 25 : Représentation schématique de la caractérisation des effluents gazeux

V.4.2.3.a : Mesure de NH₃

Les mesures d'ammoniac ont été effectuées soit au niveau de l'orifice de la chambre de prélèvement de l'andain, soit sur les sacs TEDLAR prélevés sur les lignes d'analyses de pilotes, à l'aide de tubes colorimétriques Drägger de différentes gammes de mesure (2-30 ppm, réf. # 6780231). Ces tubes, employés avec une pompe manuelle calibrée fournie par le fabriquant, permettent une mesure de la concentration en NH₃ dont la précision est estimée à environ 20% de la mesure.

V.4.2.3.b : Mesure de H₂S

Les mesures de l' H_2 S ont été effectuées suivant le même protocole que l'ammoniac à l'aide de tubes colorimétriques Drägger 1-20, 2-60 ou 10-200 ppm (Réf. # 6719001). La précision liée à ces mesures est d'environ 20% de la mesure.

V.4.2.3.c : Mesure de N₂O

Le protoxyde d'azote n'a pu être suivi que sur les casiers de stockage. La technique utilisée pour réaliser les mesures de N_2O a été la chromatographie gazeuse couplée à un détecteur à capture d'électrons (ECD). Ce détecteur offre une très bonne sensibilité puisqu'il est capable de détecter la teneur de N_2O ambiante : 320 ppb. La chaîne analytique offre une précision d'environ 10 ppb. Les prélèvements ont été effectués, suivant un protocole développé au Cemagref de Rennes, à l'aide d'une seringue à gaz qui permet de remplir et de mettre en surpression des vials de 8 mL préalablement préparés et mis sous vide. Pour chaque point de mesure, 4 réplicats ont été effectués. Une mesure du CO_2 et du CH_4 en parallèle grâce à un FID, a permis de vérifier la qualité et la représentativité du prélèvement. Les analyses ont été effectuées par le Cemagref de Rennes (Equipe de P. Peu).

V.4.2.3.d : Mesure des COV

Généralités

Les COV ont été mesurés en utilisant des tubes remplis d'adsorbants permettant le prélèvement dynamique par accumulation des molécules en vue d'une analyse ultérieure en laboratoire. L'échantillonnage a été effectué directement par l'orifice de la chambre de prélèvement pour l'andain de traitement biologique et sur les sacs TEDLAR prélevés sur la ligne d'analyse de chaque casier.

La difficulté de mise en œuvre de la méthode réside dans le choix du ou des adsorbants et du matériel analytique pour conduire les analyses et dans la définition des conditions expérimentales de prélèvement et d'analyse des échantillons. Pour cette étude, le champ d'investigation étant très vaste, plusieurs types d'adsorbants complémentaires ont été testés afin d'obtenir le maximum d'informations en relation avec l'objectif ambitieux de pouvoir déterminer la composition exacte des échantillons analysés. Dans le cadre du présent manuscrit, seules les deux techniques offrant une continuité satisfaisante dans les résultats sont présentées. Ce sont en outre les deux techniques les plus couramment employées : l'accumulation sur charbon actif puis désorption au CS₂ et l'accumulation sur Tenax puis désorption thermique, toutes deux suivies d'une analyse par chromatographie gazeuse et spectrométrie de masse (GC/MS). Les protocoles de prélèvement, d'analyse et d'exploitation font l'objet des paragraphes suivants. Pour tous les prélèvements, les volumes d'accumulation ont été adaptés au mieux à la composition des effluents caractérisés pour obtenir la meilleure sensibilité tout en gardant une certaine sécurité pour éviter la saturation des matériaux adsorbants.

Les résultats des différents essais de méthode de prélèvement, de type d'adsorbants et les différents enseignements concernant l'analyse des COV issus des ordures ménagères sont discutés à part dans le chapitre VI de la présente partie. Une étude comparative plus approfondie des performances respectives des deux méthodes d'analyse est présentée dans le chapitre V.1 de la partie 3.



* Prélèvement dynamique sur tube à charbon actif

Figure 26 : Schéma d'un tube à charbon actif SKC 226-01

Le protocole expérimental décrit ci-dessous répond à la norme NF ISO 16200-1 relative à la qualité de l'air des lieux de travail.

• Protocole expérimental

Le prélèvement dynamique a été effectué à l'aide d'une pompe à faible débit (\approx 20-50 mL.min⁻¹) GILLIAN LFS 113. Le volume de prélèvement est déterminé par la mesure exacte du temps de prélèvement (compteur intégré à la pompe au centième de minute près) et du débit tout au long du prélèvement (débitmètre à bulle de savon, précision : 0,1 mL.min⁻¹). Les tubes ainsi chargés sont placés à 4°C avant leur analyse au laboratoire. Les deux parties du tube (analyse et vérification de perçage, cf. Figure 26) ont été systématiquement analysées. Chaque partie est respectivement placée dans environ 1 et 0,5 mL de solution CS₂ (Fluka 84713 exempt de benzène) préparée avec un étalon interne (tridécane, $C_{13}H_{28}$). La désorption est effectuée dans un bain à sonication pendant 14 minutes. Après décantation, la solution est analysée par un couplage GC/MS. Le détail de la chaîne analytique utilisée et des conditions d'analyse est donné en Annexe 2.

Prélèvement dynamique sur tube Tenax TA



Figure 27 : Tubes Tenax en acier inoxydable thermodésorbable

• Protocole expérimental

Le prélèvement dynamique sur les tubes Tenax a été effectué de la même manière que pour les charbons actifs. Cependant, afin de limiter l'incertitude liée à de très faibles volumes de prélèvement (25 mL) dans le cas du biogaz des casiers de stockage, une seringue à gaz de 25 mL (Agilent, Interchim) a été préférée à la pompe LFS 113.

Les tubes ainsi chargés ont été analysés, après thermodésorption, par un couplage GC/MS. Le détail de la chaîne analytique et des conditions d'analyse est donné en Annexe 2.

Exploitation des données GC/MS

Quelle que soit la technique de prélèvement, l'analyse GC/MS aboutit à un spectre de masse, appelé TIC (Total Ion Current), qui représente l'évolution du signal du détecteur du spectromètre de masse en fonction du temps de rétention de la colonne chromatographique. A un temps t du chromatogramme correspond un spectre de masse qui, avec l'aide d'une bibliothèque de spectres (bibliothèques NIST et WHILEY) permet l'identification des pics chromatographiques. L'intégration et l'identification automatique des pics sont effectuées grâce au logiciel Chemstation (Agilent Technology) mais doivent être reprises manuellement pour vérification afin de lever les doutes par exemple en cas

de coélution de deux composés (temps de rétention chromatographique proche ou identique) ou lorsque les pics ne sont pas nets. Ce travail très fastidieux est absolument nécessaire, puisque dans le cas de matrices complexes comme le biogaz, un spectre est souvent très chargé (120-150 pics chromatographiques), la séparation des composés n'est pas toujours optimale et les risques de mauvaise intégration ou identification sont élevés.

Une fois ce travail effectué, la liste des composés et de leur surface de pic correspondante doit être traitée pour obtenir la quantification (ou semi-quantification) des composés identifiés. Pour ce faire, la procédure pour les deux techniques de prélèvement est un peu différente.

* Procédure de quantification pour les analyses charbon actif

L'étalonnage du GC/MS utilisé pour les analyses charbon actif a été effectué en utilisant un étalon interne afin de s'affranchir des incertitudes liées à l'injection manuelle du solvant de désorption. Cette méthode est basée sur la comparaison de l'aire du pic chromatographique d'un produit « i » à celle du pic de l'étalon interne « e » présent dans toutes les solutions injectées, à concentration constante. Les coefficients d'étalonnage $K_{i,e}$ relient ainsi le rapport des surfaces de pics (S_i/S_e) au rapport des concentrations des produits dans la solution (X_i/X_e) . L'étalon interne choisi a été le tridécane $(C_{13}H_{28})$. La concentration dans la solution de désorption X_i d'un produit i est donnée par l'équation :

$$X_i(mg.L^{-1}) = (\frac{S_i}{S_e}K_{i,e}) \times X_e(mg.L^{-1})$$

La concentration du produit i dans l'effluent gazeux initial Y_i est calculée grâce au volume de prélèvement gazeux V_G ramené en NL avec la température T_G relevée au cours du prélèvement et au volume de CS_2 (V_{CS2}) utilisé pour la désorption du charbon actif par la formule :

$$Y_{i}(mg.Nm^{-3}) = \frac{X_{i}(mg.L^{-1}) \times V_{CS2}(mL)}{V_{G}(L) \times \frac{273,15}{T_{G}(K)}}$$

Les solutions étalons préparées avec l'étalon interne permettent la détermination des coefficients $K_{i,e}$. Comme il n'a pas été possible d'étalonner tous les produits identifiés dans les effluents (plus de 150), le toluène a été utilisé, à défaut, comme étalon pour la quantification. La liste des composés étalonnés est donnée en Annexe 2.

* Procédure de quantification pour les analyses Tenax

La procédure de quantification pour les Tenax est basée sur l'hypothèse selon laquelle la réponse du spectromètre de masse reste identique durant une même série de thermodésorption. Pour chaque série d'analyse (environ une dizaine de tubes), le principe est de réaliser un étalonnage externe de la chaîne analytique, lequel sera utilisé pour l'ensemble des tubes analysés durant la série de désorption.

L'étalonnage est réalisé en analysant une série de tubes chargés avec une quantité croissante d'une solution étalon commerciale de 50 composés (Mégamix200, Restek) dont la composition est donnée en Annexe 2. La gamme étalon ainsi réalisée permet de
déterminer les facteurs de réponse du spectromètre de masse pour les composés présents dans la solution étalon. Ces facteurs de réponse K_i^n de la série d'analyse sont utilisés pour déterminer la masse M_i de produit i initialement adsorbée sur le tube analysé selon la formule :

$$M_i(\mu g) = S_i \times K_i^n$$

 S_i représente la surface du pic chromatographique.

La concentration dans la phase gazeuse initiale Y_i est calculée à l'aide du volume de prélèvement V_G ramené en NL à l'aide de la température T_G relevée au cours du prélèvement selon la formule :

$$Y_{i}(mg.Nm^{-3}) = \frac{M_{i}(\mu g)}{V_{G}(L) \times \frac{273,15}{T_{G}(K)}}$$

A l'image des analyses charbon actif, les produits identifiés lors d'une analyse et absents de la solution étalon sont quantifiés à l'aide de la réponse du toluène.

* Procédure d'exploitation des données

Les deux techniques, du fait de leur spécificité, apportent des informations complémentaires sur la composition des effluents gazeux qu'il convient de prendre en compte pour la caractérisation des émissions de COV. Ainsi, en faisant le constat qu'aucune des deux méthodes ne permet de caractériser justement l'effluent gazeux complexe considéré dans cette étude (Parker et al., 2002), il semble intéressant de prendre le « meilleur » des deux techniques pour s'approcher de la composition exacte de l'effluent.

L'analyse en parallèle par deux techniques d'accumulation sur matériaux adsorbant suivie d'une analyse GC/MS permet de faire l'hypothèse que la concentration calculée la plus élevée est celle qui se rapproche le plus de la concentration réelle dans l'effluent.

En effet, la relation qui relie la concentration réelle à la concentration calculée est faite de multiplication de rendements (rendement de piégeage, rendement de désorption, rendement de cryofocalisation, rendement de désorption secondaire, rendement de ionisation) qui sont tous par définition inférieurs à l'unité. En négligeant les phénomènes de réaction de composés qui peuvent intervenir entre le prélèvement et l'analyse, il est possible de considérer qu'il n'existe pas de création de composés. Ainsi, les concentrations relevées à l'aide des techniques utilisées, au mieux, s'approchent de la composition du mélange initial (dans le cas d'un piégeage quantitatif des composés, une désorption totale et une détection parfaite par le spectromètre de masse), ou plus probablement la sous-estiment.

Les résultats du suivi des émissions gazeuses des casiers ont donc été obtenus en comparant, lorsque cela a été possible, pour chaque composé et pour chaque point de mesure les concentrations mesurées par les deux techniques puis en sélectionnant la plus élevée. Il a été aussi possible de comparer les réponses des deux techniques sur les

différents effluents étudiés et de décrire le comportement, les spécificités et la complémentarité des deux techniques. Ceci fait l'objet du paragraphe V.1 de la partie 3.

Lors de l'exploitation des spectres de masse, il arrive pour certains composés que l'identification des isomères se révèle difficile. De plus, pour nombre d'entre eux, il importe peu de connaître l'isomère exact (les alcanes linéaires ramifiés par exemple). Ainsi, à défaut d'une identification indiscutable (par l'injection des différents isomères pour les xylènes par exemple), les isomères ont été regroupés pour obtenir la quantité total du produit. Les composés concernés ont été exprimés avec une lettre à la place du chiffre indiquant le type d'isomère. Par exemple, les triméthyl-benzènes (1,2,3-TMB, 1,3,5-TMB et 1,2,4-TMB) ont été regroupés sous l'appellation a,b,c-triméthyl-benzène.

Remarques :

La thermodésorption et l'analyse GC/MS des tubes Tenax ainsi que leur nettoyage et leur conditionnement ont été réalisés au Service Central d'Analyse du CNRS de Vernaison par Ludovic Fine, qui a grandement contribué à la qualité de la caractérisation des effluents gazeux. Les prélèvements, l'exploitation des spectres, la mise en forme des données et des étalonnages ont néanmoins été parties intégrantes du travail de thèse, tout comme l'intégralité des mesures sur charbon actif (du prélèvement à l'exploitation des spectres). L'étalonnage de la chaîne analytique ayant servi à l'analyse des charbons actifs a été réalisé dans le cadre d'un autre travail de thèse par Rodica Chiriac (Chiriac, 2004a).

V.4.3 : Emissions d'odeurs

La mesure de la concentration d'une odeur par olfactométrie dynamique a été effectuée suivant la norme NF EN 13725. L'effluent à caractériser est prélevé dans un sac TEDLAR de 80 L et envoyé au laboratoire SODAE (Betton, France). L'analyse, effectuée dans un délai de 30 heures après le prélèvement, nécessite la réunion d'au moins 6 membres d'un jury, appelé jury de nez, sélectionnés par des critères définis dans la norme.

Le but de l'opération est d'attribuer à un mélange une concentration d'odeur (en UO_E/Nm^3) définie comme étant le nombre de dilution nécessaire pour que 50% des membres du jury ne détectent plus d'odeur. Une unité odeur est par ailleurs définie comme l'équivalent de 123 µg de n-butanol dans 1 m³ de gaz. Comme une concentration classique, il est possible de définir un flux d'odeur qui sera alors exprimé en UO_E par unité de temps ou unité de masse de déchet.

V.5: Bilans matières

V.5.1 : Andain de prétraitement biologique

L'objectif de réaliser deux modalités de prétraitement (un PTB sommaire et un PTB poussé) impose d'enfouir une partie du déchet avant la fin du traitement. Ainsi, les bilans sur l'intégralité du procédé, exprimés par rapport à la tonne de déchets entrants ont été effectués en rationalisant les données relatives à la seconde phase du prétraitement à la masse sèche de déchet laissée en andain après l'enfouissement intermédiaire. En d'autres termes, les données de la seconde phase de traitement ont été calculées au prorata de la

masse sèche enfouie dans le casier PTB1 en faisant l'hypothèse que le déchet prétraité sommairement se serait comporté de la même manière que le déchet restant en andain.

Le traitement biologique a été réalisé au tout début de l'étude (août 03 - février 04) et a subi des dysfonctionnements au niveau de son suivi. De plus, étant donnée la taille de l'andain, tous les paramètres n'ont pu être maîtrisés ou suivis comme ils auraient dû l'être. Les bilans matières, notamment les bilans sur l'azote et le carbone, font à ce titre l'objet d'hypothèses qui seront discutées dans les chapitres suivants. Pour les deux bilans azote et carbone, l'équation suivante a été considérée :

```
Masse perdue dans la matière = masse évacuée par voie liquide + masse évacuée par voie gazeuse
```

V.5.1.1 : Bilan azote

L'azote a été suivi dans les effluents liquides et au sein de la matrice solide. L'objectif du bilan sur l'azote est donc d'estimer les pertes azotées par voie gazeuse durant le traitement biologique, et, *in fine*, les émissions d'ammoniac et de protoxyde d'azote. Pour ce faire, les hypothèses suivantes ont été formulées :

• Pertes d'azote dans le solide

Les pertes en azote de la phase solide sont uniquement dues à la dégradation de l'azote organique et aux pertes d'azote ammoniacal et sont donc estimées par les pertes en azote Kjeldahl. Les nitrates et nitrites sont de ce fait négligés. De plus, l'assimilation par les microorganismes de l'azote atmosphérique est considérée comme inexistante.

• Pertes d'azote par voie liquide

Les émissions d'azote par voie liquide sont calculées à partir des mesures d'azote total effectuées sur les jus et des quantités de jus durant le prétraitement biologique.

• Pertes d'azote par voie gazeuse

Les pertes d'azote par voie gazeuse sont estimées par la différence entre les pertes dans le solide et l'azote évacué par voie liquide (cf. Figure 28). Selon la littérature, du fait de la faible part des phénomènes de nitrification/dénitrification, les émissions gazeuses sont composées principalement de NH₃ (De Bertoldi et al., 1988 ; Körner et al., 1997, 1999) et dans une moindre mesure de N₂O. Les NO_x (NO et NO₂) sont la plupart du temps absents des effluents.

Beck-Friis et al. (2001) mettent en évidence, lors d'une expérience de compostage d'ordures ménagères en pilote (C/N initial compris entre 21 et 23), des émissions de NH_3 représentant 98% des pertes gazeuses moyennes en azote. Martins et al. (1992) et Smars et al. (1999) font état d'un pourcentage de 95%. Une expérience de compostage de boues menée par le Cemagref (Druilhe et al., 2001) fait état de l'absence totale de N_2O .

Pour l'étude, il sera fait l'hypothèse pour le rapport NH_3/N_2O d'une gamme comprise entre 95/5 % et 100/0%.



Figure 28 : Représentation schématique du bilan azote

V.5.1.2 : Bilan carbone

De la même manière que pour l'azote, le bilan carbone a pour objectif d'estimer les émissions de carbone sous forme de CO_2 dans les effluents gazeux.

• Pertes de carbone dans la matière

La perte de carbone dans la matière est assimilée à la dégradation du carbone organique et à la mobilisation du carbone inorganique initialement contenu dans le déchet. La formation de carbone inorganique solide (précipitation de calcaire, magnésie) est considérée comme négligeable durant le traitement biologique. La dissolution du CO_2 formé par voie biologique est prise en compte dans le suivi du CIT dans les jus, mais est cependant considérée comme négligeable dans le processus global de minéralisation du COT.

• Pertes de carbone par voie liquide

Les pertes de carbone par voie liquide sont estimées grâce au suivi des émissions de COT et de CIT dans les lixiviats réalisé lors du traitement biologique. Le carbone sous forme de carbonates est calculé à partir de la mesure du TAC (en mg CaCO₃.L⁻¹) en considérant que le CIT est égal au C-CaCO₃ mesuré. Il n'est pas possible de dissocier le CIT provenant du déchet (lessivage) et celui provenant de la dissolution du CO₂. Afin de séparer les deux « pools » de carbone et permettre l'estimation des émissions de CO₂, la dissolution du CO₂ est considérée comme négligeable par rapport au lessivage des formes inorganiques initialement contenues dans le déchet.

• Pertes de carbone par voie gazeuse

Les pertes de carbone par voie gazeuse se font sous trois formes : l'émission de CO_2 et dans une moindre mesure de CH_4 résultant de la minéralisation de la matière organique par les microorganismes et l'émission de composés carbonés, pour la plupart des composés organiques volatils (COV) qui peuvent être soit des intermédiaires de dégradation de la matière organique, soit provenir directement du déchet suite à leur volatilisation sous l'effet de l'aération forcée ou de la convection naturelle au sein de l'andain de prétraitement. Les émissions de COV et de CH_4 ont été estimées grâce au suivi effectué durant le traitement biologique.



Figure 29 : Représentation schématique du bilan carbone organique

Il est possible d'estimer les émissions de CO_2 lors du prétraitement selon l'expression suivante (cf. Figure 29) :

Pertes de C-CO₂ = Carbone organique perdu dans la matière - carbone organique évacué sous forme liquide et sous forme C-COV et C-CH₄.

V.5.1.3 : Expression de la perte de masse

La perte de masse engendrée par la dégradation biologique de la matière organique est un facteur déterminant notamment pour le bilan global de la filière PTB. L'hypothèse sur laquelle repose le calcul de la perte de masse au cours du traitement est la conservation de la masse de la matière minérale (Von Felde et al., 1997 ; Druilhe et al., 2001). Ainsi, la perte de masse sèche au temps t, PMS_t (en tonne) peut s'exprimer de la façon suivante :

$$PMS_{t} = MS_{init.} - MS_{t} = \left[1 - \frac{(1 - MO_{t})}{(1 - MO_{init.})}\right] \cdot MS_{init.}$$

Avec : $MS_{init.}$ et MS_t les masses sèches initiale et au temps t (en tonne) et $MO_{init.}$ et MS_t les teneurs en matière organique initiale et au temps t (en $%_{MS}$)

De la même manière, en prenant en compte la variation de l'humidité (H_t en %) du déchet en fonction du temps, il est possible d'exprimer la perte de masse humide en fonction du temps (PMH_t en tonne) selon la formule :

$$PMH_{t} = MH_{init.} - MH_{t} = \left[1 - \frac{(1 - MO_{t})(1 - H_{t})}{(1 - MO_{init.})(1 - H_{0})}\right] \cdot MH_{init.}$$

Avec : *MH*_{init}. et *MH*_t les masses sèches initiale et au temps t (en t)

V.5.1.4 : Bilan hydrique

Le bilan hydrique du traitement biologique peut être formulé de la manière suivante :

Variation de l'humidité du déchet = eau produite par la réaction biologique + eau ajoutée - eau évacuée par voie gazeuse - jus produit au cours du traitement.

L'eau produite par la réaction biologique peut être calculée grâce à l'estimation du CO_2 produit effectuée lors du bilan carbone en faisant l'hypothèse que, lors de la réaction biologique aérobie, une mole d'H₂O est produite pour chaque mole de C minéralisée.

La variation de l'humidité du déchet a été suivie durant le traitement biologique, tout comme l'eau ajoutée au massif de déchet pour lutter contre son dessèchement et la production de lixiviat. L'eau évacuée par voie gazeuse et sous forme de condensats sur la double couverture peut donc être estimée grâce à la formule du bilan hydrique.

V.5.2 : Casiers de stockage

V.5.2.1 : Cas des casiers « filière Conventionnelle » et « filières PTB »

V.5.2.1.a : Expression de la perte de masse sèche

La perte de masse sèche du déchet en condition de stockage est égale à l'ensemble des constituants (sauf l'eau), évacués par voie gazeuse et voie liquide. Ceci correspond à la somme de l'ensemble des flux massiques des éléments contenus dans le lixiviat et dans le biogaz : C, N, anions, cations, métaux, CO₂, CH₄, COV, H₂S, NH₃, N₂O. La perte massique peut s'exprimer en pourcentage de la masse sèche initiale (% MS_{init}).

La perte de masse sèche par voie liquide est calculée en prenant en compte les masses d'AGV, d'ammonium et de nitrate produites. Leur contribution respective aux flux de carbone et d'azote est donc retranchée afin de ne pas les compter deux fois. Le CIT produit est pris en compte en considérant que les CIT sont principalement sous forme de carbonates, ainsi 1 g de CIT émis équivaut à 5 g de perte de masse (1 mole de CIT (12g) = 1 mole de CO_3^- (60 g)).

V.5.2.1.b : Bilan hydrique, expression de l'humidité du déchet

Le bilan hydrique des pilotes des filières Conventionnelle et PTB est simple puisqu'il fait seulement intervenir une entrée d'eau (simulation de pluie) et deux sorties (production de lixiviat et eau évacué dans le biogaz capté).

L'humidité des déchets au temps t H_t (en %) s'exprime donc de la manière suivante :

$$H_{t} = \frac{H_{init.} \cdot MH_{init.} + SP_{t} - PL_{t} - BG_{t}}{MH_{init.} \cdot (1 - H_{init.}) \cdot (1 - PMS_{t}) + H_{init.} \cdot MH_{init.} + SP_{t} - PL_{t} - BG_{t}}$$

Avec $H_{init.}$, l'humidité initiale du déchet (en %), $MH_{init.}$, la masse de déchet humide initiale enfouie (en tonne), SP_t et PL_t respectivement la simulation de pluie et la production de lixiviat au temps t (en m³), PMS_t , la perte de masse sèche au temps t (en $%_{MS}$), BG_t la masse d'eau évacuée par le biogaz au temps t (en tonne).

V.5.2.1.c : Bilan carbone :

Le bilan carbone d'un casier de stockage a été effectué en distinguant le carbone organique du carbone inorganique. Le bilan sur le carbone organique fait intervenir le carbone organique initialement contenu dans le déchet, le carbone organique évacué par voie gazeuse sous forme de C-CO₂, C-CH₄ et C-COV et le carbone organique lessivé. La teneur en CIT du déchet brut et stabilisé n'ayant pas été déterminée, la dissolution du

 CO_2 a été négligée afin de bien différencier les « pools » organique et inorganique du carbone.

L'abattement au temps t du potentiel de production de biogaz est défini par le rapport du C-CO₂ et C-CH₄ évacué dans le biogaz au temps t sur le carbone total minéralisé au cours du test du potentiel de production de biogaz. De la même manière, l'abattement du potentiel méthanogène est défini par le rapport du C-CH₄ produit au temps t sur le C-CH₄ produit lors du test BMP.

V.5.2.2 : Cas particulier du casier Bioréacteur

V.5.2.2.a : Bilan hydrique, expression de l'humidité du déchet

Le bilan hydrique du Bioréacteur est plus complexe puisqu'il s'agit d'un cycle fermé de recirculation. Dans ce cas, il ne s'agit plus de considérer le casier seul comme le système de référence mais d'y inclure la cuve de stockage des lixiviats. La Figure 30 donne une représentation du bilan hydrique.

L'eau présente dans le système au temps t est égale à la somme du volume dans la cuve de stockage de lixiviat et de l'eau présente dans le déchet (son humidité au temps t). La seule entrée du système est l'ajout d'eau claire (c) alors que les sorties sont les prélèvements de lixiviat pour le besoin des analyses (a & b) et les débordements de cuve de stockage de lixiviat.

De la même manière que pour les casiers précédents en ajoutant l'eau de condensation inter-membrane (EC_t) produite entre la paroi du casier et la géomembrane, l'humidité du déchet au temps t (H_t en %) peut être calculée de la manière suivante :

$$H_{t} = \frac{H_{init.} \cdot MH_{init.} + LR_{t} - PL_{t} - BG_{t} - EC_{t}}{MH_{init.} \cdot (1 - H_{init.}) \cdot (1 - PMS_{t}) + H_{init.} \cdot MH_{init.} + LR_{t} - PL_{t} - BG_{t} - EC_{t}}$$

Avec $H_{init.}$: l'humidité initiale (en %), $MH_{init.}$: la masse de déchet humide initiale enfouie (en t), LR_t et PL_t respectivement le volume de lixiviat recirculé et la production de lixiviat cumulée au temps t (en m³) et PMS_t : la perte de masse sèche au temps t (en %_{MS}).





V.5.2.2.b : Bilans matières

Afin de pouvoir effectuer des bilans matières, il a été décidé de découper la période d'expérimentation en phases, chacune caractérisée par la succession d'une période de recirculation de lixiviat et d'une période de drainage des lixiviats. Ainsi, à la fin de chaque phase, il a pu être établi un bilan matière en prenant en compte l'état initial du système au début de la phase et l'état final à la fin de la période de drainage et ainsi d'identifier le pouvoir de relargage ou de stockage (ou traitement si la substance est biodégradable) du déchet pour différentes substances.

Pour une substance X donnée, la quantité de X relarguée par le déchet au cours d'une phase (recirculation et drainage) est égale à la variation de la quantité de X dans la cuve de stockage des lixiviats entre la fin du drainage et le début de la recirculation (appelé ΔX_{cuve}) à laquelle il faut ajouter la quantité de X contenue dans les lixiviats évacués du système (X_{LE}) (analyse de lixiviat et débordements de la cuve de stockage).

Au moment de l'arrêt de l'acquisition des données (1er juin 2006), le système était en période de recirculation de la phase n°5. Ainsi, le bilan global de relargage de pollution a été calculé en prenant en compte la pollution contenue dans les lixiviats évacués du système lors des 4 premières phases de recirculation et celle contenue dans la cuve de stockage des lixiviats à la fin de la période de drainage de la phase 4.

V.5.3 : Cas des filières PTB (traitement biologique et stockage)

Afin de pouvoir effectuer des bilans matières sur les filières globales de PTB (traitement biologique et phase de stockage) selon les deux scénarii de stabilisation, les données issues de la phase de stockage des déchets prétraités ont été rationalisées par rapport au déchet entrant dans la filière, c'est-à-dire en tenant compte de la perte de masse sèche occasionnée par la dégradation de la matière organique lors du PTB. Ceci revient à réduire les données rationalisées par rapport à la masse de matière sèche enfouie d'un pourcentage équivalent à la perte de masse sèche subie par le déchet lors du PTB (PMS en %). Par exemple, une émission de 100 g $CO_2.t_{MS}$ -¹ lors de la phase de stockage d'un déchet stabilisé ayant subi une perte de masse sèche (PMS) de 40 % lors du traitement biologique revient à une émission de 60 g $CO_2.t_{MS}$ entrant filière ⁻¹. En tenant compte de l'humidité initiale du déchet, il est alors possible de tout exprimer par rapport à la tonne de déchet entrant la filière (t_{DE}).

Chapitre VI : Retour d'expérience sur l'analyse des COV dans les effluents gazeux issus des ordures ménagères

VI.1 : Généralités

L'état de l'art actuel de la mesure des COV ne permet pas de dégager une technique universelle capable de doser n'importe quel composé dans une matrice gazeuse. Depuis une vingtaine d'années, de nombreux travaux ont été effectués sur l'élaboration de techniques analytiques robustes et adaptées au cas singulier et difficile des effluents gazeux d'ordures ménagères et assimilés. De tous ces travaux, il apparaît que la méthode qui consiste à utiliser des tubes remplis d'adsorbants pour le prélèvement des échantillons gazeux en vue d'une analyse ultérieure en laboratoire est celle qui donne le plus de satisfaction.

En ce qui concerne la présente étude, l'objectif n'a pas été de travailler au développement de l'analyse des COV dans les effluents gazeux, néanmoins il a été nécessaire de procéder à quelques tests et améliorations des protocoles afin d'utiliser au mieux les techniques analytiques retenues pour cette étude. Le principe de ce paragraphe est de résumer les différents travaux effectués au cours de la thèse et de présenter les principaux enseignements et conclusions quant à la mise en œuvre de ces techniques.

Il est important de noter que la pratique de l'analyse par adsorption sur charbon actif s'est appuyée sur un précédent travail de thèse (Chiriac, 2004a) sur la caractérisation des émissions de COV des décharges d'ordures ménagères, en procédant aux modifications requises pour passer de la caractérisation de l'air ambiant d'une décharge à la caractérisation de la source d'émission elle-même. Les analyses effectuées avec les tubes à désorption thermique ont été pensées et réalisées en partenariat avec l'équipe d'analyse de gaz du Service Central d'Analyse du CNRS.

VI.2 : Caractéristiques et spécificités des adsorbants utilisés

Les adsorbants utilisés ont chacun leur domaine d'application plus ou moins vaste suivant leur spécificité. Ils peuvent être qualifiés de polyvalents ou spécifiques selon s'ils permettent un screening relativement exhaustif de l'effluent à caractériser ou s'ils sont dédiés à une ou plusieurs familles chimiques (Berezkin et al., 1991). Cette spécificité devient cependant toute relative lorsqu'il s'agit de caractériser une matrice gazeuse complexe contenant une large gamme de composés.

Trois types d'adsorbants ont été testés pour cette étude : un charbon actif, un tamis moléculaire carboné et 2 adsorbants polymères.

Le charbon actif (tube SKC 226-01) présente une surface spécifique d'adsorption élevée de 1120 m².g⁻¹. Il est conditionné dans un tube en deux parties contenant respectivement 100 et 50 mg de charbon. Le charbon actif est un adsorbant très polyvalent qui permet l'adsorption d'une large gamme de composés avec des températures d'ébullition variant d'environ -30°C à 260°C. Les composés très volatils comme l'éthylène, le formaldéhyde ou d'autres composés dont le point d'ébullition varie de -100 à 0°C ne sont que partiellement

adsorbés alors que les composés dont le point d'ébullition est supérieur à 200°C souffrent souvent d'une désorption incomplète. Les composés polaires présentent des affinités pour le charbon actif susceptibles aussi de réduire les rendements de désorption.

Les tamis moléculaires ne sont que très rarement utilisés seuls, sauf quand il s'agit de suivre un composé spécifique dans une matrice « propre ». Ils sont plutôt utilisés en dernière partie d'un tube multicouche pour assurer le piégeage des composés très légers qui auraient percés les lits d'adsorbants précédents. Le gros désavantage de ce type d'adsorbant est son affinité avec l'eau qui peut grandement perturber le processus d'adsorption. L'eau en quantité suffisante peut être aussi un problème pour la thermodésorption puisque, d'une part, elle peut geler et bloquer le piège froid, et d'autre part, elle peut altérer la polarité du gaz vecteur et de la colonne chromatographique gênant ainsi le processus de séparation. L'eau est responsable d'interférences rendant la plupart du temps l'analyse inexploitable. L'adsorbant utilisé pour cette étude est le Sphérocarb qui présente une surface spécifique très élevée de 1200 m².g⁻¹. Sa force d'adsorption est élevée, il permet ainsi de piéger des composés très légers, de $n-C_3$ à $n-C_8$, avec un point d'ébullition compris environ entre -30°C et 150°C. Ces performances sont néanmoins à nuancer du fait de son caractère très hydrophile et du risque de contamination de l'adsorbant en présence de composés plus lourds qui entrent en compétition avec les composés plus légers.

Les polymères poreux utilisés ont été le Tenax TA et le Chromosorb 106. Le Tenax TA est un polymère macroporeux, semi-cristallin issu de l'oxyde de diphényl-p-phénylène. Il est le plus largement utilisé dans l'analyse des atmosphères polluées. Avec une surface spécifique de seulement 20-35 m².g⁻¹, Il est considéré comme ayant une faible force d'adsorption et est préconisé pour l'analyse quantitative des composés de n-C₇ à n-C₃₀ avec des températures d'ébullition comprises environ entre 100 et 450°C. Sa bonne stabilité thermique permet de bons rendements de désorption. Les Chromosorbs sont issus d'un polystyrène résineux plutôt apolaire. Le Chromosorb 106 est le moins polaire de la famille des chromosorbs. Sa surface spécifique de 750 m².g⁻¹ en fait un adsorbant puissant capable de piéger des composés de $n-C_5$ à $n-C_{12}$, pour une température d'ébullition de 50 à 200°C. Il est très hydrophobe et donc peu affecté par la vapeur d'eau. Sa faible stabilité thermique implique des niveaux de ligne de base relativement importants du fait de la génération d'artefacts (produits de dégradation thermique de l'adsorbant) et une température de désorption ne devant pas dépasser les 200°C. Cet adsorbant est plus recommandé pour les composés polaires, le benzène, les composés volatils oxygénés, ce qui lui confère une bonne complémentarité avec le Tenax (Markès Int., 2002).

VI.3 : Sensibilité et incertitudes des différentes chaînes analytiques

Lorsque toute la chaîne analytique « charbon actif - désorption liquide - analyse GC/MS » est considérée, du prélèvement à l'analyse, l'erreur combinée se situe dans les meilleurs cas aux alentours de ± 15% (ASTM, 1991). Les faibles incertitudes dues aux « manipulations de laboratoire », incluant la pesée du solvant et la préparation de la solution avec l'étalon interne, s'ajoutent aux incertitudes dues aux rendements de piégeage et de désorption ainsi que celles provenant de l'intégration des pics chromatographiques et de la détermination du volume de prélèvement. Cette technique souffre d'une perte de sensibilité importante puisque seule une faible quantité de solvant est injectée dans le

chromatographe (entre 1/1000 et 1/2000 du solvant de désorption), la sensibilité est ainsi diminuée du même rapport. La limite de détection est variable puisqu'elle dépend du volume de prélèvement : plus les quantités prélevées seront importantes, plus la technique sera sensible. Néanmoins, plus l'échantillon sera chargé en polluant, plus l'identification des composés présents en faible quantité sera difficile. Un bon prélèvement sera donc un compromis entre la prévention du perçage du tube et la recherche de la meilleure sensibilité. En considérant un volume de prélèvement moyen (300 mL) avec une injection de solvant de 1 μ L pour 1 mL de solvant de désorption, la limite de détection a été estimée à environ de 10 μ g.Nm⁻³ pour le toluène (environ 2 fois le bruit de fond).

Concernant l'analyse par désorption thermique, c'est l'étape de prélèvement qui représente la principale source d'incertitude. Suivant si le prélèvement est effectué à la seringue à gaz ou avec une pompe à faible débit, l'incertitude sur le volume de prélèvement pourra varier respectivement entre 2 et 10 %. L'incertitude globale de la chaîne analytique prélèvement compris est du même ordre de grandeur que pour le charbon actif. La limite de sensibilité garantissant une bonne identification par spectrométrie de masse est d'environ 0,1 μ g.Nm⁻³ pour un prélèvement de 50 mL et une analyse en double splitless.

La principale inconnue pour les deux chaînes analytiques reste le rendement d'adsorption et de désorption de l'adsorbant dans les conditions expérimentales difficiles que présente l'analyse des effluents gazeux issus de déchets ménagers. En effet, aucun adsorbant ne peut être qualifié d'universel et les performances de chacun varient d'un prélèvement à l'autre suivant la composition du mélange à analyser.

La meilleure sensibilité de la thermodésorption est incontestable puisqu'en moyenne, les analyses effectuées avec le Tenax ont abouti à l'identification et la quantification d'environ 3 à 4 fois plus de composés qu'avec le charbon actif alors qu'en théorie, le Tenax est un adsorbant très nettement inférieur au charbon actif.

VI.4 : Effet de l'humidité sur la qualité de l'analyse

L'emploi de tubes à charbon actif ou de tubes Sphérocarb sur des effluents humides peut poser des problèmes du fait de leur caractère hydrophile. En effet, les sites d'adsorption se trouvent bloqués par les molécules d'eau, la capacité d'adsorption du tube est alors réduite et le perçage du tube (ou de la première partie du tube dans le cas du charbon actif) peut survenir à de plus faibles volumes de prélèvement. Il est alors possible pour le charbon actif d'observer des concentrations plus élevées sur la seconde partie du tube que sur la première (Harper, 2000). Pour ces deux adsorbants, il est impératif de travailler sur des gaz relativement secs. Concernant les polymères poreux : Tenax et Chromosorb 106, les désagrément liés à l'humidité sont moins marqués puisque ces deux adsorbants sont peu perturbés par l'eau (Gawlowski et al., 1999). En règle générale, quel que soit l'adsorbant, les problèmes apparaissent à partir d'une humidité relative supérieure à 50%, il semble donc intéressant de pratiquer la dilution des effluents très humides avant leur analyse afin d'abaisser leur humidité relative.

VI.5 : Qualité d'adsorption du Tenax et du charbon actif

Les secondes parties des tubes à charbon actif ont été systématiquement analysées. La masse de polluant retrouvée sur cette partie a été en moyenne inférieure à 5 % de la masse piégée sur la première partie.

La même expérience a été effectuée avec les tubes Tenax en plaçant 4 tubes en série. Les résultats des analyses d'un biogaz pour 4 volumes de prélèvement présentés dans le Tableau 22, montrent que pour un prélèvement inférieur à 50 mL, le tube placé en seconde position piège moins de 2,5% de la masse totale piégée par la série de 4 tubes. Le second tube révèle certains composés légers absents du premier tube ainsi que des traces des composés majoritaires qui ont légèrement percé le premier tube.

Position du tube		1/4	2/4	3/4 4/4		Surface totale	Concentration totale (mg.Nm ⁻³ équ. toluène)		
Volume de prélèvement (en mL)	22	98,6 %	0,8%	0,6%	0,0%	1,41 E+10	317,0		
	54	96,8%	2,3%	0,4%	0,5%	3,38 E+10	312,8		
	116	97,5%	1,3%	0,9%	0,3%	5,42 E+10	234,6		
	150	91,6%	7,5%	0,5%	0,4%	5,43 E+10	180,9		

Tableau 22 : Résultats des analyses d'un biogaz en fonction du volume de prélèvement

Les tubes Tenax présentent donc des performances d'adsorption tout à fait satisfaisantes dans la mesure où le volume de prélèvement est adapté. En effet, plus le volume de prélèvement est élevé, plus la masse de composés qui percent est importante.

Cependant, cette expérience a permis de mettre en évidence un phénomène de perçage du piège froid du thermodésorbeur. En effet, si les 4 tubes en série sont considérés comme un seul et même tube rien n'indique un perçage des tubes étant donné les faibles quantités de COV retrouvées sur le 4^{ème} tube. Or, la courbe qui représente la quantité totale piégée sur les 4 tubes (exprimée en surface totale des pics chromatographiques) en fonction du volume de prélèvement est caractéristique d'un phénomène de perçage (cf. Figure 31).



Figure 31 : Représentation de la quantité de composés piégée sur tube Tenax en fonction du volume de prélèvement

La quantité de COV piégés sur le premier tube Tenax peut être telle qu'il est possible de saturer le piège froid du thermodésorbeur, qui, même s'il est refroidi à 0°C contient une quantité d'adsorbant très inférieure à celle contenue dans le tube de prélèvement. De plus, le thermodésorbeur UNITY de Markès ne permet pas de piéger sur un second piège l'effluent qui transite au travers du piège froid lors de la désorption primaire. L'utilisation de split lors de la désorption primaire, qui permet de n'envoyer qu'une partie des produits sur le piège froid peut être une solution pour s'affranchir de ce problème. Il est possible aussi de remplacer le piège composé de Tenax par un piège plus puissant de type AIR TOXIC par exemple ou d'abaisser la température du piège pour améliorer sa capacité d'adsorption. Pour la présente étude, il a été décidé de procéder à des prélèvements de très faibles volumes (25 mL) et ainsi d'éviter les incertitudes d'analyse supplémentaires liées à la mise en place d'un split.

La mise en série de trois tubes complémentaires, dans l'ordre croissant de leur capacité d'adsorption (Tenax-chromosorb-Sphérocarb), chacun analysé séparément dans les conditions analytiques adéquates, a permis de confirmer les bonnes performances des tubes Tenax. En effet, en moyenne pour des prélèvements de 25 mL sur du biogaz, moins de 5% du total des composés piégés sont retrouvés sur le Chromosorb en seconde position et moins de 1% sur le Sphérocarb. Un exemple de spectres des trois tubes en série est donné en Figure 32.



Figure 32 : Chromatogrammes d'un Tenax, un Chromosorb 106 et un Sphérocarb en série

Il est intéressant de remarquer sur ce chromatogramme le pic important de CO_2 que présente le chromatogramme du Sphérocarb (en jaune, temps de rétention = 4,20 min). Ceci illustre très bien la puissance d'adsorption du Sphérocarb. Les essais réalisés sur du biogaz ont montré qu'un tel adsorbant, s'il est utilisé seul, se montre inadapté à l'analyse

d'effluents chargés. La saturation de l'adsorbant est extrêmement rapide et la désorption complète des polluants piégés s'avère difficile. De plus, la teneur en CO_2 du biogaz ou des effluents de compostage entraîne des interférences. Le Chromosorb quant à lui se comporte comme un second tube Tenax en piégeant moins de 5 % de la masse totale de polluant piégé. Néanmoins, cet adsorbant rend possible l'identification de traces de formaldéhyde ou de pentane.

VI.6 : Répétabilité des mesures

Les réplicats effectués sur une trentaine de point de mesure ont permis de conclure à une très bonne répétabilité des analyses Tenax et charbon actif. A volume de prélèvement égal, les spectres chromatographiques se superposent très bien et les écarts relatifs moyens sur la concentration totale calculée sont respectivement de 13,5 % et 11,4 % pour le charbon actif et le Tenax. Ces valeurs sont surestimées du fait de la prise en compte dans le calcul de composés légers tels que le 2-méthyl-butane, le pentane, l'acétone, la 2-butanone dont le rendement d'adsorption varie beaucoup d'un prélèvement à l'autre. Pour le toluène par exemple, l'écart relatif moyen est de 7,9 % pour le charbon actif, il est de 2,1 % pour l'éthyl-cyclohexane sur le Tenax. La pratique de réplicats pour l'analyse des COV ne semble donc être justifiée que pour palier à un éventuel problème technique lors de l'analyse. L'exploitation des spectres étant relativement longue, il est possible d'analyser le réplicat du charbon actif en une seule fois (1^{ère} et 2^{ème} partie à la fois). Par contre pour les Tenax, l'analyse de deux spectres chromatographiques en parallèle apporte une aide considérable pour l'identification des composés qui peut se révéler complexe en cas d'échantillons très chargés.

VI.7: Conclusion

L'analyse des COV dans un biogaz de décharge ou un effluent de compostage est relativement complexe du fait, d'une part, de la diversité et des concentrations élevées des composés et d'autre part, du fait de la matrice gazeuse qui présente toutes les conditions les plus défavorables pour une analyse de traces. L'humidité du flux gazeux est le principal facteur qui génère des interférences sur l'analyse.

L'utilisation d'un adsorbant polyvalent comme le Tenax semble donner le meilleur résultat même si les tubes multicouches semblent être très satisfaisants (Allen et al., 1996). L'utilisation de ce genre de tubes entraîne une gamme de composés piégés encore plus importante qui nécessite des conditions analytiques optimales, notamment l'utilisation d'une colonne chromatographique qui opère une séparation de qualité (une colonne de 60 m plutôt que 30 m semble alors obligatoire). Le Chromosorb 106 offrirait une meilleure capacité d'adsorption notamment pour les composés légers et polaires. Cependant, dans les conditions d'analyse retenues pour cette étude, les Chromosorb 106 sont très sensibles aux concentrations élevées rencontrées dans les différents effluents et souffrent d'une rapide saturation du spectre qui devient difficilement exploitable. Une colonne chromatographique plus longue conviendrait mieux à ce type de tube. Quant au Sphérocarb, il est inutilisable sur un effluent humide et se sature très rapidement du fait de sa capacité d'adsorption des composés légers, nombreux dans ce type d'effluents gazeux.

Dans un souci de continuité des données, au-delà des différents tests réalisés durant ce travail, il a été réalisé pour chaque point de mesure un tube charbon actif et un tube Tenax qui ont servi à l'obtention des flux émissifs de COV.

PARTIE 3 RESULTATS

PARTIE 3 : RESULTATS

La présente partie a pour objectif de présenter les résultats obtenus tout au long du travail de thèse. Elle se décompose en 4 principaux chapitres.

Le premier permet de définir le déchet utilisé pour cette étude selon sa composition massique et granulométrique, son potentiel de lixiviation ainsi que sa réactivité biologique.

Le second chapitre a trait au prétraitement biologique des déchets qui est étudié séparément. Son intégration dans les deux filières de PTB étudiées est faite dans le 4^{ème} chapitre.

Le troisième chapitre expose les différents résultats issus du suivi des casiers de stockage. Bien que la présentation apparaisse redondante, il a été décidé pour une raison de clarté, de traiter les casiers les uns après les autres plutôt que d'exposer chaque aspect du suivi pour les 4 casiers à la fois. La similitude des deux casiers ayant reçu des déchets prétraités (PTB1 et PTB2) a cependant permis d'exposer leurs données dans un chapitre commun.

Le quatrième chapitre réuni les résultats du traitement biologique et des casiers PTB dans des bilans sur les filières de prétraitement avant enfouissement et les confronte aux bilans des filières Conventionnelle et Bioréacteur.

Le dernier chapitre revient sur les performances des techniques d'analyse des COV dans le biogaz et présente une analyse statistique des données issues du suivi de la composition en COV du biogaz des casiers de stockage.

Chapitre I : Caractérisation du déchet entrant

I.1 : Composition massique du déchet

La composition du déchet et sa répartition granulométrique (en $%_{MH}$) calculées à partir du tri de 500 kg de déchet sont données en Figure 33. L'humidité initiale du déchet entrant est de 28,1 %.

La fraction fermentescible des déchets étudiés est composée à 54 % de déchets de cuisine et jardin et à 46 % de papiers/cartons.



Figure 33 : Composition massique du déchet et sa répartition granulométrique

Le taux de matière organique du déchet entrant mesuré par perte au feu est de 62 %. La teneur en COT initiale du déchet est de 223 kg $C.t_{MS}$ ⁻¹, soit 160 kg $C.t_{DE}$ ⁻¹. La teneur CIT n'a pas été mesurée. La teneur en azote Kjeldahl du déchet frais est de 10,8 kg N_{TK} . t_{MS} ⁻¹, soit 7,8 kg N_{TK} . t_{DE} ⁻¹. Les teneurs en nitrates et nitrites n'ont pas été mesurées et seront négligées dans les bilans azote.

La composition massique du déchet après traitement mécanique reste identique (les pertes d'humidité par évaporation lors du broyage sont négligeables) et seule sa répartition granulométrique change, elle est donnée en Figure 34. La fraction supérieure à 100 mm, majoritaire pour le déchet brut ne représente plus que 27 % en masse du déchet humide alors que la fraction fine < 20 mm est passée de 27 à 33 %.

La réduction granulométrique due au broyage grossier des déchets peut permettre un meilleur contact entre les microorganismes, les nutriments et la matière organique du fait de l'augmentation de la surface spécifique des déchets (Barlaz et al., 1990). L'hydrolyse des macromolécules organiques est facilitée et la biodisponibilité de la matière organique est ainsi augmentée. Le broyage grossier permet d'améliorer la perméabilité aux gaz du déchet tout en améliorant sa cohésion qui lui confère une fois mis en andain une meilleure inertie thermique. Chang (1993) indique que le broyage permet une augmentation significative de la densité de placement du déchet mis en décharge. Ce résultat est discuté

au paragraphe III.2.1 de la présente partie, en comparant la densité initiale des déchets dans le casier Témoin, qui n'ont pas subi de broyage, avec celle dans le Bioréacteur.



Figure 34 : Répartition granulométrique du déchet après traitement mécanique

I.2 : Comportement du déchet à la lixiviation

Remarque :

Le test de lixiviation du déchet a été réalisé au Laboratoire d'Analyse Environnementales des Procédés et Systèmes Industriels (LAEPSI) de l'INSA de Lyon par Joacio MORAIS dans le cadre d'une collaboration entre le LAEPSI et le CRP (Morais et al., 2005, 2006).

Le déchet brut utilisé pour les expérimentations n'a pu subir de test de lixiviation. Pour palier à ce manque, un déchet brut, provenant du même gisement et prélevé à la même époque, un an après (fin août 2004), a été utilisé pour déterminer le potentiel de lixiviation selon la norme NF 12457-4 (analyses sur lixiviats filtrés). Les résultats de ce test de lixiviation sont présentés dans le Tableau 23.

Test de lixiviation : Déchet brut										
рН	$6,0\pm0,1$	NTK (mg.L ⁻¹)	128,0							
Eh (mV vs ENH)	450 ± 11	NO_{2}^{-} (mg.L ⁻¹)	< 0,01							
Conductivité (µS.cm ⁻¹)	4230	NO_{3}^{-} (mg.L ⁻¹)	10,30							
COT (mg.L ⁻¹)	1023	SO_4^{2-} (mg.L ⁻¹)	475							
DCO (mg $O_2.L^{-1}$)	5500	$PO_4^{3-}(mg.L^{-1})$	10,80							
DBO ₅ (mg O ₂ .L ⁻¹)	1690	Mn (mg. L^{-1})	5,3							
DCO / DBO ₅	3,25	Fe (mg.L ⁻¹)	8,77							

Tableau 23 : Résultats du test de lixiviation pratiqué sur le déchet brut

La DCO mesurée sur les déchets indique un potentiel important de relargage de matière organique notamment des acides organiques responsables du pH acide caractéristique d'un déchet frais. La matière organique lessivée est facilement biodégradable comme l'indique l'importante DBO₅. La présence importante de $PO_4^{2^-}$ est caractéristique d'un déchet frais

puisque le phosphore est rapidement consommé par les microorganismes ou facilement lessivé (François, 2004).

I.3 : Caractérisation de la réactivité biologique du déchet

Le déchet brut placé dans les casiers Bioréacteur et Témoin et en andain pour le traitement biologique présente un AT₄ de 82,9 \pm 2,5 mg O₂.g_{MS}⁻¹ et un potentiel total de formation de biogaz de 210 \pm 42 NL.kg_{MS}⁻¹, ce qui représente un BMP de 108 \pm 22 NL CH₄.kg_{MS}⁻¹. Le potentiel de production de biogaz en 21 jours est de 136 \pm 27 NL.kg_{MS}⁻¹.

Chapitre II : Prétraitement biologique des déchets

II.1 : Déroulement de l'expérimentation



Figure 35 : Représentation schématique du déroulement du prétraitement biologique avant enfouissement

Au total, 37,46 tonnes de déchets frais (\pm 20 kg), ayant subi le prétraitement mécanique, ont été disposées en andain de 21 m de long sur environ 6 m de large et 2 m de haut. L'humidité initiale de 28,1 %, trop faible pour garantir les conditions optimales pour le développement de l'activité biologique, a été augmentée à 48,1 % par l'addition de 385 L.t_{DE}⁻¹. La densité humide initiale de placement a été évaluée à environ 0,2 t.m⁻³ en estimant le volume de l'andain.

L'andain a été retourné et humidifié une première fois à la $10^{\text{ème}}$ semaine de traitement où 120 L.t_{DE}⁻¹ ont été ajoutés. A la douzième semaine de traitement, 11,30 tonnes (± 10 kg) de déchets ont été enfouies dans le casier PTB1. A cette occasion, le déchet restant a été reconstitué en andain d'une longueur d'environ 7 m pour 6 m de largeur et 3,5 m de hauteur. La totalité du déchet restant a donc été retourné. Le traitement biologique s'est ensuite poursuivi pendant 13 semaines durant lesquelles l'aération pilotée a été significativement réduite afin de simuler une période de maturation (cf. Graphique 1). Au terme des 25 semaines de traitement biologique, 10,66 tonnes (± 10 kg) de déchets ont été enfouies dans le casier PTB2. Au total, les deux arrosages (initial et à la semaine 10) ont permis l'ajout de 505 L.t_{DE}⁻¹.

Les prélèvements sur solide permettant le suivi des paramètres physicochimiques et biologiques des déchets ont été réalisés de manière hebdomadaire pendant les 10 premières semaines puis toutes les 2 à 3 semaines durant les 15 semaines suivantes (cf. Figure 35).

II.2 : Evolution des paramètres procédés

II.2.1 : Température de l'andain

L'évolution de la température de l'andain est présentée sur le Graphique 1. Les déchets, à une température initiale proche de la température ambiante, présentent une montée en température dès leur mise en andain du fait d'une activité biologique intense liée à la dégradation de matières organiques facilement biodégradables (Francou, 2004). La température atteint dès la première semaine les 60-70°C et se maintient pendant les 10 premières semaines entre 50 et 70°C. Les retournements des semaines 10 et 12 provoquent d'abord un léger refroidissement du massif suite au contact du déchet avec l'air ambiant puis une nette remontée en température qui est à mettre à l'actif de l'activité des microorganismes. Les températures élevées (> 70°C) atteintes après le second retournement peuvent être expliquées, d'une part, par la nette diminution de l'aération dès la douzième semaine qui diminue l'évacuation de la chaleur produite par les microorganismes par l'air insufflé et, d'autre part, par la reconstruction d'un andain plus compact et plus haut apportant au déchet une meilleure inertie thermique. A cette période, l'électronique de la sonde de température a subi des donmages dus au gel qui expliquent les variations de température. L'acquisition des données de température a du être interrompue à la semaine 16 suite à la défaillance de la supervision du procédé d'aération pilotée.



Graphique 1 : Evolution de la température et de l'aération de l'andain

II.2.2 : Aération de l'andain

L'aération de l'andain, pilotée suivant le taux d'oxygène durant les 12 premières semaines de la phase intensive, a varié entre 2,9 et 144,1 $\text{Nm}^3.t_{\text{DE}}^{-1}.jour^{-1}$. Le taux d'aération a atteint durant cette période 5183 $\text{Nm}^3.t_{\text{DE}}^{-1}$ (cf. Graphique 1). Les 13 semaines suivantes ont permis à l'aide d'une temporisation très faible de la ventilation de simuler une phase de maturation. Durant cette période, l'aération a varié entre 2,1 et 6,2 $\text{Nm}^3.t_{\text{DE}}^{-1}.jour^{-1}$ pour un taux d'aération total de 297 $\text{Nm}^3.t_{\text{DE}}^{-1}$.

Au total, 5480 $\text{Nm}^3.\text{t}_{\text{DE}}^{-1}$ ont été insufflés au travers du massif dont près de 95 % durant les 12 premières semaines de traitement. Ce taux d'aération est relativement inférieur à ce qui est couramment appliqué sur des sites allemands (14000-32000 $\text{Nm}^3.\text{t}_{\text{DE}}^{-1}$, cf. Tableau 7). En Allemagne, la demande en oxygène ramenée à la tonne de déchets entrant le traitement biologique est cependant plus importante étant donnée la séparation

d'une moitié environ du flux de déchet qui contient une grande part non biodégradable (en particulier les plastiques).

II.2.3 : Taux de consommation d'oxygène

Le taux d'oxygène a été enregistré en continu durant les 16 premières semaines jusqu'à la défaillance de la centrale d'acquisition. Le taux d'oxygène dans les pores du déchet a varié entre 8 et 21 %. Les écarts entre les valeurs mesurées et les valeurs de consigne utilisées pour le pilotage de l'aération (respectivement 10 et 17 %, cf. Figure 12) tiennent au fait que la mesure d'oxygène a été effectuée avec une sonde déportée impliquant 30 m de canalisation et deux pots de purge pour les condensats et ainsi une augmentation significative du temps de réponse de la mesure de l'O₂. L'aération a donc été déclenchée et stoppée avec du retard (de l'ordre de 2 à 3 min).

Néanmoins, les concentrations en oxygène dans les pores du massif, enregistrées toutes les 10 minutes, ont permis de calculer un taux de consommation de l'oxygène en rassemblant les données relatives à chaque période consécutive à une phase d'aération (cf. Graphique 2). Celui-ci est exprimé en points d'oxygène consommé par heure.



Graphique 2 : Evolution du taux de consommation de l'oxygène durant le traitement

Ce taux de diminution de la teneur en oxygène dans les pores permet de décrire qualitativement et en continu l'évolution de la réactivité biologique du déchet dans l'environnement proche de la sonde à oxygène. En effet, plus le taux est élevé, plus le déchet consomme l'oxygène rapidement et donc plus le déchet peut être qualifié de réactif biologiquement. Le Graphique 2 montre clairement une décroissance exponentielle de la réactivité du déchet durant les 10 premières semaines de traitement. Il est possible de remarquer quelques regains de consommation d'oxygène qui peuvent être reliés soit aux différents prélèvements solides qui, en nécessitant l'ouverture de l'andain sur deux mètres à deux endroits, ont joué le rôle de mini-retournements, soit au changement de place de la sonde dans l'andain. Les deux retournements aux 10^{em} et 12^{em} semaines sont clairement mis en évidence par un regain d'activité, surtout pour le second retournement. Cette observation est en accord avec la nette remontée de température observée dans le paragraphe précédent. La baisse brutale de la réactivité entre la 12^{em} et la 14^{em} semaine de traitement peut être reliée aux températures élevées relevées dans l'andain (> 65° C) qui ont pu être fatales pour les microorganismes. Une description plus quantitative de la réactivité biologique du déchet est donnée par l'évolution de l'indice respirométrique du déchet (AT₄) (cf. II.3.3.1).

II.3: Paramètres « solide »

Le Tableau 24 présente l'évolution des paramètres solides durant le traitement biologique.

Durée	Répartition granulométrique	Humidité	Matières volatiles ²	GB_{21} / GB_{inf}	AT_4^2
(semaines)	(% / % / % / %) ¹	(% _{MH})	(% _{MS})	$(NL \cdot kg_{MS}^{-1})$	$(mg O_2.g_{MS}^{-1})$
0	32,8 / 18,9 / 21,5 / 26,9	48,1 ³	61,9	135,6 / 209,9	82,9
1	29,9 / 19,5 / 22,0 / 28,6	36,0	60,8	-	-
2	35,6 / 18,7 / 20,6 / 25,2	35,0	59,4	-	-
3	43,2 / 18,1 / 18,4 / 20,3	28,0	58,1	-	-
4	38,2 / 20,1 / 17,5 / 24,3	33,9	57,4	80,0 / 181,3	58,7 / 57,6
5	32,2 / 20,1 / 18,7 / 29,0	30,2	55,9	55,6 / 141,8	51,0
6	34,9 / 19,6 / 21,4 / 24,2	34,9	53,1	73,1 / 131,3	37,0 / 40,0
7	41,7 / 18,3 / 17,5 / 22,5	36,3	53,3	86,8 / 152,4	39,0
8	40,9 / 18,4 / 15,8 / 24,9	31,4	53,5	48,7 / 95,2	35,3
9	42,5 / 17,1 / 17,6 / 22,8	32,4	52,9	52,3 / 128,9	34,0
10	41,4 / 17,7 / 15,6 / 25,3	48,6 ³	51,0	35,2 / 63,7	32,0
12	32,1 / 18,0 / 17,2 / 32,7	40,2	48,0	19,6 / 59,0	29,0
14	52,3 / 17,7 / 11,7 / 18,4	39,0	45,9	6,8 / 31,5	25,0
16	51,9 / 16,9 / 14,7 / 15,5	44,0	38,0	19,3 / 39,4	20,5
19	50,6 / 17,5 / 15,3 / 16,6	40,0	37,7	13,2 / 28,6	16,9
22	53,2 / 13,8 / 16,3 / 16,7	37,0	38,3	17,5 / 31,7	25,8
25	52,0 / 14,2 / 14,3 / 19,5	37,1	39,4	12,3 / 19,5	16,0

¹ (fraction < 20 mm / fraction 20 - 50 mm / fraction 50 - 100 mm / fraction > 100 mm) sur la masse humide

² Sur la fraction broyée et tamisée à 10 mm

³ Après l'addition d'eau

Tableau 24 : Evolution des paramètres « solide » durant le traitement biologique

II.3.1 : Répartition granulométrique du déchet

L'étude de l'évolution de la répartition granulométrique du déchet en fonction de la durée de traitement montre l'effet bénéfique des retournements successifs des 10 et 12^{ème} semaines. En effet, ceux-ci permettent une augmentation de la fraction fine. La composition granulométrique du déchet prétraité durant 25 semaines se rapproche d'un déchet âgé pour lequel la fraction fine est majoritaire (Francois, 2004).

En l'absence d'un broyage poussé en amont du traitement biologique, les retournements permettent de compenser au moins partiellement la trop grosse granulométrie du déchet peu favorable au développement des microorganismes (Komilis et al., 1999). De plus, les retournements entraînent un réarrangement et une homogénéisation de la matière qui permettent, d'une part, de casser les chemins préférentiels de l'air qui se constituent dans le massif au cours du traitement et, d'autre part, de relancer la colonisation microbiologique de la matière organique nouvellement disponible. Au terme du traitement biologique, encore 19,5 % du déchet présente une granulométrie supérieure à 100 mm. Cette fraction est principalement composée de plastiques, de bois et de métaux. La fraction fine, qui représentait au départ 32,8 % de la masse humide, atteint en fin de traitement 52,0 %. Il semble qu'il existe un phénomène de transfert des fractions grosses et moyennes vers la fraction fine, du fait de la dégradation progressive des composants du déchet (Olivier, 2004). Ce phénomène a été décrit par François (2004) sur des déchets de différents âges enfouis en CSD puis excavés.



Graphique 3 : Evolution de la répartition granulométrique du déchet

II.3.2 : Perte de masse liée à l'activité biologique

La perte de masse a été estimée grâce à la formule explicitée au paragraphe V.5.1.3 (partie 2), suivant l'hypothèse de conservation massique de la matière minérale. Le Graphique 4 représente l'évolution des différents compartiments de la matière ainsi que la perte de masse associée durant le traitement biologique. Les calculs ne prennent pas en compte les prélèvements solides réalisés durant l'expérimentation (au total 2,28 t de prélèvements) ainsi que l'enfouissement des déchets prétraités sommairement en semaine 12 (11,30 t). Le graphique représente ainsi l'évolution de l'andain en considérant que le déchet prélevé se serait comporté comme le déchet restant dans l'andain.

La perte de masse humide atteint 28 % au bout de 25 semaines de traitement (de 37,46 à 26,90 t). Elle correspond à la minéralisation de la matière organique biodégradable pour 27 % et à la perte en eau pour 1 %. L'addition d'eau au cours du procédé (505 $L.t_{DE}^{-1}$) compense les pertes en eau puisque la masse d'eau dans le déchet final (9,98 t) est très similaire à celle initialement contenue dans le déchet entrant le traitement biologique (10,53 t). La perte de masse sèche est de 37 % (de 26,93 à 16,92 t) après 25 semaines. Celle-ci est relativement linéaire jusqu'à la 15^{ème} semaine (minéralisation de la matière organique biodégradable). Les 10 semaines suivantes ne présentent pas de variations

significatives de la masse sèche, conformément aux observations faites sur la consommation d'oxygène (cf. Graphique 2).



Graphique 4 : Evolution de la perte de masse durant le traitement biologique

Au cours des 12 premières semaines de traitement, la matière sèche a été réduite de 27 %. La perte de masse humide n'a été que de 12 % du fait de l'addition d'eau à la 10^{em} semaine de traitement.

La matière organique totale (mesurée par perte au feu) a été réduite de 43 % en 12 semaines (ce qui correspond à une diminution de la MO de 13,9 points) et de 60 % après 25 semaines de traitement (baisse de 22,5 points). La perte de matière organique totale, assimilable à la perte de matière organique biodégradable, atteint 10,01 tonnes, soit 267 kg.t_{DE}⁻¹.

II.3.3 : Paramètres de stabilité de la matière organique

$\mathsf{II.3.3.1}:\mathsf{AT}_4$

La réactivité biologique du déchet mesurée par respirométrie statique (AT₄) diminue de manière exponentielle au cours du traitement biologique. L'AT₄ est réduit de 65 % durant les 12 premières semaines de traitement passant de 82,9 à 29,0 mg $O_2.g_{MS}^{-1}$. Il atteint 16,0 mg $O_2.g_{MS}^{-1}$ après 25 semaines de traitement, soit une réduction de 81 % en tenant compte des pertes de masse au cours du traitement biologique. Il n'existe pas de données avec lesquelles il est possible de comparer ces performances. En effet, les performances en terme d'abattement de l'AT₄ relevées dans la littérature allemande proviennent d'expérimentations alliant procédés intensifs et traitement de la fraction fine, relativement éloignées des présentes conditions expérimentales. Celles-ci montrent néanmoins qu'il est possible d'atteindre un AT₄ de 5 mg $O_2.g_{MS}^{-1}$ en seulement 20 semaines (Von Felde et al., 1997) ou même 16 semaines (Leikam et al., 1997 ; Von Felde et al., 1999a).



En extrapolant la cinétique de baisse de l' AT_4 (cf. Graphique 5), il aurait fallu environ 43 semaines de traitement pour atteindre le seuil de la réglementation Allemande.

Graphique 5 : Evolution de la réactivité biologique du déchet

II.3.3.2 : GB_{inf} / BMP



Graphique 6 : Evolution du potentiel de production de biogaz et de méthane

Le déchet entrant qui présentait un potentiel de production de biogaz de 210 \pm 42 Nm³.t_{MS}⁻¹ a perdu plus de 90 % de son potentiel qui atteint 22 \pm 4 Nm³.t_{MS}⁻¹ après 25 semaines de traitement. Le potentiel de formation de méthane (BMP) initialement de 108 \pm 22 Nm³ CH₄.t_{MS}⁻¹ atteint 9 \pm 2 Nm³ CH₄.t_{MS}⁻¹ après 25 semaines. Le déchet enfoui dans

le casier PTB1 après 12 semaines de traitement présente des potentiels de formation de biogaz et de méthane respectivement de 59 \pm 12 Nm³.t_{MS}⁻¹ et 32 \pm 6 Nm³ CH₄.t_{MS}⁻¹.

II.3.4 : Influence de la préparation de l'échantillon sur la qualité des analyses sur le solide

Durant le suivi du prétraitement biologique, il a été possible d'appréhender l'influence de la préparation de l'échantillon sur les résultats des analyses solides. La fraction inférieure à 10 mm issue directement du criblage d'un échantillon de déchet, appelée « fraction tamisée » a été comparée à la fraction appelée « fraction broyée/tamisée », inférieure à 10 mm obtenue après le broyage et le criblage d'un échantillon. Les deux méthodes de préparation, qui n'impliquent pas le même travail ni le même matériel, aboutissent à des résultats significativement différents. Quantitativement, les analyses AT_4 réalisées sur la « fraction tamisée/broyée » sont supérieures de 22 à 55 % aux AT_4 obtenus avec la « fraction tamisée ». Les mêmes observations peuvent être faites pour la MO (perte au feu) ou le potentiel de production de biogaz ou de méthane.

Ainsi, une mauvaise préparation d'un échantillon, même s'il est de taille suffisante pour assurer une bonne représentativité (~ 140 kg), peut entraîner d'importantes erreurs d'interprétation conduisant à la surestimation des performances du traitement biologique ou à la sous-évaluation des impacts environnementaux d'un déchet destiné à être enfoui. L'influence la préparation a été discutée plus en détail dans Lornage et al. (2006).

II.3.5 : Discussion

L'observation des différents paramètres permet de mettre en évidence 5 phases distinctes :

• une rapide montée en température du déchet durant les premiers jours,

• une première phase intensive jusqu'à la semaine 6 où environ 30 % de la matière organique a été dégradée,

• la stagnation de l'activité biologique entre les 6^{ème} et 10^{ème} semaines particulièrement bien matérialisée par les analyses de la matière organique,

• la reprise de l'activité biologique à partir de la semaine 10 et surtout après le second retournement semaine 12,

• puis à partir de la semaine 15, une période sans grande évolution quels que soient les paramètres.

Le choix d'un procédé simple et peu coûteux ainsi que le prétraitement de l'ensemble du flux de déchet ont influencé les performances du traitement biologique. Les cinétiques de la dégradation de la matière organique ainsi que l'abattement de la réactivité du déchet ont été en dessous des performances de procédés plus intensifs reportées dans la littérature allemande. Il est tout de même important de rappeler que seule la fraction fine est traitée biologiquement en Allemagne, contrairement à la présente expérience où l'intégralité du flux de déchet est traité. Le dispositif a permis néanmoins une réduction significative du potentiel méthanogène (90 % en 25 semaines) ainsi qu'une réduction de masse intéressante du déchet mis en décharge (28 %).

L'assèchement du massif au cours des premières semaines de traitement (humidité de 28,0 % dès la 3^{ème} semaine) a été sans doute un paramètre limitant le bon déroulement du traitement et peut sans doute expliquer en partie les performances moyennes du procédé. La réduction des pertes en humidité après la semaine 12 peut être expliquée par la baisse significative du débit d'aération (de 1817 à 321 Nm³.h⁻¹), ceci malgré des températures encore élevées (supérieures à 70°C). Le taux d'aération faible (5480 Nm³.t_{DE}⁻¹) peut aussi expliquer une oxygénation non optimale du massif. Une aération plus élevée aurait par ailleurs accentué le processus d'assèchement du déchet.

Les retournements effectués les 10^{ème} et 12^{ème} semaines jouent un rôle fondamental. Des retournements plus fréquents auraient sans doute permis une meilleure stabilisation du déchet pour une durée de traitement identique.

La composition du déchet entrant, et en particulier la teneur importante en papiers/cartons des ordures ménagères (25,4 %_{MH} dans les déchets entrants) est un paramètre important qui influence les performances du procédé. En effet, les papiers/cartons ont une cinétique de dégradation plus lente que les fractions biodégradables type cuisine/jardin (Komilis et al., 2006), du fait de leur teneur en cellulose et hémicellulose élevée (Mustin, 1987). Ainsi, en cas de séparation de la fraction grossière qui contient une grande part des papiers/cartons, la fraction organique biodégradable résiduelle présentera une cinétique de stabilisation plus rapide qu'en cas du traitement de l'ensemble du flux de déchet. L'absence d'une réduction granulométrique significative (au moins inférieure à 80 mm) participe à l'allongement des cinétiques de dégradation.

II.4 : Emissions liquides

II.4.1 : Production de jus

Les jus produits lors du traitement biologique ont été recueillis gravitairement au point bas à l'extrémité de l'andain. Des pesées régulières ont permis le suivi de la production de jus au cours des 14 premières semaines. Ensuite, aucun jus n'a été collecté. Le Graphique 7 représente l'évolution de la production cumulée et journalière de jus durant le prétraitement biologique.

Au total, 1974 kg de jus ont été produits au cours de la stabilisation biologique, soit environ 53 kg.t_{DE}⁻¹. La production a varié de 0,3 à 0,9 L.(t_{DE}.j)⁻¹ lors des 12 premières semaines, la production des semaines 13 à 14 a été réduite à moins de 0,04 L.(t_{DE}.j)⁻¹. La production de jus représente 10,5 % de l'eau ajoutée à l'andain (505 L.t_{DE}⁻¹), ce qui prouve une bonne mouillabilité des déchets et laisse supposer un important phénomène d'évaporation. La production de jus des 3 premières semaines peut être reliée à la production d'eau par l'activité biologique intensive, au ruissellement de l'eau ajoutée à t = 0 et par un tassement primaire du massif de déchet. La production soutenue des semaines suivantes montre un égouttage progressif du déchet.



Graphique 7 : Evolution de la production cumulée de jus

Cette production de jus peut apparaître importante au regard de la littérature qui ne mentionne que des productions faibles voire nulles de lixiviats pour les installations de PTB. Cette singularité peut être expliquée par la présence de la double couverture qui, en permettant la condensation de la vapeur d'eau, a favorisé la réinfiltration de celle-ci au cœur du massif. De plus, l'humidification initiale du déchet dans les unités industrielles est souvent pratiquée dans un mélangeur ou un tunnel d'homogénéisation. Ces procédés permettent une meilleure absorption de l'eau par les déchets qui la relarguent moins facilement.

II.4.2 : Qualité des jus produits

Les jus collectés ont été caractérisés à l'aide des kits d'analyse rapide Dr LANGE. Les résultats des analyses, corrigés grâce aux corrélations effectuées avec les analyses normées réalisées en parallèle (cf. Annexe 1), sont présentés dans le Tableau 25.

L'augmentation du pH des jus durant le traitement tient au phénomène d'alcalinisation du milieu dû à la production d'ammoniaque à partir de l'azote protéique et organique et à la libération des bases auparavant intégrées dans la matière organique (Mustin, 1987).

Une augmentation du lessivage des différentes espèces est clairement mise en évidence par les différentes analyses (conductivité, DCO, chlorures) lors de l'arrosage et du retournement de la semaine 10. Les nitrates présentent un pic à la semaine 10 mettant en évidence une augmentation du processus de nitrification en accord avec l'activation des processus biologiques mise en avant par les consommations d'oxygène au paragraphe II.2.3. Le pic d'AGV de 14 700 mg.L⁻¹ mesuré lors de la première semaine de traitement met en évidence l'activité des bactéries acidogènes en parallèle de l'action hydrolytique des bactéries dès les premiers jours de traitement.

Durée traitement	Volume collecté	рН	Cond.	AGV*	DCO	сот	СІТ	N _{total}	NO ₃ ⁻	${\rm NH_4}^{\star}$	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Fe	P _{total}	SO4 ²⁻	CI
Semaines	L	-	µS.cm ⁻¹	mg.L ⁻¹	mg 0 ₂ .L ⁻¹	mg C.L ⁻¹		$mg N . L^{-1}$		mg.L ⁻¹		mg P.L ⁻¹	L ⁻¹ mg.L ⁻¹			
0	recirculé	3,66	8 760	1 260	19 387	5 110	842	708	16		1 506	346	19	65	1 160	1 606
1	194	6,29	8 360	14 700	10 099	-	893	769	9	440	2 041	333	18	69	549	1 230
2	218	6,97	8 830	2 160	7 506	1 501	709	1 321	6	-	1 347	542	23	29	569	521
3	203	7,23	8 670	1 290	6 150	-	309	838	9	770	478	99	18	23	424	599
4	184	7,34	9 110	540	3 056	517	284	868	9	-	507	72	15	21	356	557
5	88	7,43	8 110	1 004	2 170	-	202	744	7	-	398	52	11	16	230	608
6	119	7,49	7 580	810	1 911	-	200	530	10	-	402	76	9	16	238	589
7	115	7,30	7 160	600	1 897	554	307	777	9	-	919	44	8	13	216	835
8	171	7,96	6 320	480	1 164	-	111	-	7	290	291	28	5	10	193	757
9	220	7,69	4 130	552	854	165	121	170	6	-	238	37	3	6	140	527
10**	57	7,40	4 640	876	1 739	336	123	125	9	95	161	52	15	11	350	630
10	80	7,11	6 650	-	5 780	-		271	23	-	-	-	42	21	-	1 095
10,1	114	7,14	6 560	-	5 128	1 053		-	18	-	-	-	23	-	-	-
10,3	92	7,62	6 560	-	3 014	619		-	16	-	-	-	14	-	-	-
12**	109	7,81	5 600	1 320	2 038	-	151	-	17	420	238	44	10	10	414	634
14	10	7,54	5 690	450	2 174	718	65	517	23	-	215	29	16	10	475	652
* Equivalen	t acide ace	étique	** Av	ant l'arro	osage - N	lon mes	uré									

Tableau 25 : Evolution de la qualité des jus durant le traitement biologique

II.4.3 : Flux de polluants

Au total, sur les 14 semaines où des jus ont été collectés, près de 216 g DCO.t_{DE}⁻¹ ont été émis et respectivement 134 g d'AGV. Le flux de carbone organique atteint 45 g.t_{DE}⁻¹. Les flux d'azote mesurés révèlent un relargage de 34 g N.t_{DE}⁻¹, dont 82 % sous forme ammoniacale et moins de 2 % sous forme de nitrates, le reste étant de l'azote organique. Parallèlement à ces principaux composants, un total de 39, 34 et 20 g.t_{DE}⁻¹ respectivement de chlorures, de calcium et de sulfates a été relargué par l'andain. Un résumé des flux de polluants émis est présenté dans le Tableau 26.

DCO	AGV*	СОТ	СІТ	N _{total}	NO ₃ ⁻	${\sf NH_4}^+$	Fe	P _{total}	SO4 ²⁻	Cl ⁻	Ca ²⁺	Mg ²⁺
$gO_2.t_{DE}^{-1}$	g.t _{DE} -1	g C.t	-1 DE	g N.t _{DE} ⁻¹			g.t _{DE} ⁻¹					
216	133	45	17	34	1	28	1	1	20	39	34	7

Tableau 26 : Flux de polluants par voie liquide lors du traitement biologique

La perte de matière sèche par voie liquide peut être estimée, selon la méthode définie pour les casiers de stockage (cf. Partie 2, V.5.2.1.a), en additionnant la masse mesurée des constituants lessivés. Cette estimation est, bien entendu, approximative puisque la caractérisation des effluents liquides est loin d'être exhaustive. Elle révèle cependant que les pertes de matière sèche par voie liquide sont très minoritaires dans le processus global de pertes de masse sèche puisqu'elles représentent environ 1 ‰ des pertes globales estimées au paragraphe II.3.2, soit environ 290 g.t_{DE}⁻¹ ou 400 g.t_{MS}⁻¹ pour une perte de matière sèche totale de 37 % (370 kg.t_{MS}⁻¹).

II.5 : Emissions gazeuses

Les émissions gazeuses sont, par hypothèse, égales aux émissions actives, équivalentes à l'air insufflé dans l'andain par l'aération forcée (cf. Partie 2 - V.3.2.2.b). Ainsi, il est possible d'estimer à 5480 Nm³.t_{DE}⁻¹ les émissions gazeuses durant le prétraitement biologique. Quantitativement, 95 % des émissions gazeuses ont eu lieu durant les 12 premières semaines de traitement. Les résultats du suivi de la qualité des émissions et les flux émissifs associés sont détaillés dans le paragraphe suivant.

II.5.1 : Méthane

Des mesures de méthane dans les gaz émis par l'andain ont pu être réalisées en collaboration avec l'Inéris par GC-FID (chromatographie gazeuse et détecteur à ionisation de flamme). Les différentes mesures (3 mesures réparties sur la durée du traitement) ont permis de relever des concentrations en méthane comprises entre 320 et 460 ppm. Parallèlement, l'utilisation d'un analyseur Infra-Rouge portable couplé à une canne de prélèvement a permis d'étudier la teneur en méthane dans les pores du massif en différents points de l'andain. Les mesures ont mis en évidence une variabilité des teneurs en méthane puisque les concentrations rencontrées étaient comprises entre 0 et 12,2 % avec une hétérogénéité spatiale importante. Ces mesures montrent la présence de zones anaérobies au sein du massif de déchet.

Les mesures effectuées, bien que peu nombreuses, permettent d'estimer un flux émissif potentiel de méthane compris entre 1,3 et 1,8 kg $CH_4.t_{DE}^{-1}$, soit environ entre 1,0 et 1,4 kg $C.t_{DE}^{-1}$ de carbone émis sous forme de méthane par voie gazeuse. Ces valeurs sont en adéquation avec les données de la littérature. Les flux de méthane peuvent en effet varier de quelques centaines de grammes à plusieurs kilogrammes de méthane par tonne de déchet entrant suivant principalement la technicité du procédé, son optimisation et la durée de traitement (Hellmann, 1995 ; Fricke et al., 1997 ; Smet et al., 1999). En effet, comme le souligne Cuhls (2001), l'allongement de la durée de traitement favorise les émissions de méthane. Après les premières semaines, l'aération du massif est ralentie pour suivre la baisse de l'activité biologique et les microzones anoxiques sont ainsi favorisées.

II.5.2 : H₂S et soufrés réduits

De la même manière que pour le méthane, des mesures ponctuelles de soufrés réduits ont été effectuées en collaboration avec l'Inéris. La technique utilisée a été la chromatographie gazeuse couplée à un détecteur à photoionisation de flamme (FPD). Cette technique permet la détection spécifique des composés soufrés avec une très bonne sensibilité (de l'ordre de 5 ppb). Les trois mesures effectuées en parallèle des mesures de méthane ont permis, d'une part, de confirmer l'absence de traces d'H₂S dans les émissions gazeuses du prétraitement biologique, ce qui est en accord avec les différentes études citées dans la partie bibliographie, et, d'autre part, de révéler de très faibles concentrations en soufrés réduits. Les deux composés détectés ont été le diméthyl sulfure (DMS : $S(CH_3)_2$) et le méthyl-mercaptan (CH₃SH), tous deux cités dans la liste des composés odorants majoritaires (Parker et al., 2002). Les concentrations mesurées ont été cependant relativement faibles, respectivement comprises entre 144 et 260 ppb pour le DMS et entre <5 ppb (limite de détection) et 65 ppb pour le méthyl-mercaptan. Etant donnés les seuils de détection olfactive des deux composés extrêmement bas, respectivement 1 et 0,02 ppb (Ruth, 1986), ces composés peuvent avoir un rôle significatif dans la génération de nuisances olfactives. Les émissions d'odeur sont abordées au chapitre II.5.5.

Ces mesures représentent des flux émissifs de 2 à 4 g $(CH_3)_2S.t_{DE}^{-1}$ et 0,8 g $CH_3SH.t_{DE}^{-1}$. L'étude d'unités de PTB allemandes a permis de mettre en évidence de faibles teneurs en $(CH_3)_2S$, $(CH_3)_2S_2$ et $(CH_3)_2S_3$ et des flux de l'ordre de 1 à 2 g.t_{DE}^{-1} de diméthyl trisulfure (Culhs, 2001). D'après l'auteur, il est intéressant de noter que les composés soufrés réduits présentent des rendements de traitement en biofiltre relativement moyen (30-60 %).

II.5.3 : Composés azotés et ammoniac

Des essais de mesure des composés azotés dans les effluents gazeux du traitement biologique ont été entrepris en utilisant des tubes thermodésorbables remplis de Porapak N. La technique d'analyse employée est en tout point similaire à l'analyse des tubes Tenax sauf pour la colonne chromatographique utilisée (colonne CAM 60 m, Supelco, adaptée à la séparation des amines). Les résultats de ces tests ont révélé que l'emploi de ce type d'adsorbant pour l'analyse d'une matrice aussi complexe aboutissait à des spectres totalement inexploitables, principalement du fait de la polarité du Porapak N qui le rend sensible à l'humidité (Gawlowski et al., 1999) et au CO_2 ainsi qu'aux mauvaises performances de la colonne utilisée.

L'ammoniac a été mesuré à l'aide de tubes colorimétriques. Les teneurs relevées au cours du traitement (semaine 10 à 25) varient entre 0 et 150 ppm. Les mesures effectuées après les deux retournements (semaines 10 et 12) ont montré des teneurs en ammoniac élevées (> 100 ppm). Celles-ci peuvent être reliées à l'alcalinisation du milieu et à l'augmentation de la température favorisant la volatilisation du NH₃ (Binner et al., 2003). Il est important de noter que le dispositif de double couverture de l'andain a probablement favorisé la solubilisation du NH₃ dans les condensats formés et ainsi diminué les émissions d'ammoniac sous forme gazeuse. Les analyses des jus produits n'indiquent cependant pas des concentrations importantes de NH₄⁺ (95 - 770 mg.L⁻¹).

Le manque de mesures durant les 10 premières semaines de traitement ne permet pas de calculer un flux émissif. Il est cependant possible à partir d'un bilan sur l'azote d'estimer les pertes d'azote par voie gazeuse sous forme de NH_3 de N_2O . Les calculs sont présentés au paragraphe II.6.1.

II.5.4 : Composés organiques volatils

Pour le suivi des émissions de COV du prétraitement biologique, des prélèvements ont été réalisés de manière hebdomadaire durant les 12 premières semaines puis toutes les 2 à 3 semaines lors de la phase de maturation. Les analyses des tubes Tenax ont permis une description qualitative des composés présents dans les émissions gazeuses alors que les analyses des tubes à charbon actif ont permis de quantifier 26 composés majoritaires et de calculer les flux émissifs associés.

Les analyses Tenax ont révélé une grande diversité de COV dans les effluents puisque plus de 180 composés différents ont été identifiés au cours du traitement. Une liste des composés identifiés grâce aux analyses Tenax est donnée dans le Tableau 27.

Alcanes propane butane isobutane pentane hexane heptane octane nonane décane undécane dodécane tridécane tétradécane pentadécane hexadécane éicosane 2,2-diméthyl-propane 2-méthyl-butane diméthyl butane tétraméthyl-butane 2-méthyl-pentane 3-méthyl-pentane diméthyl-pentane 3-méthyl-hexane 3-méthyl-heptane 2,6-diméthyl-heptane 3-éthyl-2-méthyl-heptane pentaméthyl-heptane 4-méthyl-nonane 2-méthyl-nonane 3-méthyl-nonane 2,6-diméthyl nonane 3,7-diméthyl-nonane 2-méthyl-décane 3-méthyl-décane 4-méthyl-décane 5-méthyl-décane 3.7-diméthvl-décane 3-méthyl-undécane triméthyl-dodécane

Aromatiques benzène toluène éthylbenzène o,m,p-xylène butylbenzène (1-méthyléthyl)-benzène o,m,p-éthyl-toluène 1,3,5-triméthyl-benzène 1,2,3-triméthyl-benzène styrène méthyl-styrène propényl-benzène 1,2-diéthyl-benzène 1,3-diéthyl-benzène 1,4-diéthyl-benzène p-cymène 1-méthyl-3-propyl-benzène 1-méthyl-4-propyl-benzène 4.3-diéthyl-5-méthyl-benzène 1,2,4,5-tétraméthyl-benzène 1,3-diéthényl-benzène méthyl-butényl-benzène

Cycloalcanes

éthyl cyclopropane éthyl cyclobutane cyclopentane méthyl-cyclopentane cyclohexane méthyl-cyclohexane éthyl-cyclohexane propyl-cyclohexane butyl-cyclohexane pentyl-cyclohexane 1,3-diméthyl-cyclohexane 1,4-diméthyl-cyclohexane 1,1,3-triméthyl-cyclohexane 1,3,5-triméthyl-cyclohexane 1,2,4-triméthyl-cyclohexane 1,1,3-triméthyl-cyclohexane 1-éthyl 2-méthyl cyclohexane 1-éthyl-4-méthyl-cyclohexane méthyl-éthyl-cyclohexane méthyl-propyl-cyclohexane diméthyl-2-propyl-cyclohexane éthyl-diméthyl-cyclohexane

Alcènes éthène propène 1-butène 2-méthyl 1-propène 2-méthyl-1-butène 2-méthyl-1,3-butadiène 1-pentène 1,4-hexdiène décène 3-méthylène-heptane Halogénés chlorométhane chloroéthane 1,2-dichloro-ethène dichlorodifluorométhane chlorotrifluoroéthène chlorodifluoroéthane trichlorotrifluoroéthane dichlorométhane chloroform trichloroéthane tétrachloréthylène 1,2-dichloro-benzène 1,3-dichloro benzène

Oxygénés formaldéhyde acétaldéhyde 3-méthyl-butanal hexanal nonanal décanal dodécanal benzaldéhyde éthyl-benzaldéhyde acétone 2-Butanone 2-pentanone 3,3-diméthyl-2-butanone 4-méthyl-2-pentanone MIBK diméthyl-pentanone diméthyl-sulfone cyclohexanone acétophénone éthylphényl-éthanone

Esters acétate d'éthyle acétate d'hexyle propionate d'éthyle butanoate de méthyle acétate de butyle butanoate d'éthyle butanoate de butyle pentanoate de butyle hexanoate d'isobutyle

hexanoate de butyle

Soufrés propanethiol diméthyl sulfure diméthyl disulfure diméthyl trisulfure disulfure de carbone sulfure de monoxide de carbone diméthyl sulfone

Alcools

éthanol 1-propanol 2-propanol 2-méthyl-1-propanol 2-butanol 2-éthyl-hexanol

Furanes

2-méthyl-furane 2-éthyl-furane 2-propyl furane 2-pentyl-furane

Terpènes

alpha, beta-pinène thujène alpha, béta-phellandrène alpha-fenchène thujèn-2-one béta-myrcène d-limonène ocimène 2-carène 3-carène 4-carène terpinène terpinolène m-menthane p-cymèn-3-ol longifolène

Autres

naphthalène 2,6-diméthyl-naphtalène décahydro-2-méthyl-naphthalène décahydro-trans-naphthalène 2-méthyl-trans-décaline 2,2-diméthyl-1H-indène 4-méthyl-1-(1-méthyléthyl)bicyclo[3.1.0]hex-3-èn-2-one 4-méthyl-1-(1-méthyléthyl)-3cyclohexèn-1-ol oxime-méthoxy-phényl 2-méthyl-1,1'-biphényl diéthyl-phtalate

Tableau 27 : Liste des composés identifiés dans les effluents gazeux du traitement biologique

Douze familles chimiques sont représentées. Les alcanes aliphatiques et cycliques ainsi que les composés aromatiques présentent la plus grande diversité et indiquent une nette prédominance des composés xénobiotiques ou anthropogéniques (Christensen et al., 1996). Ceux-ci sont peu susceptibles d'être le produit d'une activité biologique et proviennent plus probablement directement du déchet. Parallèlement, de nombreux composés

- 130 -

oxygénés tels que les cétones ou les alcools ont été identifiés et sont des indicateurs de l'activité des microorganismes. La production d'acétates, de propionates et de butyrates lors de la dégradation biologique de la matière organique (Cuhls, 2001) aboutit en présence d'alcool à la formation d'esters qui se retrouvent dans les effluents gazeux. Des produits, comme l'acétone par exemple, appartiennent aux deux catégories. L'acétone est largement utilisé dans l'industrie (plus rarement dans les ménages) et susceptible de se trouver dans le déchet. Il est aussi un sous produit de la dégradation biologique, par exemple du glucose (Schlegel, 1992). Il est intéressant de remarquer, comme le rappelle Cuhls (2001), que le Tenax ne permet pas de piéger correctement tous les composés très volatils tels que certains produits intermédiaires de la dégradation biologique (formaldéhyde, acétaldéhyde, éthanol, etc...) ou des composés halogénés comme le chlorométhane, le chloroéthane entre autres. L'utilisation de tubes remplis de Sphérocarb a permis de compléter la liste de screening même si les performances de l'analyse ont été affectées par la matrice et les conditions de prélèvement (cf. Partie 2 - VI.4). Les composés les plus abondants ont été les alcanes aliphatiques et cycliques, les aromatiques ainsi que leurs formes oxydées (alcools, aldéhyde, cétones).

Les analyses charbon actif, du fait de la perte de sensibilité liée à l'utilisation du solvant de désorption, n'ont permis d'identifier que 26 espèces parmi les composés prédominants. L'évolution des concentrations des 26 composés majoritaires au cours du traitement est donnée dans le Graphique 8, le détail des concentrations est donné en Annexe 2.

Les différents composés ont été représentés suivant leur niveau de concentration dans trois graphiques différents. Les niveaux de concentration atteints représentent des concentrations en COV totaux qui varient entre 11 640 ppmC (semaine 14) et 117 ppmC (semaine 22). Les pics des semaines 3 et 10 représentent respectivement des concentrations de 5 060 et 11 120 ppmC en COV totaux. Ces valeurs témoignent de teneurs importantes en COV dans les gaz émis. Les concentrations en COV totaux relevées dans les unités de PTB allemandes atteignent les 2000 ppmC (Cuhls, 2001).

Les composés prédominants (alcanes n-C5 à n-C10, toluène, cyclohexane et dichlorométhane), représentés dans le Graphique 8 - supérieur, ont tous une évolution relativement similaire et présentent 3 pics aux semaines 3, 10 et 14. Les quantités importantes de ces composés, qui peuvent être qualifiés d'anthropogéniques (et donc endogènes au déchet), montrent que la principale voie d'émission de COV semble être la volatilisation de composés initialement présents dans le déchet, même si la genèse de ce type de composé par voie biologique est encore peu connue et peut être sous-estimée. Il est intéressant de noter les faibles teneurs en terpènes, présents seulement les premières semaines en faible concentration, malgré la présence non négligeable de déchets de jardin (sources de terpènes) dans le déchet entrant (14,5 $\%_{MH}$). Les composés chlorés présentent des pics d'émission épisodiques surtout au début du traitement biologique, à l'exception du dichlorométhane qui évolue comme les composés prédominants et qui se retrouve en concentration très élevée (jusqu'à 1170 mg.Nm⁻³, semaine 14). Le dichlorométhane est un produit largement utilisé dans l'industrie et dans les ménages pour ses capacités de solvant des graisses et liant des plastiques et peintures (INCHEM, 2006).


Graphique 8 : Evolution des concentrations des COV durant le PTB

Différentes hypothèses peuvent être avancées pour expliquer l'évolution des concentrations des COV. Le premier pic qui atteint son maximum à la 3^{ème} semaine peut être expliqué par la montée en température du massif qui favorise la volatilisation des composés organiques endogènes ou produits biologiquement. La demande en oxygène des microorganismes entraîne une aération importante qui favorise le stripping des composés organiques.

Bien que le déchet soit frais avec un important potentiel émissif, puisqu'il est encore chargé en composés organiques endogènes, le premier pic ne présente pas le maximum des concentrations rencontrées durant le traitement.

Ceci peut être expliqué par l'effet de dilution de l'aération soutenue et par les effets antagoniques de l'importante activité biologique des premières semaines. En effet, bien qu'elle puisse être source de composés organiques volatilisables, sous-produits de la dégradation de la matière organique, la flore microbiologique peut aussi être limitante puisque, d'une part, les composés organiques peuvent servir de substrat aux microorganismes et d'autre part, le développement d'un film microbien autour des particules de déchet peut constituer un rempart physique à la volatilisation des composés organiques endogènes (Mitchell, 2005). L'humidité du déchet, qui est relativement élevée à la suite de l'humidification initiale (48,1%), peut constituer un second rempart permettant la solubilisation des composés polaires et retardant la diffusion des composés organiques vers la phase gazeuse.

La baisse relative de la charge polluante des émissions entre les semaines 4 et 9 peut être reliée à l'épuisement des composés organiques endogènes. En effet, l'absence de retournement qui implique la création de passages préférentiels pour l'air insufflé, entraîne le balayage de zones localisées qui subissent un phénomène de stripping important. Le déchet s'appauvrit lentement en composés organiques volatilisables. Il est alors possible de supposer que la diffusion devienne le phénomène prépondérant responsable du maintien des équilibres entre la phase gazeuse des pores du massif de déchet et la matrice solide.

Le retournement de la semaine 10 a permis la reprise nette de l'activité biologique avec ces effets antagoniques mais surtout l'homogénéisation du massif de déchet et de l'exposition de celui-ci à l'aération. De nouvelles zones ont ainsi été soumises au phénomène de stripping, ce qui peut expliquer le pic de la semaine 10. Ce pic d'émission est favorisé par une aération toujours soutenue et une activité biologique qui semble être moins intense. Ceci peut entraîner une minéralisation incomplète de la matière organique menant à une production accrue de sous produits volatilisables et à une consommation moindre des composés organiques endogènes. Les 4 semaines suivantes (semaines 10 à 14) présentent des émissions très chargées.

Le pic de la semaine 14 est remarquable. Il peut être expliqué par l'augmentation de température consécutive au second retournement qui déplace les équilibres vers la phase gazeuse et favorise la volatilisation des composés. De plus, l'espacement des épisodes d'aération contribue à un allongement du temps de remise à l'équilibre de l'atmosphère des pores du massif qui se rechargent en polluants d'une manière plus importante. L'air vicié poussé (strippé) par l'aération est dans ce cas plus chargé en polluants.

Les concentrations élevées rencontrées après plus de trois mois de traitement montrent que, soit le déchet représente une source abondante de composés organiques volatilisables, soit la reprise tardive (semaine 10 à 12) de l'activité biologique a pu suffire à la production d'une quantité importante de sous-produits organiques volatilisables.

A partir du suivi de la qualité des émissions, il a été possible de calculer des flux émissifs pour chacun des 26 composés identifiés et quantifiés. Les résultats sont présentés dans le Tableau 28.

Composés	Masse cumulée	Flux émissif	Composés	Masse cumulée	Flux émissif
	g	$g.t_{DE}^{-1}$		g	$g.t_{DE}^{-1}$
pentane*	53 570	1 432 (99,8)**	propylbenzène	538	14 (100)
hexane	57 961	1 553 (99,4)	butylbenzène	68	2 (100)
heptane	75 879	2 072 (96,7)	isopropylbenzène	1 831	49 (99,4)
octane	49 796	1 371 (94,1)	a,b,c-triméthylbenzène		90 (95,3)
nonane	34 822	956 (94,7)	éthyl-toluène*	2 618	71 (96,6)
décane	177 203	4 860 (94,9)	d-limonène	680	18 (100)
undécane	1 590	43 (99,7)	a-Pinène	285	8 (100)
cyclohexane*	24 210	658 (96,5)	b-pinène	54	1 (100)
toluène	113 120	3 111 (94,3)	1 (94,3) dichlorométhane*		1 349 (90,4)
éthylbenzène	5 620	151 (99,1)	trichloréthylène	3 625	97 (100)
o-xylène	13 846	382 (93,9)	trichloromonofluorométhane	2 570	69 (99,8)
m-xylène	5 193	140 (98,7)	chloroform	123	3 (100)
p-xylène	1 769	48 (97,5)	acétone*	2 542	68 (100)

* exprimé en équivalent toluène ** pourcentage émis durant les 12 premières semaines de traitement

Tableau 28 : Masse des COV émis durant le traitement biologique

Au total, près 18 613 g.t_{DE}⁻¹ de COV ont été émis durant les 25 semaines de traitement, 93 % des émissions ont eu lieu durant les 12 premières semaines (17 356 g.t_{DE}⁻¹). Le processus d'émission est corrélé à l'aération puisque 95 % de l'air total était insufflé durant la même période. L'air insufflé, qui joue le rôle de gaz vecteur, permet le stripping des composés organiques présents dans le déchet (endogènes ou produits par les réactions biologiques), apparaît comme un des facteurs déterminants concernant les émissions des COV. Cette observation est en accord avec les travaux de Cuhls (2001).

Ces émissions représentent une perte de carbone par voie gazeuse sous forme de COV de 14 550 g C-COV. t_{DE}^{-1} en 25 semaines et de 13 930 g C-COV. t_{DE}^{-1} durant les 12 premières semaines.

Les alcanes linéaires (n-C5 à n-C11) représentent à eux seuls près de 70 % de la masse totale de COV émis. Les alcanes linéaires apparaissent plutôt comme des composés endogènes au déchet (l'étude de la littérature n'a pas permis de mettre en évidence des cas d'anabolisme d'alcanes linéaires). Ceci vient donc confirmer l'hypothèse selon laquelle le déchet représente une importante source de composés organiques volatilisables.

II.5.5: Odeurs

7 analyses de la concentration d'odeur par olfactométrie dynamique ont été réalisées au cours du traitement biologique. L'évolution de l'intensité olfactive est présentée dans le Graphique 9. La concentration d'odeur a varié entre 230 et 12805 UO.Nm⁻³. Le suivi de l'intensité olfactive permet de calculer un débit d'odeur ainsi qu'une quantité totale d'unité odeur relarguée. Cette dernière est égale à 1,04x10⁹ UO. Cela correspond à une intensité olfactive moyenne d'environ 5060 UO.Nm⁻³ et à une émission de 2,8x10⁷ UO.t_{DE}⁻¹.

L'évolution de l'intensité olfactive semble être inversement corrélée à l'évolution des COV majoritaires. Le pic d'odeur observé semaine 6 (12 805 UO.Nm⁻³) correspond en effet à une période où les composés organiques sont faibles (cf. Graphique 8). Inversement, le pic de concentration de COV mesuré semaine 14 correspond à une concentration d'odeur

très faible (230 UO.Nm⁻³). L'absence de corrélation entre COV et odeur peut indiquer que les COV ne jouent pas un rôle prépondérant par rapport à l'ammoniac dans la génération d'odeur comme le propose Cuhls (2001).



Graphique 9 : Evolution de l'intensité olfactive des effluents gazeux du PTB

Il ne semble pas non plus exister de corrélation entre la température du déchet et la concentration d'odeur comme l'indiquent Binner et al. (2003), puisque les fortes températures observées à partir de la semaine 12 (cf. Graphique 1) coïncident avec des concentrations d'odeur élevées (230 et 2960 UO.Nm⁻³, respectivement pour les semaines 14 et 16).

Il est possible que les mesures d'odeur n'aient pas été assez fréquentes pour permettre l'observation de tendances représentatives.

II.6 : Bilans azote et carbone

II.6.1 : Bilan azote

L'objectif du bilan azote est d'estimer à partir des données disponibles les émissions gazeuses d'ammoniac et de protoxyde d'azote durant le prétraitement biologique. Les hypothèses ont été détaillées dans le chapitre V.5.1.1 de la Partie 2.

La perte en azote dans le solide est équivalente à la perte d'azote Kjeldahl, puisque par hypothèse les nitrites et nitrates sont négligés. Le suivi de l'azote total dans les jus a permis d'évaluer la perte d'azote par voie liquide. Les données et les résultats des calculs sur les phases solide et liquide sont donnés dans le Tableau 29. Au total, 3,56 kg $N.t_{DE}^{-1}$ ont été perdus dans le solide contre 1,99 kg $N.t_{DE}^{-1}$ durant les 12 premières semaines de traitement. 34 g $N.t_{DE}^{-1}$ ont été perdus par voie liquide durant le traitement. Les pertes d'azote par voie gazeuse peuvent donc être estimées à respectivement 3,53 et 1,96 kg $N.t_{DE}^{-1}$ durant les 25 semaines de traitement et durant les 12 premières semaines. La perte d'azote par voie gazeuse représente près de 33 % de l'azote Kjeldahl présent

Durée de		Phase solide							
traitement	NTK	Tannaga gaa (t)	N _{TK}	ΔN_{TK}	N _{total}				
(en sem.)	$(\text{kg N.t}_{\text{MS}}^{-1})$	Tonnage sec (t)	(kg	N)	(kg N)				
0	10,8	26,93	290,8	74.5	13				
12	11.0	19.66	216.3	74,3	1,5				
12	11,0	17,00	210,5	58.0	nágligashla				
25	9,3	16,92	157,4	50,9	negngeable				

initialement dans le déchet, cet ordre de grandeur correspond aux résultats obtenus par Beck-Friis et al. (2001).

Tableau 29 : Perte d'azote dans le solide et par voie liquide durant le PTB

L'étude de la littérature permet d'estimer qu'entre 95 et 100 % des pertes d'azote par voie gazeuse se font sous forme d'ammoniac, le reste étant émis sous forme de N₂O (100 % : De Bortoldi et al., 1988 ; Körner et al., 1997, 1999 - 98 % : Beck-Friis et al., 2001 - 95 % : Martins et al., 1992 ; Smars et al., 1999). Ainsi, les émissions d'ammoniac sont estimées en 25 semaines de traitement entre 4,07 et 4,29 kg NH₃.t_{DE}⁻¹. Les émissions de N₂O peuvent être estimées entre 0 et 0,28 kg N₂O.t_{DE}⁻¹. Ces valeurs ne sont bien entendu que des ordres de grandeur mais correspondent aux valeurs relevées dans la littérature sur des expériences de compostage d'ordures ménagères pour lesquelles les pertes d'azote sont relativement importantes (1-379 g N₂O.t_{DE}⁻¹: Clemens et al., 2003).

D'après ce bilan, après 25 semaines de traitement, 46 % de l'azote Kjeldahl initialement contenu dans le déchet a été perdu majoritairement par voie gazeuse.

II.6.2 : Bilan carbone

Par hypothèse (cf. paragraphe V.5.1.2 de la partie 2), la perte de carbone organique dans la phase solide est équivalente à la perte en carbone organique sous forme liquide (COT) et gazeuse (C-CO₂, C-COV, C-CH₄). Le carbone organique (COT) varie entre 223, 182 et 163 kg $C.t_{MS}^{-1}$ respectivement pour le déchet entrant et pour le déchet après 12 et 25 semaines de traitement. Ramenée à la tonne de déchets entrants le traitement biologique, en prenant en compte une perte de masse sèche de 27 et de 37 % respectivement après 12 et 25 semaines, la perte de carbone organique dans le solide est donc d'environ 64,5 et 86,7 kg $C.t_{DE}^{-1}$.

Les flux de COT dans les jus ont été estimés à partir du suivi du carbone organique à un total de 45 g $C.t_{DE}^{-1}$ durant les 12 premières semaines de traitement. Les flux ont été négligés pour la seconde phase.

A partir des émissions de carbone par voie gazeuse sous forme de méthane et de COV, il est possible d'estimer le carbone organique minéralisé, émis par voie gazeuse sous forme de CO_2 . Un résumé des résultats du bilan carbone organique est donné dans le Tableau 30.

Après 25 semaines de traitement, 54,1 % du carbone organique initialement contenu dans le déchet a été perdu. 82 % du carbone perdu a été minéralisé sous forme de CO₂ et 17%volatilisé sous forme de carbone organique non méthanique. Les émissions de méthane ne représentent que 1 % environ des pertes de carbone. Les pertes par voie aqueuse sont

En kg COT.t _{DE} ⁻¹	12 semaines	25 semaines	Proportion COT initial (après 25 semaines)
Pertes de COT dans la matière	64,5	86,7	54,1 %
Dont : Pertes de COT par voie liquide Pertes de C-CH ₄ Pertes de C-COV Pertes de C-CO ₂	0,04 1,1 13,9 49,5	0,04 1,2 14,6 70,9	< 0,05 % 0,8 % 9,1 % 44,2 %

négligeables puisqu'elles représentent moins de 1 ‰ des pertes de carbone dans la matière.

Tableau 30 : Bilan sur le carbone organique durant le traitement biologique

Les pertes de carbone inorganique par voie aqueuse (17 g $CIT.t_{DE}^{-1}$) sont négligeables par rapport aux pertes de carbone organique dans la matière (< 0,02 %), le fait de négliger le phénomène de dissolution du CO_2 est ainsi partiellement justifié. Le flux de CIT représente par ailleurs 27 % du carbone total lessivé durant le traitement.

Chapitre III : Suivi des casiers de stockage de déchets

III.1 : Casier Témoin : stockage conventionnel

III.1.1 : Généralités

9,46 tonnes de déchets bruts ont été enfouies dans le casier Témoin parallèlement à la mise en place de l'andain de prétraitement biologique et du remplissage du Bioréacteur. L'humidité initiale du déchet est de 28,1%, la masse sèche initiale est de 6,80 tonnes. La composition et les caractéristiques du déchet sont présentées dans le chapitre I de la partie 3. La densité solide de placement initiale (densité calculée avec la masse humide) atteint seulement 0,47 t.m⁻³ pour une densité sèche initiale de 0,34 t_{MS}.m⁻³. La densité solide est sensiblement inférieure aux valeurs observées après compactage sur sites réels (comprise entre 0,6 et 0,9 t.Nm⁻³; Olivier, 2004). La faible densité atteinte peut être expliquée par la faible contrainte verticale appliquée sur les déchets (environ 10 kPa) par rapport à celle appliquée sur un site réel où plusieurs passes de compacteurs sont effectuées (entre 47 et 64 kPa par passe ; Olivier, 2004). De plus, le poids propre des déchets, lié à la hauteur de la colonne de déchet, est relativement faible par rapport à un casier industriel puisque cette hauteur est initialement d'environ 3,50 m, contre environ au moins 8-10 m pour un casier réel.

III.1.2 : Evolution de la température du massif et simulation des précipitations

L'acquisition de la température du massif de déchet a débuté 8,5 mois après l'enfouissement du déchet. Son évolution est présentée sur le Graphique 10. Le massif de déchet après 8,5 mois d'enfouissement présente une température d'environ 14°C. La période hivernale qui a suivi l'installation des casiers (Hiver 2003 - 2004) et l'absence d'isolation thermique des casiers permet d'expliquer cette faible température. La température du massif suit ensuite le changement de saison et présente un pic au 12^{ème} mois (Août 2004) avant de rechuter avec l'arrivée de l'automne et des températures plus basses. L'installation d'un massif de compost en maturation au 15^{ème} mois permet d'augmenter l'inertie thermique du casier et de réchauffer le massif, puisque l'activité aérobie encore importante au sein du compost dégage de la chaleur. Une nette remontée de la température est ainsi observée et le massif présente, un mois plus tard, une température de 34°C. La température varie ensuite entre 35°C (mois 21) et 43°C (mois 34). Ces températures sont relevées au cœur du massif de déchet et les températures de parois, influencées par la proximité du compost, sont probablement plus élevées.

Les températures relevées correspondent, à l'exception de la période avant la mise en place du compost, aux températures rencontrées dans des casiers réels. Aran (2001) a montré que les températures dans les alvéoles de stockage pouvaient varier entre 30°C et 65°C suivant la profondeur par rapport à la surface du casier. L'instrumentation d'un casier réel a en outre permis de montrer la bonne inertie thermique du massif du déchet, peu influencé par les variations saisonnières de température. La configuration obtenue avec le massif isolant de compost semble recréer correctement les conditions thermiques qui prévalent dans un massif réel.

La simulation de pluie n'a débuté que 23 mois après la mise en place du déchet. Ce délai est dû à une rupture de la canalisation de simulation des précipitations lors de la fermeture du casier. Celle-ci n'a pu être identifiée et réparée qu'après l'expertise de l'intérieur du casier par une caméra endoscopique. Le retard pris dans la simulation des précipitations programmée pour simuler une phase d'exploitation de 6 mois puis une seconde phase avec couverture argileuse (cf. paragraphe III.3.3 de la partie 2), a été comblé en augmentant artificiellement le rythme des simulations. Cette décision a été prise afin d'avoir une simulation de pluie semblable à celle effectuée sur les autres casiers (PTB1 et PTB2) et de pouvoir comparer autant que possible la pollution lessivée des trois casiers.



Graphique 10 : Evolution de la température du massif, de la composition du biogaz et de la période de simulation des précipitations pour le casier Témoin

La mise en place du compost et le début de la simulation de pluie sont deux évènements déterminants pour la compréhension et l'interprétation des différentes données liées au casier Témoin. La température du massif et la quantité d'eau de mouillage entrant dans le système sont en outre deux paramètres fondamentaux pour l'analyse de l'ensemble des casiers.

La quantité d'eau introduite dans le casier Témoin entre les mois 23 et 34 a été en moyenne de 39 L.t_{MS}⁻¹.mois⁻¹, soit environ l'équivalent de 42 mm de précipitation mensuelle avec un taux d'infiltration de 100 %. Ceci représente 10 mois de précipitation en moyenne à 125 mm en prenant un scénario de casier ouvert avec un taux d'infiltration de 33 % (estimation du taux d'infiltration sans perte par ruissellement avec une évapotranspiration réelle de 86 % des précipitations). Le biais apporté par cet important apport d'eau dans le massif de déchet sera discuté dans le paragraphe suivant. Au 34^{ème} mois de stockage, un total de 395 L.t_{MS}⁻¹ a été introduit dans le casier Témoin, soit 284 L.t_{DE}⁻¹.

III.1.3 : Composition et production de biogaz

La composition du biogaz extrait du massif de déchet est présentée dans le Graphique 10. Les quantités mensuelles et cumulées de CH_4 et de CO_2 produites et captées par le système de dégazage sont représentées dans le Graphique 11.

Les premières traces de CO_2 ont été captées et mesurées au 8^{ème} mois d'enfouissement dès qu'une étanchéité satisfaisante du massif a pu être assurée. Le captage a été réglé au mieux pour évacuer le biogaz produit en limitant au maximum les entrées d'air liées à une trop forte dépression appliquée au casier dont l'étanchéité est imparfaite. Le réglage de la dépression (entre -2 et -0,5 mbar) est le seul garant de l'équilibre entre le captage et la production de biogaz. Cet équilibre est d'autant plus fragile que l'activité biologique et la production de biogaz sont faibles.



Graphique 11 : Production de biogaz du casier Témoin

La fragilité de l'équilibre est clairement mise en évidence les 24 premiers mois d'enfouissement durant lesquels la production de biogaz reste extrêmement faible et pour lesquels il est difficile d'obtenir un biogaz de bonne qualité (cf. Graphique 10). La remontée de la température amorcée le 8^{ème} mois (de 14°C à environ 23°C) entraîne une faible activité biologique permettant d'augmenter la qualité du biogaz jusqu'à environ 45 % (40 % de CO₂ et 5 % de CH₄). La rechute des températures (jusqu'à 10°C au mois 15) entraîne un déséquilibre du système matérialisé par une baisse de la qualité du biogaz. L'isolation du casier au 15^{ème} mois d'enfouissement, en favorisant l'activité biologique, permet de faire remonter la qualité du gaz extrait du casier jusqu'à environ 85 % (65 % de CO₂ et 20 % de CH₄). La production de biogaz, bien que relativement faible (inférieure à 0,7 Nm³.t_{MS}⁻¹.mois⁻¹), augmente de manière régulière jusqu'au 24^{ème} mois. La baisse de la qualité du biogaz des mois 20 et 21 (cf. Graphique 10) est le résultat d'une trop forte dépression appliquée au pilote.

Les 24 premiers mois sont marqués par un ratio CH_4/CO_2 compris entre 0,2 et 0,4, caractéristique des premières phases de dégradation du déchet (Christensen et al., 1989).

Au terme de cette période, qu'il est possible de qualifier de « phase de latence », 4 Nm³.t_{MS}⁻¹ de CO₂ et 1 Nm³.t_{MS}⁻¹ de CH₄ ont été produits. A partir du 24^{ème} mois, la production de CO_2 stagne à environ 0,5 Nm³.t_{MS}⁻¹.mois⁻¹ alors que celle de méthane croît régulièrement (de 0,2 à 1 Nm³.t_{MS}⁻¹.mois⁻¹ au 27^{ème}). Cette tendance est matérialisée par un changement radical de la composition du biogaz issu du casier et une inversion du rapport CH_4/CO_2 qui dépasse l'unité après 25 mois d'enfouissement. A partir de cette date, la production mensuelle de biogaz présente une croissance exponentielle (cf. Graphique 11) avec un taux de méthane stabilisé à environ 59 % (cf. Graphique 10). Le casier présente alors tous les indicateurs d'une méthanogénèse stable ($CH_4/CO_2 \approx 1,5$). La production mensuelle de biogaz atteint près de 24 $\text{Nm}^3.t_{\text{MS}}^{-1}$ au cours du 33^{ème} mois d'enfouissement (respectivement 10 et 14 Nm^3 .t_{MS}⁻¹ pour le CO₂ et le CH₄). Les données partielles récoltées au cours du 34^{ème} mois, avant l'arrêt de l'acquisition, semblent montrer une baisse sensible de la production de biogaz, qui reste toutefois significative (près de 14 Nm³.t_{MS}⁻¹ en 0,7 mois). La cinétique de production moyenne mesurée durant les deux derniers mois correspond à respectivement 13,0 et 10,6 Nm³.t_{MS}⁻¹.mois⁻¹ pour le CH₄ et le CO_2 .

Au total, après 34 mois de suivi, 84,8 Nm³.t_{MS}⁻¹ de biogaz ont été extraits du casier Témoin, respectivement 39,1 Nm³ CH₄.t_{MS}⁻¹ et 31,5 Nm³ CO₂.t_{MS}⁻¹. Cette production de biogaz représente environ 34 % du potentiel total de production de biogaz (210 ± 42 Nm³.t_{MS}⁻¹) à une moyenne de 55 % de méthane. Le potentiel de production de méthane (BMP) a été abattu de 36 %. La production de biogaz ramenée à la tonne de déchet entrant la filière (déchets humides enfouis) est de 61,0 Nm³.t_{DE}⁻¹ et respectivement 28,1 Nm³ CH₄.t_{DE}⁻¹ et 22,6 Nm³ CO₂.t_{DE}⁻¹.

Remarque :

Il convient ici de différencier le biogaz « capté » (84,8 $\text{Nm}^3.t_{\text{MS}}^{-1}$) du biogaz réellement « produit » (somme du CO₂ et CH₄). La différence entre les deux valeurs s'explique par l'évacuation de l'air initialement contenu dans les pores du déchet et les entrées d'air liées à une trop forte dépression appliquée au pilote. Seul le biogaz produit peut être comparé au potentiel déterminé par le test BMP.

III.1.4 : Composition et production de lixiviat

La production de lixiviat du casier Témoin ainsi que sa composition sont données dans le Tableau 31. La production de lixiviat, à l'image de la simulation de pluie, n'a été significative qu'à partir du 23^{ème} mois d'enfouissement. Les faibles volumes de lixiviat recueillis durant les 6 premiers mois de simulation de pluie (entre 11 et 86 L du mois 23 au mois 29) confirment que le déchet était sec puisque celui-ci absorbe relativement bien la simulation de pluie pourtant importante. La production de lixiviat s'accentue à partir du 30^{ème} mois d'enfouissement.

Le pH des premiers lixiviats recueillis $(15^{eme} \text{ mois de stockage})$ indique des conditions légèrement acides (pH = 6,66) au sein du massif de déchet caractéristiques de l'acidogénèse. Cependant, leur composition est difficilement explicable puisque tous les paramètres montrent qu'ils sont très peu chargés en pollution (DCO de 347 mg 0₂.L⁻¹, conductivité de 2710 µS.cm⁻¹). Il est possible qu'une faible quantité de lixiviat ait été

diluée dans de l'eau de condensation formée entre la géomembrane et la paroi du casier. L'hypothèse est supportée par une teneur importante en fer (11 mg.L⁻¹). Ce phénomène semble se reproduire à plus petite échelle au cours du 27^{ème} mois où une quantité très faible de lixiviat a été collectée.

Le pH des lixiviats recueillis à partir du 24^{eme} mois indique des conditions basiques au sein du massif et confirme la phase de transition dans laquelle se trouvent les déchets. En effet, un pH compris entre 7,5 et 8,0 est indicateur d'une acétogénèse finissante (Francois, 2004). La DCO, stable autour de 4000 mg O₂.L⁻¹ et les faibles teneurs en acides gras volatils (< 1000 mg.L⁻¹) confirment l'état de dégradation des déchets qui ont dépassé la phase d'acidogénèse.

Durée enfouissement	Volume collecté	pН	Cond.	AGV	DCO	N _{total}	NO3 ⁻	${\rm NH_4}^+$	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Fe	P _{total}	\$0 ₄ ²⁻	CI-
Mois	L	-	µS.cm⁻¹	mg.L ⁻¹ *	mg O ₂ .L ⁻¹	п	ng N .L	-1		mg.L ⁻¹		mg P.L ⁻¹	mg	.L -1
15,1	162	6,66	2 710	-	347	-	-	7	141	44	11	3	150	56
23,4	11	7,90	23 500	-	4 335	2 093	15	2 052	219	445	27	22	650	802
25,7	19	7,95	19 740	600	2 770	2 096	14	1 698	227	116	21	16	269	1 518
26,7	8	7,57	11 010	200	1 234	1 000	8	676	310	88	11	10	119	774
27,6	69	7,85	26 900	600	3 422	2 482	14	1 969	55	137	13	13	259	2 112
28,7	39	7,77	27 800	-	3 762	2 793	19	2 385	38	128	12	16	365	2 186
29,7	86	7,75	28 000	-	3 846	2 692	22	2 489	44	137	13	27	356	2 243
30,8	102	7,98	27 100	-	3 836	2 520	24	2 468	14	118	13	34	353	2 300
32,0	183	8,03	28 500	800	4 378	2 719	24	1 989	23	119	14	36	481	2 317
32,6	194	8,09	29 300	800	4 995	3 005	17	2 791	31	116	18	38	529	2 501
33,6	208	7,82	27 600	-	4 689	2 811	22	2 666	37	108	17	40	524	2 419

* équivalent acide acétique - non mesuré

Tableau 31 : Composition et quantité de lixiviat produit par le casier Témoin

L'évolution des formes azotées dans les lixiviats indique un lessivage important de l'azote minéral avec des concentrations en ions NH_4^+ en moyenne supérieures à 2000 mg N.L⁻¹. Ces valeurs élevées, qui égalent les seuils d'inhibition relevés dans la littérature (cf. Tableau 1), ne semblent pas affecter l'activité microbiologique mise en évidence par le suivi de la production de biogaz. Les nitrates, quant à eux, restent faibles tout au long du suivi (inférieurs à 25 mg N.L⁻¹). L'azote organique, estimé par différence entre l'azote total et les deux formes minérales mesurées, ne représente qu'une faible proportion de l'azote lessivé (moins de 13 % en moyenne). Ces observations permettent de faire l'hypothèse d'un important processus d'ammonification consommateur d'azote organique et producteur d'azote ammoniacal.

La conductivité des lixiviats est en moyenne supérieure à 20 mS.cm⁻¹ et indique une charge minérale importante. Cependant, les concentrations en calcium sont relativement faibles (23 - 310 mg.L⁻¹) et caractérisent, selon Francois (2004), un déchet plutôt en phase de méthanogénèse, alors que les concentrations en magnésium et en sulfates (respectivement 88-445 et 119-650 mg.L-1) correspondent plus à une phase d'acidogénèse/acétogénèse.

Le relargage important de DCO, caractéristique des premiers mois de dégradation du déchet, n'a pas été observé du fait de l'absence de simulation de pluie et de la relative sècheresse du déchet initial. Cette matière organique a sans doute été consommée in situ

par les micro-organismes qui ont eu le temps nécessaire pour s'acclimater aux conditions du milieu. Le bilan du relargage de la pollution carbonée sera sensiblement influencé par l'absence de cette phase initiale.

Il est intéressant de noter l'importante teneur en carbone inorganique qui peut être liée à la dissolution du CO₂, favorisée par les conditions basiques qui règnent dans le déchet. Les concentrations en CIT calculées (1 - 1,5 g C.L⁻¹) correspondent à une alcalinité élevée (8 - 12,5 g CaCO₃.L⁻¹) dépassant largement la valeur optimale pour le développement de la méthanogénèse (2 g CaCO₃.L⁻¹ ; Farquhar et al., 1973).

La représentation graphique des principaux paramètres du lixiviat est donnée dans l'Annexe 5.

III.1.5 : Flux de pollution

III.1.5.1 : Polluants par voie liquide

Après 34 mois de stockage, un total de 159 $L.t_{MS}^{-1}$ de lixiviat a été produit par le casier Témoin, soit 114 $L.t_{DE}^{-1}$. Cette production ne représente que 40 % de l'eau introduite pour la simulation des précipitations. La pollution émise par voie liquide, calculée à partir des volumes de lixiviats collectés et des analyses présentées au paragraphe précédent, est donnée dans le Tableau 32.

DCO	AGV*	СОТ	CIT	N _{total}	NO ₃ ⁻	${\sf NH_4}^+$	P _{total}	Fe	504 ²⁻	Cl	Ca ²⁺	Mg ^{∠+}
$gO_2.t_{MS}^{-1}$	g.t _{MS} ⁻¹	g C.t	-1 MS		g N.t _{MS} -1				g.t	-1 MS		
591	74	163	208	368	3	326	5	2	64	312	9	18

* équivalent acide acétique

Tableau 32 : Flux de polluants émis par voie liquide pour le casier Témoin

Les flux de pollution organique carbonée (DCO, AGV, COT) sont très largement influencés par l'absence de lixiviats lors des premières phases de dégradation de déchet. La concentration en CIT élevée entraîne un relargage du carbone plus important sous forme inorganique puisque le lessivage de CIT représente 56 % du carbone total lessivé. De la même manière, les formes minérales de l'azote, largement dominées par l'azote ammoniacal, représentent près de 90 % de l'azote total relargué.

La perte de masse sèche associée à la mobilisation des polluants dans les lixiviats peut être estimée en additionnant la masse de chaque constituant émis par voie liquide (cf. Partie 2 - V.5.2.1.a). Cette perte de masse équivaut à 2072 $g.t_{MS}^{-1}$, soit 1490 $g.t_{DE}^{-1}$. Elle sera reprise dans l'estimation de la perte de masse totale au paragraphe III.1.6.

III.1.5.2 : Polluants par voie gazeuse

L'émission des composés majoritaires a été traitée dans le paragraphe III.1.3. Seuls les composés à l'état de traces sont présentés dans ce chapitre.

III.1.5.2.a : Emissions de H₂S, N₂O et NH₃

Les émissions de H_2S , de N_2O et de NH_3 ont été estimées grâce au suivi mensuel de leur concentration dans le biogaz produit. Le NH_3 n'a été détecté qu'à deux reprises (16,8 et 26,6 mois d'enfouissement) à des concentrations proches de la limite de détection des

tubes colorimétriques employés (1 ppm). La prise en compte de ces deux mesures permet d'estimer le flux émissif à environ 7 mg $NH_3.t_{MS}^{-1}$, soit 5 mg de NH_3 par tonne de déchets enfouis.

L'évolution de la teneur en H_2S et N_2O du biogaz ainsi que les flux émissifs associés sont présentés dans le Graphique 12.



Graphique 12 : Evolution de la teneur dans le biogaz et des flux émissifs de N₂0 et H₂S du casier Témoin

Les concentrations de H₂S comprises entre 0 et 30 ppm deviennent significatives à partir du $30^{\text{ème}}$ mois d'enfouissement et dépassent 100 ppm au mois 32. L'activité des bactéries sulfato-réductrices semble très bien corrélée à celle des méthanogènes puisque la production de H₂S présente une croissance exponentielle calquée sur celle du méthane. Les concentrations élevées en SO₄²⁻ mises en évidence dans les lixiviats (300 - 600 mg.L⁻¹), les conditions réductrices du milieu et le carbone organique disponible en quantité sont optimales pour leur développement. La production de H₂S s'élève à 6536 mg H₂S.t_{MS}⁻¹ après 34 mois de stockage, soit 4700 mg H₂S.t_{DE}⁻¹. L'activité des bactéries sulfato-réductrices pourrait être reliée à une baisse des ions sulfates dans les lixiviats, baisse qui pour l'instant n'a pas été observée.

La production de N₂O présente une évolution relativement constante tout au long du stockage des déchets. Les concentrations en N₂O varient entre 20 et 40 ppm. Les premières mesures effectuées le $10^{\text{ème}}$ et $11^{\text{ème}}$ mois de stockage ont révélé des concentrations importantes (88 ppm). Celles-ci peuvent être indicatrices de légères entrées d'air responsables de l'inhibition partielle de la dénitrification, lorsque la dépression appliquée au casier était trop forte. Au total, 2195 mg N₂O.t_{MS}⁻¹ ont été produits durant la période de suivi, ce qui représente une émission de 1578 mg N₂O.t_{DE}⁻¹. Les derniers points de mesure indiquent une nette diminution de la concentration de N₂O concomitante à l'augmentation de la production de biogaz. Le flux émissif, quant à lui, se maintient à un niveau constant (environ 100 mg N₂O.t_{MS}⁻¹.

III.1.5.2.b : Emissions de COV

Les concentrations de COV dans le biogaz extrait du casier Témoin ont été mesurées mensuellement par les deux techniques décrites dans le paragraphe V.4.2.3.d de la partie 2. Les résultats sont exprimés par famille chimique. Seuls les composés majoritaires

ou remarquables par leur toxicité ou leur caractère odorant sont présentés. Des données complémentaires provenant de l'analyse des COV, en particulier l'évolution des concentrations des COV par famille chimique, sont données en Annexe 2.

Parmi les composés majoritaires émis par le casier Témoin, il faut citer les hydrocarbures et plus particulièrement les alcanes (butane, 2-methyl-butane, 2,2,3,3-tétraméthylbutane, nonane, décane, a-méthyl-nonane, a-méthyl-décane) et les aromatiques (le toluène, les xylènes, l'éthylbenzène, les triméthyl-benzènes, les éthyl-toluènes et les cymènes). Les hydrocarbures linéaires (alcanes), aromatiques (benzéniques) et cycliques (cycloalcanes) représentent près de 62 % en masse des COV émis par le casier Témoin. Il est intéressant de noter que les composés à 4 atomes de carbone : butane, 1 & 2-butanol, 2-butanone figurent parmi les composés majoritaires. Les terpènes, et en particulier le d-limonène, l'alpha-pinène et le 3-carène sont très majoritaires. Le dichlorométhane est le composé chloré le plus important. Les concentrations d'alcènes, d'aldéhydes, de furanes et d'acides organiques sont restées faibles tout au long du suivi (généralement inférieures à 10 mg.Nm⁻³).



Graphique 13 : Evolution de la production cumulée de COV du casier Témoin

L'évolution de la production cumulée des COV par famille chimique est représentée dans le Graphique 13. Le Tableau 33 donne la masse cumulée totale émise par famille chimique ainsi que celle associée aux composés majoritaires et/ou prioritaires.

Au total après 34 mois de stockage, 88,8 g de COV ont été émis par tonne de déchet sec enfoui. Ceci représente une émission de carbone sous forme organique non méthanique de 72,2 g $C.t_{MS}$ ⁻¹. Les exploitations plus en avant du phénomène d'émission ainsi que les relations potentielles entre les différents facteurs d'émissions sont présentées dans le chapitre V et dans la discussion (Partie 4).

Familles Chir	niques	Composés majoritaires	
en g.t _{MS}	-1	en mg.t _{MS} ⁻¹	
Alcanes	25,7	Décane	5 938
Cycloalcanes	7,4	2-Butanol	2 036
Alcènes	0,1	Acétone	251
Alcools	5,4	2-Butanone	2 337
Aldéhydes	0,1	Benzène	63
Cétones	3,0	Toluène	2 356
Aromatiques	21,7	Ethylbenzène	2 036
Terpènes	17,2	Xylènes (o, m, p)	3 737
Soufrés	0,1	a,b,c-triméthyl-benzène	2 423
Chlorés	2,7	Naphthalènes (8H & 10H)	600
Furanes	0,1	Trichloromonfluorométhane	129
Acides	< 0,1	Dichlorométhane	2 459
Esters	5,1	a,b-dichlorobenzène	87
Total	<u> 99</u> 7	1,2,3-trichloro-Benzène	35
TULAI	00,7	Trichloréthylène	26

Tableau 33 : Production cumulée de COV du casier Témoin

III.1.5.2.c : Emissions d'odeur

L'intensité olfactive du biogaz du casier Témoin a été mesurée par olfactométrie dynamique. Les résultats des mesures sont présentés dans le Tableau 34.

Durée	Intensité
d'enfouissement	olfactive
mois	UO.Nm ⁻³
0,2	10 725
3,7	5 025
7,1	5 365
9,7	5 225
10,6	6 105
12,6	25 825
17,5	32 055
20,7	27 335
25,7	50 815
29,7	27 169
33,2	263 400
Flux d'oo	deur
8,62 x 10 ⁶	UO.t _{MS} ⁻¹

Tableau 34 : Evolution de l'intensité olfactive du biogaz issu du casier Témoin

L'intensité olfactive du gaz extrait des déchets frais est de 10 725 UO.Nm⁻³, puis le déchet présente une intensité olfactive comprise entre 5000 et 6000 UO.Nm⁻³ durant les 12 premiers mois d'enfouissement. La concentration d'odeur augmente significativement au cours de la seconde année d'enfouissement (28 000 UO.Nm⁻³ en moyenne). L'apparition de H_2S dans le biogaz peut être responsable des intensités olfactives mesurées au mois 25,7

(50 815 UO.Nm⁻³) et au mois 33,2 (263 400 UO.Nm⁻³). Au total, le flux d'odeur atteint 8,62 x 10^6 UO.t_{MS}⁻¹, soit 6,20 x 10^7 UO.t_{DE}⁻¹.

III.1.6 : Estimation de la perte de masse et évolution de l'humidité du massif

La perte de masse sèche (PMS) du déchet stocké dans le casier Témoin a été évaluée tout au long du suivi en prenant en compte les flux massiques de matière émis par voies liquide et gazeuse. La PMS s'élève à environ 617 kg, soit 9,1 % de la masse sèche initiale. Celle-ci est très largement dominée par la perte de matière par voie gazeuse (606 kg, 98 % de la PMS totale). La perte de masse s'effectue principalement par l'intermédiaire de la minéralisation du carbone organique sous forme de CO_2 et de CH_4 , qui représente respectivement 68 et 30 % de la PMS totale. La perte de masse sous forme de COV, de H_2S , de N_2O ou de NH_3 est négligeable. Dans le présent scénario, la voie liquide est anecdotique mais est toutefois largement sous estimée, d'une part, du fait de la caractérisation des lixiviats qui n'est pas exhaustive et, d'autre part, à cause de l'absence de lixiviats les 24 premiers mois interdisant le phénomène de lessivage du déchet pendant une longue période. La voie liquide représente environ 2 % de la perte de masse sèche totale.

L'estimation de l'humidité du massif peut être effectuée, à partir des flux liquides entrant et sortant et de la masse sèche réelle calculée, grâce à la formule explicitée au paragraphe V.5.2.1.b de la partie 2. L'évacuation d'eau par le biogaz correspond à environ 5 L.t_{MS}⁻¹ et mérite donc d'être prise en compte dans le bilan hydrique. Ainsi, l'introduction dans le système de 395 L.t_{MS}⁻¹ pour la simulation de pluie, la production de 128 L.t_{MS}⁻¹ (après 33,1 mois) de lixiviat et une perte de masse sèche de 9,1 % aboutissent à une humidité du déchet d'environ 41,8 %. L'humidité apparente calculée à partir du seul bilan hydrique (sans prendre en compte la perte de masse) est de 39,5 %.

III.1.7 : Tassement et évolution de la densité

L'évolution du volume du massif de déchet a été suivie à l'aide des tassomètres décrits dans les figures 13 et 16. Le tassement relatif du massif ainsi que l'évolution des densités effectives sèche et humide (densités calculées en prenant en compte la perte de masse sèche et l'évolution de l'humidité) sont présentés dans le Graphique 14.

Les densités effectives initiales sèche et humide égales respectivement à 0,34 et 0,47 t.m⁻³ ont augmenté respectivement de 28 et 55 % pour atteindre 0,44 et 0,74 t.m⁻³. La densité sèche est relativement stable entre les mois 24 et 31, indiquant que le phénomène de tassement compense exactement la perte de masse. Il est intéressant de noter que la densité sèche diminue légèrement en fin de suivi, indiquant que le phénomène de perte de masse a pris le pas sur le phénomène de tassement. Une des conséquences pourrait être un « effondrement » de la structure suite à une accélération du tassement du massif, lequel a pu être fragilisé par un transfert de masse important de la phase solide vers la phase gazeuse lors des derniers mois. Il est par ailleurs intéressant d'observer que l'écart entre la densité sèche et humide augmente régulièrement au cours du temps. Le tassement relatif du massif atteint, après 34 mois de stockage, 29 %. Le tassement primaire est largement mis en évidence par la mesure effectuée dès le troisième mois de stockage.

L'évolution des tassements ainsi que le comportement géomécanique du déchet est discuté dans la partie 4 - 1.3.



Graphique 14 : Evolution des densités effectives et du tassement du casier Témoin

III.1.8 : Bilans carbone et azote

Les données issues du suivi du casier permettent d'élaborer le bilan sur le carbone et l'azote du massif de déchet après 33,1 mois de stockage. Les deux bilans sont susceptibles d'évoluer sensiblement durant les prochains mois étant données l'activité biologique intense au sein du massif et l'accentuation du processus de lessivage amorcé tardivement. Les deux bilans sont illustrés par le Tableau 35.

Ca	arbone entrant	Carbone resta	nt (33,1 mois)				
сот	223 kg C.t _{MS} ⁻¹	83	3%				
01	1516 kg C	12	58				
CIT	Ν	lon mesuré					
			A	zote entrant	N restant	(33,1 mois)	
C évaci	ué par voie gazeuse	% COT _{initial}	% COT _{perdu}	10,8 kg N.t _{MS} ⁻¹		97	7%
C-CO ₂	17 kg C.t _{MS} ⁻¹	8%	44%	N _{total} 73,4 kg N		70),9
2	115 kg C		,.	Νόνος		≪ N	9/ N
	21 kg C.t _{MS} ⁻¹	0%	EE%	N EVACI		70 Ninitial	/o Nperdu
С-СП4	142 kg C	9%	33%	$N-N_2O$	1397 mg N.t _{MS}	104 ppm	4‰
C-COV	72 g C.t _{MS} ⁻¹	0.3%	2%		2 mg N t ⁻¹		
0.001	491 g C	0,5/00	2700	$N-NH_3$	16 mg N	0,2 ppm	6 ppm
	C evacue pai			N évac	ué par voie liquide	% N _{initial}	% N _{perdu}
СІТ	208 g C.t _{MS} ⁻¹	-	-	м	368 g N.t _{MS} ⁻¹	20/	00 (%
•	1412 g C			N _{total}	2504 g N	3%	99,6%
сот	163 g C.t _{MS} ⁻¹	% COT _{initial}	% COT _{perdu}	NШ ⁺	326 g N.t _{ms} -1	3%	88%
	1107 g C	0,7‰	4‰	111 ₄	2215 g N	%د	00%

Tableau 35 : Bilan carbone et azote du casier Témoin

L'absence de mesure du CIT dans le déchet entrant ne permet pas de normaliser les émissions de CIT par voie liquide par rapport au CIT contenu dans le déchet entrant.

L'étude du bilan carbone fait apparaître que 17 % du carbone organique total initial a été perdu principalement sous la forme de CO_2 et CH_4 (8 et 9 % du COT initial). La volatilisation de composés organiques non méthaniques (NMOC) est négligeable dans le bilan carbone (2 ‰ du COT perdu). Le bilan azote, quant à lui, indique que l'azote initial du déchet a principalement été évacué par voie liquide sous sa forme ammoniacale. Seule une infime proportion des 4 % d'azote initial perdu ont conduit à l'émission de N₂O et de NH₃ (respectivement 4 ‰ et 6 ppm).

III.2 : Casier Bioréacteur : recirculation des lixiviats

III.2.1 : Généralités

Le déchet placé dans le casier Bioréacteur a été broyé grossièrement tel que décrit dans le paragraphe III.1 de la partie 2. 11,72 tonnes du déchet ainsi prétraité ont été enfouies suivant la procédure décrite au paragraphe III.3.1 de la partie 2. L'humidité initiale du déchet similaire à celle du déchet du casier Témoin était de 28,1%, ce qui représente une masse sèche initiale enfouie de 8,43 tonnes. La densité humide initiale s'élève à 0,59 t.m⁻³ pour une densité sèche de 0,43 t_{MS}.m⁻³. La différence notable de la densité du massif dans le Bioréacteur comparée à celle dans le casier Témoin peut être attribuée au broyage grossier des déchets. L'effet du broyage sur la densité de placement a déjà été décrit par Chang (1993) et Komilis et al. (1999). L'homogénéisation des déchets, l'ouverture des sacs et la réduction granulométrique sont responsables d'un meilleur réarrangement des composants du déchet et donc accroît l'efficacité du compactage pratiqué lors du remplissage du casier. La densité atteinte reste toutefois faible par rapport aux densités obtenues sur sites réels (cf. paragraphe I.1.1).

III.2.2 : Evolution de la température du massif et recirculation des lixiviats

L'acquisition de température, débutée après 3,2 mois d'enfouissement au milieu de l'hiver 2003-2004, confirme les observations effectuées sur le casier Témoin, à savoir, le maintien à des températures relativement basses des casiers durant les 8 premiers mois de stockage (les points de mesures dispersés montrent des températures comprises entre 6 et 10°C) (cf. Graphique 15).



Graphique 15 : Evolution de la température du massif, de la composition du biogaz et des périodes de recirculation de lixiviats pour le casier Bioréacteur

De la même manière que pour le casier Témoin, le massif subit les variations saisonnières de températures extérieures jusqu'au 15^{ème} mois d'enfouissement et l'installation du

massif de compost isolant. La montée en température est alors tout aussi brusque que pour le casier Témoin. Le massif présente une température supérieure à 40°C au 18^{ème} mois. Une légère baisse de la température de quelques degrés entre les mois 22 et 27 est observée mais n'apparaît pas significative. La recirculation des lixiviats tient une place fondamentale dans le concept du Bioréacteur. Elle a été rendue opérationnelle le plus rapidement possible, avant même la mise en place du massif isolant. Les différentes phases de recirculation sont matérialisées sur l'abscisse du Graphique 15 par des barres qui chacune représente un événement de recirculation (1 bâché de 8 $L.t_{MS}^{-1}$ ou 5,8 $L.t_{DE}^{-1}$). Par ailleurs, le résumé des conditions de recirculation des différentes phases est donné dans le Tableau 36. Après quelques essais de recirculation pratiqués durant les premiers mois, la première phase de recirculation débute réellement au cours du 8^{ème} mois de stockage. Après 8,5 mois de recirculation plus ou moins intense selon la quantité de lixiviats à disposition et les aléas techniques (1347 $L.t_{MS}^{-1}$ de lixiviats recirculés), la recirculation a été stoppée pour permettre le drainage du déchet et la réalisation d'un premier bilan au mois 17,5. Les trois phases suivantes ont été de plus faible intensité sur des durées beaucoup plus courtes (entre 3 et 6 mois pour une recirculation effective comprise entre 30 et 60 jours). La cinquième période de recirculation débutée après 31 mois de stockage s'est achevée peu de temps avant la fin de l'acquisition des données. Elle ne sera donc pas prise en compte dans les bilans des émissions de polluants par voie liquide puisque le déchet se trouvait alors en phase de drainage. Au total, sur les 4 premières phases, un total de 1766 $L.t_{MS}^{-1}$ de lixiviat a été recirculé ou 1270 $L.t_{DE}^{-1}$, dont plus de 76 % durant la première phase de recirculation. En moyenne depuis l'enfouissement des déchets, la recirculation atteint 1,26 L.t_{DE}⁻¹.j⁻¹, soit un taux de fonctionnement de la réinjection de 16 %. Le taux de recirculation appliqué jusqu'alors est relativement faible par rapport aux expériences menées au Sonoma County (5,7-7,9 L.t_{DE}⁻¹.jour⁻¹; Leckie et al., 1979) mais se trouve dans la fourchette haute des expériences menées en France à Lons-Le-Saunier (0,11 L.t_{DE}⁻¹.jour⁻¹; Olivier, 2004), à La Vergne (0,11-0,22 L.t_{DE}⁻¹.jour⁻¹; Olivier, 2004) ou aux Etats-Unis à Yolo County (0,73 $L.t_{DE}^{-1}.jour^{-1}$, Metha et al., 2002), à Sandtown (0,93 L.t_{DE}⁻¹.jour⁻¹; Morris et al., 2002).

Ce taux de recirculation modéré ne semble pas avoir eu d'influence mesurable sur le comportement thermique du massif de déchet, que ce soit avant ou après son isolation par le compost. La température atteinte au pic de la période estivale (22°C au 12^{ème} mois) est en effet similaire à celle atteinte par le casier Témoin à la même période.

En plus de la recirculation et de la production de lixiviat, il est intéressant de noter :

• les ajouts d'eau au système pour palier au manque de lixiviats ou permettre leur dilution en cas d'effluents trop chargés pour la réinjection (noté Eau ajoutée),

• l'évacuation de lixiviats soit pour effectuer les analyses, soit à cause d'une capacité de stockage du lixiviat insuffisante (noté Lix. Evacué).

Ces deux grandeurs interviennent dans le bilan hydrique du système « casier + cuve de stockage » en tant qu'entrée et sortie du système, contrairement au lixiviat recirculé et au lixiviat produit qui déterminent le bilan hydrique du massif de déchet et participent au calcul de la variation d'humidité du déchet (cf. III.2.6). La charge polluante contenue dans le lixiviat évacué est par ailleurs prise en compte pour les flux de polluants. L'ajout d'eau claire dans la cuve de stockage induit une modification de la composition des lixiviats

PFRIODE	IODE Début Fin		Lix. recirculé	Lix. produit	Lix. évacué	Eau ajoutée
TERRODE	(en r	nois)		(en L.t	t _{ms} -1)	
			PHA	SE 1		
Recirculation	0,0	15,8	1347	1219	56	196
Drainage	15,8	17,5	-	28	2	-
TOTAL PHASE 1		1	1347	1247	58	196
			PHA	SE 2		
Recirculation	17,5	18,5	97	20	3	29
Drainage	18,6	21,1	-	18	4	-
TOTAL PHASE 2		2	97	37	7	29
			PHA	SE 3		
Recirculation	21,1	22,5	129	62	1	66
Drainage	22,5	26,7	-	113	64	-
TOTAL F	PHASE	3	129	175	66	66
			PHA	SE 4		
Recirculation	26,7	28,8	193	119	17	24
Drainage	28,8	30,8	-	65	21	-
TOTAL F	PHASE	4	193	185	38	24

réinjectés, qu'il convient de prendre en compte dans l'interprétation de la qualité des effluents en sortie du casier. Les volumes mis en jeu au cours des différentes phases sont repris dans le Tableau 36.

Tableau 36 : Bilan des différentes phases de recirculation du casier Bioréacteur

III.2.3 : Composition et production de biogaz

Le Graphique 16 représente l'évolution de la production mensuelle et cumulée de CO_2 et de CH_4 du casier Bioréacteur. La composition du biogaz extrait est présentée dans le Graphique 15.

Dès la mise en place du système de dégazage et durant 5 mois environ, il a été possible d'extraire un flux mensuel de CO_2 compris entre 0,5 et 1 Nm³ $CO_2.t_{MS}$ ⁻¹. Durant la même période, comprise entre le 9^{ème} et le 14^{ème} mois de stockage, une quantité de méthane, faible mais en constante croissance, a été extraite du casier, indiquant une méthanogénèse naissante (jusqu'à 0,5 Nm³ CH₄.t_{MS}⁻¹.mois⁻¹ au 12^{ème} mois).

La production de biogaz est quasiment nulle dans la période 13,5 - 15,5 mois. Cette période correspond à la chute de température du massif qui passe en dessous de 15° C après 14,5 mois. La nette remontée en température du déchet successive à la mise en place du compost (15^{eme} mois) semble induire un dégazage du massif sans pour autant provoquer une reprise durable de la production de biogaz qui stagne jusqu'au 18^{eme} mois de stockage. Toute cette période correspond par ailleurs à une absence de recirculation de lixiviat (cf. Graphique 15).

L'épisode de production de CO_2 centré sur le mois 18 se superpose parfaitement avec la période de recirculation de la seconde phase. L'introduction de lixiviats peut, à court terme, faciliter le dégazage du massif en déplaçant les gaz retenus dans les pores du déchet. La seconde période de recirculation amorce aussi une progression de la

concentration de méthane dans le biogaz, le ratio CH_4/CO_2 dépasse l'unité au mois 21 et se stabilise à 1,5 deux mois plus tard. A partir du 21^{eme} mois de stockage, la production de biogaz s'accélère, marquant l'installation de la phase de méthanogénèse stable (production mensuelle de biogaz d'environ 3 Nm³.t_{MS}⁻¹. La qualité du biogaz présente alors une bonne constance autour de 60 % de CH₄ et 40 % de CO₂ (cf. Graphique 15).



Graphique 16 : Production de biogaz du casier Bioréacteur

En faisant abstraction des aléas techniques, matérialisés par des irrégularités dans la courbe de production cumulée (Graphique 16), la production de biogaz semble présenter 2 cinétiques distinctes séparées par une rupture de pente assez nette à 28,6 mois. La première cinétique, entre les mois 21 et 29, correspond à des productions d'environ 1,2 et 1,7 Nm³.t_{MS}⁻¹.mois⁻¹ respectivement pour le CO₂ et le CH₄, la seconde, à partir du mois 29, d'environ 6,6 et 10,1 Nm³.t_{MS}⁻¹.mois⁻¹ pour le CO₂ et le CH₄.

Au total, après les 34 premiers mois d'enfouissement, un total de 83,4 $\text{Nm}^3.t_{\text{MS}}^{-1}$ de biogaz a été capté, représentant 29,1 et 33,2 $\text{Nm}^3.t_{\text{MS}}^{-1}$ de CO₂ et de CH₄. Ceci représente un abattement de 31 % du BMP pour une production d'environ 30 % du potentiel de biogaz à 53 % de méthane en moyenne.

III.2.4 : Production et composition du lixiviat produit

Le suivi de la composition des lixiviats a été effectué en sortie de casier ainsi que dans la cuve de stockage. Le premier informe sur les conditions au sein du massif ainsi que sur la pollution relarguée par le pilote alors que le second permet de connaître la qualité du lixiviat réinjecté dans le casier et la quantité de pollution ressortie à la fin de chaque période de drainage pour effectuer les bilans de chaque phase de recirculation. L'évolution de la qualité des lixiviats dans la cuve est présentée dans l'Annexe 3.

Le Tableau 37 présente les résultats du suivi de la qualité des lixiviats du Bioréacteur. La production de lixiviat suivant les différentes phases est résumée dans le Tableau 36.

Durée enfouissement	pН	Cond.	AGV*	сот	СІТ	DCO	N _{total}	NO3 ⁻	${\rm NH_4}^+$	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Fe	P _{total}	\$04 ²⁻	CI.
mois	-	μS.cm ⁻¹	mg.L ⁻¹	mg C	L ⁻¹	mg 0 ₂ .L ⁻¹	i	mg N .L	1		mg.L ⁻¹		mg P.L ⁻¹	mg	.L ⁻¹
1,1	5,98	20 600	9 780	20 043	1 068	40 487	-	-	-	3 270	281	58	19	1 112	2 200
1,4	6,09	8 180	3 300	7 410	372	14 968	-	-	-	1 042	-	21	8	299	619
1,6	6,19	4 940	1 860	3 402	1 950	6 871	-	-	-	525	191	7	4	144	423
1,8	5,93	5 240	5 130	2 879	429	5 816	-	-	-	337	84	6	4	103	421
2,1	5,90	4 850	2 190	3 839	249	7 755	-	-	-	523	88	5	3	120	416
2,3	5,93	5 200	2 220	4 098	216	8 278	-	-	-	583	65	7	3	134	390
2,7	6,09	17 950	8 460	17 633	994	35 618	-	-	-	1 980	237	45	15	760	1 439
3,2	6,36	27 300	12 210	27 364	1 779	55 275	2 205	13	1 853	3 190	259	93	21	1 559	2 190
3,6	6,24	30 400	24 780	22 923	2 004	46 303	2 788	14	2 342	4 102	475	99	25	1 488	2 737
4,3	6,09	32 800	21 720	26 137	2 088	52 795	3 274	14	2 751	3 527	125	55	23	1 797	2 318
7,2	6,19	33 300	26 460	22 543	2 373	45 537	3 856	17	3 239	2 853	551	25	6	1 726	3 153
9,4	6,19	32 300	27 450	33 480	2 292	67 628	3 327	16	2 795	3 151	442	202	21	1 430	2 799
10,1	5,89	33 200	26 400	34 787	2 472	74 103	3 165	14	2 659	4 226	474	252	29	1 198	2 983
11,5	5,87	35 300	27 200	36 059	2 692	76 812	3 208	14	2 695	3 190	363	314	28	1 534	3 407
12,2	5,93	36 100	26 000	37 795	2 856	80 509	3 427	2	2 879	4 246	456	326	30	1 481	3 182
13,1	5,97	36 100	34 800	33 550	2 770	75 591	3 761	19	3 160	4 201	474	362	28	1 632	2 732
14,0	6,09	36 100	36 648	30 326	-	78 801	3 857	15	3 240	4 736	620	349	27	1 692	3 796
15,0	6,07	36 400	36 061	29 840	-	77 538	3 219	19	2 458	4 444	620	388	26	1 514	3 030
15,9	6,08	36 900	36 400	29 820	2 960	77 484	4 859	27	4 082	4 429	-	323	20	2 042	3 034
16,6	6,11	37 400	36 000	32 608	3 024	84 729	3 644	15	3 083	4 518	616	308	28	1 759	2 522
18,2	6,09	37 300	31 600	27 107	3 180	83 188	4 678	29	3 760	4 280	561	344	15	1 080	3 019
18,9	6,10	38 100	32 600	24 368	3 212	84 400	4 907	18	3 895	4 023	589	333	13	1 225	3 244
19,8	6,15	38 500	30 400	24 940	3 300	86 384	4 640	28	3 812	4 206	725	352	13	1 755	366
20,7	6,22	39 400	33 200	26 867	3 370	93 057	4 840	31	3 760	4 389	536	389	9	2 116	2 584
21,6	6,62	36 100	8 400	17 739	884	61 443	4 181	17	3 645	2 849	478	170	11	902	1 059
23,4	8,16	24 900	-	3 076	-	10 654	2 897	12	2 625	0	498	52	21	842	1 052
24,4	8,76	27 200	-	1 834	-	7 290	3 313	13	3 125	5	266	30	21	607	1 681
25,7	8,33	36 800	1 000	1 357	2 260	5 293	4 678	16	4 093	96	358	18	17	373	2 993
26,7	8,81	31 700	800	1 439	1 868	5 611	3 809	15	3 021	39	382	25	11	557	2 839
27,6	8,03	27 800	1 000	1 701	1 520	6 632	2 912	18	2 333	73	129	29	19	612	2 399
28,7	7,85	31 800	800	1 712	1 718	6 675	3 614	21	3 000	49	152	21	45	696	2 793
29,7	7,94	32 000	1 000	1 731	1 716	6 752	3 532	22	3 041	11	115	17	37	571	2 860
30,8	8,08	32 300	1 000	1 774	1 784	6 788	3 399	24	3 281	50	81	17	32	452	3 065
32,0	8,14	29 200	1 000	1 675	1 630	6 411	3 933	28	2 291	34	79	16	48	483	2 538
32,6	8,24	26 200	1 000	1 471	1 452	5 629	2 912	25	2 635	33	55	16	35	493	2 420
33,6	8,11	29 900	-	1 799	1 654	6 882	3 819	32	3 166	32	78	15	52	624	2 839
* équivale	nt acid	le acétiq	ue			séparatio	n des di	fférente	es phase	s de rec	irculatio	n -	Non mes	uré	

Tableau 37 : Evolution de la composition des lixiviats en sortie du Bioréacteur

La qualité des lixiviats en sortie du Bioréacteur est clairement marquée par 2 phases bien distinctes. L'analyse du pH permet de distinguer une première phase, de l'enfouissement jusqu'au 22^{eme} mois, caractérisée par des conditions de milieu relativement acides qui indiquent le déroulement de l'acidogénèse (pH < 6,62). Les concentrations en AGV mesurées (jusqu'à 36 648 mg.L⁻¹ équivalent acide acétique) confirment cette observation. Le carbone organique et la DCO des effluents durant cette période se maintiennent à des niveaux élevés (respectivement environ 30 g C.L⁻¹ et 80 g O₂.L⁻¹). Ceci indique un potentiel de relargage du déchet très important. La constance de la composition des lixiviats à partir du mois 10 met en évidence un certain équilibre entre le déchet et la phase liquide. En effet, la dilution des lixiviats réinjectés induite par les ajouts d'eau claire successifs (aux mois 12,6 ; 15,2 ; 16,6 ; 17,5 et 20,7) n'a aucun effet sur les lixiviats produits qui se rechargent en polluants quasiment à l'identique. Même si le temps de séjour exact du lixiviat dans le Bioréacteur n'est pas connu, la durée sur laquelle le phénomène est observé apparaît suffisante pour conclure à l'établissement d'un équilibre de relargage. François (2004) a montré que quelle que soit la solution lixiviante et l'âge du déchet, un

temps de contact entre le déchet et la phase liquide de 24 h suffit à atteindre l'équilibre. D'après ces observations, il est possible de penser que le système présente des conditions similaires à celles d'un test de lixiviation en batch de 24 h et fournit les conditions optimales pour les échanges entre la phase liquide et la phase solide. Ces conditions sont par ailleurs un point encourageant pour le premier objectif de la recirculation qui est d'humidifier au mieux le massif de déchet.

Les autres espèces présentent le même palier avec une constance légèrement moins marquée. Le calcium oscille autour de 4 g.L⁻¹, les chlorures autour de 3 g.L⁻¹, les sulfates autour de 1,5 g.L⁻¹, le magnésium autour de 550 mg.L⁻¹ et le fer autour de 350 mg.L⁻¹. La conductivité croît légèrement tout au long du suivi pour atteindre un maximum au 21^{ème} mois de stockage à 39,4 mS.cm⁻¹. Les concentrations en calcium sont à un seuil inhibiteur pour la méthanogénèse (2500 - 4500 mg.L⁻¹) et la conductivité des lixiviats est très supérieure à la conductivité optimale définie par Farquhar et al. (Cf. Tableau 1). Les formes azotées présentent des concentrations relativement importantes dès le 4^{ème} mois de stockage. Les ammoniums représentent en moyenne 83 % de l'azote total présent dans le lixiviat, marquant une intense production d'ammonium au sein du massif. Régulièrement mesurées au dessus de 3 g.L⁻¹, la concentration en NH₄⁺ peut avoir un rôle inhibiteur selon les valeurs relevées dans la littérature (cf. Tableau 1).

La principale question à laquelle il semble difficile de répondre est : jusqu'à quel point le lixiviat est représentatif des conditions dans le déchet ? L'hétérogénéité spatiale des conditions physico-chimiques au sein du massif permet de concevoir qu'il existe des zones inhibées avec une phase liquide extrêmement chargée, et des zones plus propices au développement de l'activité biologique. Ceci explique la coexistence d'une production de méthane malgré des lixiviats qui présentent les caractéristiques d'inhibitions mises en évidence en laboratoire.

L'élévation importante du pH, après la troisième phase de recirculation au mois 22, marque un changement dans le comportement au relargage du déchet. Le pH passe en effet brusquement de 6,22 au mois 20,7 à 8,16 deux mois plus tard. Dans le même temps, le déchet qui avait montré jusque là un important potentiel de relargage n'est plus en mesure de tenir l'équilibre avec la phase liquide. L'ensemble des indicateurs, à l'exception des chlorures et des formes azotées, chute de manière importante. Cette modification brusque est très bien corrélée avec la reprise de la recirculation de lixiviats (phase n°3) préalablement dilués. Ceci confirme les informations du biogaz qui indiquaient à cette période l'installation d'une méthanogénèse stable (Cf. paragraphe III.2.3). La représentation graphique des principaux paramètres du lixiviat est donnée dans l'Annexe 5.

Le recoupement des informations sur le biogaz, les lixiviats et les conditions thermiques et hydriques du massif permet d'avancer quelques hypothèses pour expliquer le phénomène observé.

La recirculation importante de la première période a favorisé le lessivage du déchet et la production d'un lixiviat extrêmement chargé (accumulation d'AGV entre autre). Ceci ne semble pourtant pas inhiber complètement le déchet qui, à la faveur d'une remontée estivale de sa température, montre des signes de production de méthane. L'introduction d'un lixiviat dilué à plusieurs reprises durant cette période peut expliquer la production de

méthane malgré des lixiviats en sortie Bioréacteur qui montrent des conditions de milieu très défavorables (hétérogénéité spatiale des conditions physico-chimiques induites par la recirculation).

L'intensification de la recirculation à partir du mois 12, alliée à la chute des températures, entraîne une réduction de la production de biogaz qui stagne jusqu'à la mise en place du compost isolant. La brusque remontée en température conduit à une production sensible de biogaz mais les conditions du milieu liées à la qualité du lixiviat produit à cette période restent identiques, le déchet montrant un potentiel de relargage toujours aussi important.

La relance de la recirculation d'un lixiviat dilué au $18^{\text{ème}}$ mois de stockage peut avoir eu pour effet la reprise de l'activité des acétogènes, accentuée par l'effet de dilution locale des espèces inhibitrices et par la température du massif devenue optimale pour leur développement. Cette hypothèse est d'ailleurs supportée par une sensible production de CO₂ mesurée durant la recirculation (entre 0,5 et 1 Nm³ CO₂.t_{MS}⁻¹.mois⁻¹ aux $18^{\text{ème}}$ et $19^{\text{ème}}$ mois).

L'activité des acétogènes peut accentuer les effets de dilution locale de la recirculation en consommant les AGV et peut favoriser l'installation progressive des conditions propices au développement des méthanogènes. La concentration de méthane dans le biogaz présente d'ailleurs une croissance extrêmement rapide (entre 3 % au 18^{ème} mois et 61 % trois mois plus tard). Ces premiers signes ne sont sans doute représentatifs que de la partie supérieure du massif, puisque la production de biogaz ne commence à augmenter que 2 mois plus tard ($21^{ème}$ mois) et les lixiviats produits à cette période présentent toujours une charge polluante extrêmement élevée.

C'est avec la troisième phase de recirculation que le système se désinhibe complètement. Les lixiviats produits indiquent un épuisement du potentiel de relargage du déchet et la production de biogaz croît de manière importante pour atteindre les cinétiques décrites plus haut (Cf. paragraphe III.2.3).

D'après ces observations, et sans plus de certitudes, il semble que la recirculation de lixiviat sur un massif de déchet à faible température ait entraîné une accumulation d'AGV produits par une acidogénèse peu influencée par la température. Ce qui n'est pas le cas des acétogènes et encore moins des méthanogènes qui constituent les seuls consommateurs d'AGV. Le système ainsi inhibé n'a pu se rétablir qu'avec l'établissement de conditions thermiques optimales et le retour très progressif (vraisemblablement à partir du haut du massif) de conditions compatibles avec la méthanogénèse. Ce rétablissement a été initié par l'effet de dilution locale de la recirculation appuyé par la relance de l'activité des acétogènes consommateurs d'AGV. L'impact des conditions thermiques sur les différentes flores qui interagissent au sein du massif est peu décrit dans la littérature. L'hypothèse de la meilleure adaptation de la flore acidogène aux faibles températures par rapport aux acétogènes et méthanogènes, sur laquelle repose la précédente proposition, n'est cependant pas clairement établie.

III.2.5 : Flux de pollution

III.2.5.1 : Polluants par voie liquide

Dans le cas du concept du Bioréacteur, la pollution évacuée par voie liquide dépend grandement de la gestion des lixiviats durant le stockage. En effet, la disponibilité des lixiviats, la capacité de stockage disponible, le ou les scénarios de recirculation adoptés et l'historique de chaque massif de déchet aura, plus que pour un stockage conventionnel, un impact important sur les flux de lixiviats à gérer. Les résultats qui ressortent de chaque expérimentation sont donc à relier aux conditions expérimentales et sont difficilement applicables à d'autre cas.

Les flux de lixiviats par voie liquide pris en compte dans le présent bilan sont, pour chaque phase de recirculation, détaillés en Annexe 3. Le bilan final au terme des 4 phases de recirculation reprend ces données et ne considère que la pollution sortie du système par les lixiviats évacués et la pollution accumulée dans les lixiviats disponibles pour la réinjection à la fin de la période de drainage de la phase 4 (appelés « lixiviat cuve »). Le Tableau 38 présente le résumé des données.

Pollution	DCO	AGV	СОТ	CIT	N _{total}	NO ₃	${\rm NH_4}^+$	P _{total}	Fe	SO4 ²⁻	Cl	Ca ²⁺	Mg ²⁺
Follation	$g O_2.t_{MS}^{-1}$	g.t _{MS} ⁻¹	g C.t	-1 MS		g N.t _{MS} ⁻¹				g.t _A	-1 NS		
Lixiviat cuve	261	33	32	70	137	1	128	1	1	20	122	1	4
Lix. Évacué	5 029	2 051	2 090	365	582	3	491	3	18	158	423	234	51
Total	5 290	2 084	2 122	435	719	4	619	4	19	178	545	235	55

Lixiviat recirculé	ixiviat recirculé Lixiviat produit Lixiviat évacué Eau ajouté									
	L.t _{MS} ⁻¹									
1766 1644 168 313										

Tableau 38 : Cumuls des flux liquides et pollution relarguée après 4 phases de recirculation

Ces données font apparaître un important relargage de pollution carbonée principalement du fait de l'évacuation importante de lixiviat lorsque celui-ci présentait une charge polluante élevée (58 L.t_{MS}⁻¹ lors de la phase 1). 71 % du flux de DCO est à mettre à l'actif des lixiviats sortis du système lors de la première phase de recirculation (mois 0 au mois 17,5) et respectivement 79 et 82 % des flux d'AGV et de COT. En moyenne, la phase 1 compte pour environ 50 % du flux total de pollution. Le lessivage de l'azote semble moins influencé par ce phénomène puisque 26 % du flux total d'ammonium seulement (27 % de l'azote total) a été produit durant la première phase. Ceci met en évidence le caractère à plus long terme du lessivage de l'azote.

Les formes azotées sont largement dominées par les ammoniums qui représentent 86 % du flux d'azote total relargué au terme des 4 phases de recirculation.

Le lixiviat évacué représente le principal vecteur de pollution par voie liquide (en moyenne 88 % de la pollution relarguée) et confirme l'impact important de la gestion des lixiviats sur le bilan de la pollution relarguée par le Bioréacteur. Les flux de pollution calculés ne peuvent être de la présente expérimentation et de ses conditions expérimentales particulières. Le volume de lixiviat évacué, et donc à traiter, représente près de 54 % de l'eau ajoutée au système. En d'autres termes, une meilleure gestion des lixiviats (une capacité tampon de stockage plus importante par exemple) aurait permis de diminuer de moitié la quantité de lixiviat évacuée. Elle aurait en outre accru la quantité de « lixiviat cuve » disponible à la fin de la phase 4 (et ainsi la pollution contenue dans celle-ci) mais sans doute empêché l'effet bénéfique sur le déchet de la dilution des lixiviats. L'ajout d'eau au système équivaut à un débit moyen sur la durée d'enfouissement d'environ 10 $L.t_{MS}^{-1}$.mois⁻¹, environ 20 % plus faible que la simulation de précipitation appliquée aux autres pilotes.

La perte de matière sèche associée à ces flux liquides équivaut à 5753 g. t_{MS}^{-1} .

III.2.5.2 : Polluants par voie gazeuse



III.2.5.2.a : Emissions de H₂S et de N₂O

Graphique 17 : Evolution de la teneur en N_2O et H_2S du biogaz du casier Bioréacteur et flux émissifs associés

Le suivi des émissions n'a pas permis d'identifier d'ammoniac dans les effluents gazeux, les flux émissifs sont inférieurs à 60 mg. t_{MS}^{-1} (étant donnée la limite de détection de la mesure NH₃ (1 ppm) et le volume de biogaz déjà produit).

La concentration de H₂S relevée durant les premiers mois de captage du biogaz est significative (entre 20 et 40 ppm). Celle-ci chute entre les mois 12 et 20 (< 5 ppm) avant de remonter à partir du 19^{ème} mois, jusqu'au 24^{ème} mois. La production cumulée de H₂S augmente de 118 % entre les mois 20 et 25. Ceci concorde avec la période d'établissement de la méthanogénèse stable. Il est possible de penser que les conditions du milieu, optimales pour les méthanogènes à cette période, le sont tout autant pour les BSR. La concentration de sulfates dans les lixiviats présente d'ailleurs une nette baisse (de 2116 au mois 20,7 à 373 mg.L⁻¹ au mois 25,7). A partir du 25^{ème} mois, les concentrations en H₂S chutent. Malgré un pic au mois 29 (20 ppm), celles-ci restent faibles et le H₂S n'est plus détecté dans les effluents gazeux à partir du mois 32. Après 33 mois de stockage, près de 1750 mg H₂S.t_{MS}⁻¹ ont été émis.

La concentration de N₂O dans le biogaz est comprise entre 0,8 et 3,2 ppm tout au long du suivi à l'exception du dernier point de mesure pour lequel la concentration augmente à 6,3 ppm. Ces concentrations donnent lieu à un flux émissif relativement constant jusqu'au 30^{em} mois de stockage où il apparaît une rupture de pente importante qui

correspond à l'accélération de la production de biogaz. Après 33 mois de stockage, 249 mg. t_{MS}^{-1} de N₂O ont été émis par le casier Bioréacteur.

III.2.5.2.b : Emissions de COV

L'évolution de la production des COV regroupés par familles chimiques est donnée dans le Graphique 18. Le résumé des flux émissifs des différentes familles ainsi que des composés majoritaires est présenté dans le Tableau 39. L'évolution des concentrations par famille chimique est présentée dans l'Annexe 2 (cf. Tableau 71). Les familles chimiques prédominantes sont les alcanes, les aromatiques et les terpènes. Parmi elles, des composés comme le décane, le nonane, les BTEX, les pinènes et le limonène se démarquent par un flux émissif supérieur à 1 g.t_{MS}⁻¹ (cf. Tableau 39). Les hydrocarbures linéaires, aromatiques et cycliques représentent 53 % des COV émis durant le suivi. Les terpènes, dont le flux émissif évoluait de manière similaire à celui des aromatiques, ont marqué une production prononcée au cours du mois 30. Le d-limonène, les pinènes (α et β) et le 3-carène représentent plus de 82 % des terpènes produits par le casier. La production de cétones est très influencée par la 2-butanone puisqu'elle correspond à elle seule à 81 % des émissions de cétones.



Graphique 18 : Evolution de la production cumulée de COV du casier Bioréacteur

Peu de composés soufrés ont été identifiés dans le biogaz du Bioréacteur, et les flux émissifs associés sont inférieurs à 0,1 g.t_{MS}⁻¹. Pour les soufrés, il est toutefois difficile de conclure étant donné leur faible stabilité et les deux techniques utilisées, non optimales pour l'analyse des soufrés (Environment Agency, 2001). La même tendance est observée pour les acides, alcènes, aldéhydes et furanes. Les émissions de composés chlorés sont particulièrement marquées par le dichlorométhane dont le flux émissif atteint 2396 mg.t_{MS}⁻¹ soit plus de 90 % des émissions totales de chlorés.

Familles Chimiques		Composés majoritaires						
en g.t _{MS} ⁻¹		en mg.t _{MS} ⁻¹						
Alcanes	17,7							
Cycloalcanes	4,5	Décane	5 344	Naphthalènes (8H & 10H)	442			
Alcènes	0,1	2-Butanol	277	Styrène	334			
Alcools	0,4	Acétone	863	Cymènes (o,m,p)	4 956			
Aldéhydes	0,1	2-Butanone	6 962	Alpha-pinène	8 212			
Cétones	8,4	мівк	79	Béta-pinène	1 414			
Aromatiques	17,2	Benzène	469	3-carène	4 522			
Terpènes	22,7	Toluène	1 737	D-limonène	5 869			
Soufrés	< 0,1	Ethylbenzène	1 287	Trichloromonofluorométhane	1			
Chlorés	2,6	Xylènes (o,m,p)	1 822	Dichlorométhane	2 396			
Furanes	0,1	a,b,c-triméthyl-benzène	1 474	a,b-dichlorobenzène	166			
Acides	< 0,1	a-éthyl-toluène	1 186	Formaldéhyde	26			
Esters	0,6	a,b,c,d-tétraméthyl-benzène	1 739					
Total	74,5							

Le suivi du casier Bioréacteur durant 33 mois a permis de calculer un flux émissif total de COV de 74,5 g.t_{MS}⁻¹, ce qui équivaut à une émission de carbone organique non méthanique de 61,2 g C.t_{MS}⁻¹.

Tableau 39 : Production cumulée de COV du casier Bioréacteur

III.2.5.2.c : Emissions d'odeur

Les résultats des mesures olfactométriques réalisées sur le biogaz issu du casier Bioréacteur sont présentés dans le Tableau 40. L'intensité olfactive des déchets frais est légèrement supérieure pour le casier Bioréacteur que pour les déchets enfouis dans le casier Témoin (16675 contre 10725 UO.Nm⁻³). Il est possible d'imputer cette différence à la préparation mécanique du déchet enfoui dans le Bioréacteur qui a permis l'ouverture des sacs poubelles et une certaine réduction granulométrique conduisant à l'augmentation de la surface d'échange avec la phase gazeuse et favorisé l'émission de composés volatils odorants.

L'étude de l'évolution de l'intensité olfactive au cours du temps ne permet pas de corréler celle-ci à la température du massif ou au potentiel de stripping des composés odorants induits par le captage plus ou moins important du biogaz. Il n'y pas non plus de corrélation avec la concentration en H₂S mesurée dans le biogaz. L'intensité olfactive du biogaz issu du massif de déchet a fait l'objet d'une étude (Lornage et al., 2005) qui a montré qu'elle n'est pas la résultante d'un composé odorant en particulier mais plutôt de la contribution de différents composés odorants dont l'influence sur la perception de l'odeur et l'intensité olfactive était mal connue, surtout lorsque le mélange est complexe.

Le flux d'odeur calculé à partir des mesures olfactométriques atteint 1,69 x $10^6 \text{ UO.t}_{MS}^{-1}$, soit 1,22 x $10^6 \text{ UO.t}_{DE}^{-1}$.

Durée	Intensité			
d'enfouissement	olfactive			
mois	UO.Nm ⁻³			
0,2	16675			
0,7	41535			
1,4	155790			
1,8	52670			
3,2	34870			
7,1	2105			
8,5	1805			
10,6	13275			
12,6	51630			
17,5	6060			
20,7	28160			
25,7	28260			
29,7	20140			
33,2	13650			
Flux d'odeur				
1,69 x 10 ⁶ UO.t _{MS} ⁻¹				

Tableau 40 : Evolution de l'intensité olfactive du biogaz issu du casier Bioréacteur

III.2.6 : Estimation de la perte de masse et évolution de l'humidité du massif

L'évolution de la perte de masse du déchet dans le casier Bioréacteur n'a pu être évaluée qu'en négligeant la perte de masse par voie liquide. Celle-ci n'a été considérée que pour le calcul final de la perte de masse en utilisant le bilan des flux de pollution à la fin de la 4^{ème} phase de recirculation (cf. III.2.5.1).

La perte de masse sèche (PMS) s'élève à 739 kg après 33,1 mois de stockage, soit 8,8 % de la masse sèche initiale. Celle-ci est largement dominée par la perte de masse par voie gazeuse qui représente près de 91 % de la PMS (676 kg), pour une PMS par voie liquide de 63 kg. La minéralisation de la matière organique en CO_2 et CH_4 représente respectivement environ 66 % et 27 % de la PMS, la contribution à la PMS des COV, du H_2S et du N_2O est négligeable (environ 1 ‰). Les lixiviats évacués représentent, à l'image de la pollution relarguée, 93 % de la perte de masse par voie liquide.

L'estimation de l'humidité du massif est de 36,6 % en prenant en compte la PMS et de 34,5 % en considérant la masse sèche enfouie. L'humidité du massif de déchet a varié entre 28,1 % et 37,9 % à la faveur des périodes de recirculation et de drainage (cf. Graphique 19). L'évolution de l'humidité du massif montre la disparité qu'il existe dans l'efficacité des différentes périodes de recirculation. La période de recirculation n°1 permet un gain en humidité important grâce à l'apport rapide d'une grande quantité d'eau. A certains moments de la période de recirculation (entre les mois 9,6 et 10,6 par exemple), la production de lixiviat est supérieure à la recirculation et l'humidité chute. Le mois suivant, le phénomène inverse se produit sans raison apparente. En globalité, toute la recirculation entre le mois 8 et la fin de la première phase (mois 17,5) n'a qu'un effet limité sur l'humidité du massif. La seconde période de recirculation, plus brève, entraîne une progression significative de l'humidité qui passe de 32,7 à 36,1 %. La phase n°2 a

permis l'augmentation de l'humidité de 1,3 point suite à une phase de drainage peu productrice de lixiviat. L'hypothèse de l'obstruction de la sortie lixiviat ou de la rétention anormale dans le massif (par nappe perchée par exemple) est confirmée par la phase suivante pour laquelle le bilan en terme d'évolution de l'humidité est négatif (- 0,7 point sur la phase 3). La phase 4 présente un gain de 0,9 point.

Ces observations montrent que le phénomène reste très chaotique et que la prédiction du comportement du massif vis-à-vis de la recirculation de lixiviat semble difficile. Il est possible tout de même de distinguer une « humidité d'équilibre » comprise entre 33,5 et 34 %, atteinte à la fin des deux dernières périodes de drainage. Cette humidité pourrait constituer la capacité au champ du déchet si l'humidification du massif est considérée comme homogène. L'hypothèse n'est cependant pas vérifiée.



Graphique 19 : Evolution de l'humidité du déchet dans le Bioréacteur

III.2.7 : Tassement et évolution de la densité

Le Graphique 20 présente l'évolution du tassement relatif du massif de déchet mesuré à l'aide des tassomètres ainsi que l'évolution des densités effectives humide et sèche estimées à partir du tassement du massif, de la perte de masse sèche et de l'évolution de l'humidité du déchet.

Le tassement relatif mesuré sur le casier Bioréacteur atteint 30 % après 34 mois de stockage. Le tassement primaire, lié à la déformation et la compression du déchet sous son propre poids semble se manifester lors des 3 premiers mois de stockage. Il semble que la reprise du phénomène de tassement soit consécutive à la remontée en température du massif qui elle-même a permis l'accélération du processus biologique. Le tassement présente une cinétique supérieure à 4 cm.mois⁻¹depuis le 27^{ème} mois.

Les densités sèche et humide qui étaient initialement de 0,43 et 0,59 t.m⁻³ atteignent, après 34 mois de stockage, respectivement 0,56 et 0,88 t.m⁻³, soit un gain de 32 et 49 %. Les baisses observées pour la densité humide aux mois 19 et 23 sont liées aux périodes de drainage consécutives aux phases de recirculation courtes et intenses.

Le comportement géomécanique est discuté plus en détail dans la partie 4 - 1.3.



Graphique 20 : Evolution des densités effectives et du tassement du casier Bioréacteur

III.2.8 : Bilans carbone et azote

Les bilans carbone et azote réalisés à partir des données issues du suivi des émissions liquides et gazeuses du Bioréacteur sont présentés dans le Tableau 41. De l'étude de ces bilans, il apparaît que respectivement 16 et 7 % du carbone organique et de l'azote total initialement contenu dans le déchet ont été perdus au cours des 34 premiers mois de stockage.

Carbone entrant		Carbone restant (33,1 mois)					
сот	223 kg C.t _{MS} ⁻¹	84%					
COT	1 880 kg C	1581					
CIT		ion mesuré					
			Azote entrant		N restant (33,1 mois)		
C évacué par voie gazeuse		% COT _{initial}	% COT _{perdu}	N	10,8 kg N.t _{MS} ⁻¹	9	3%
C-CO ₂	16 kg C.t _{MS} ⁻¹	7%	44%	N _{total}	91,0 kg N	85,0	
	131 kg C	,,,,					
	19 40 6 1			N évacué par voie gazeus		% N _{initial}	% N _{perdu}
C-CH₄	To kg C.t _{MS}	8%	50%		158 mg N.t ⁻¹		
0 0.1.4	150 kg C		2.370	N-N ₂ O	1335 mg N	15 ppm	220 ppm
C-COV	61 g C.t _{MS} ⁻¹	0.3%	2‰	N-NH ₃	- g N.t _{us} ⁻¹	0%	0%
0.001	516 g C	0,5/00			- g N		
			Azote évacué par voie liquide (au 21/03/06)		% N _{initial}	% N _{perdu}	
(au 21/03/06)							
СІТ	432 g C.t _{MS} ⁻¹	-	-	N _{total}	719 g N.t _{MS} ⁻¹	7%	100%
	3645 g C				6061 g N		
сот	2117 g C.t _{ms} ⁻¹	% COT _{initial}	% COT _{perdu}	NH_4^+	619 g N.t _{MS} ⁻¹	- 6%	86%
	17847 g C	1%	6%		5218 g N		

Tableau 41 : Bilan carbone et azote du casier Bioréacteur

Sur les 35,5 kg COT.t_{MS}⁻¹ perdus, 93 % l'ont été par voie gazeuse, respectivement sous forme de CO₂ (44 %) et de CH₄ (50 %). La perte de carbone organique sous forme de COV est négligeable (0,3 ‰ du carbone organique initial). Le carbone organique perdu par voie

liquide correspond à seulement 1 % du carbone organique initial mais néanmoins à près de 6 % des pertes de carbone organique. Ces pertes sont largement dépendantes des flux de lixiviat et de la stratégie de recirculation. Le flux de CIT de 432 g $C.t_{MS}^{-1}$ représente 17 % du flux de carbone total par voie liquide. L'absence de mesure du CIT dans le déchet entrant empêche de rationaliser ce chiffre au stock de CIT initial du déchet.

Les pertes d'azote dans le solide sont à mettre, dans leur quasi intégralité, à l'actif des lixiviats. La perte d'azote par voie gazeuse sous forme de N_2O ne représente en effet que 220 ppm de l'azote perdu. Les pertes par voie liquide sous forme d'ammoniums s'élèvent à 619 g $N.t_{MS}^{-1}$, soit 86 % de l'azote total perdu.

III.3 : Casiers PTB1 et PTB2 : stockage des déchets prétraités biologiquement

L'enfouissement des déchets ayant subi un prétraitement sommaire et poussé présente de nombreux points communs. Ils sont présentés en parallèle, en pointant les similitudes et différences qui caractérisent les deux casiers. Seule la partie stockage sera abordée dans ce chapitre, le bilan prétraitement + stockage des deux modalités qui seront traitées comme deux filières de PTB avant enfouissement sera présenté dans le bilan par filière au chapitre IV.

III.3.1 : Généralités

Le déchet enfoui dans les casiers PTB1 et PTB2 a subit un prétraitement biologique « sommaire » ou « poussé » respectivement de 12 et 25 semaines. Le déroulement du prétraitement fait l'objet du chapitre II de la présente partie.

11,30 tonnes de déchet prétraité sommairement ont été enfouies dans le casier PTB1. L'humidité des déchets était de 40,2 %. Cette humidité peut être expliquée par l'arrosage du déchet durant le prétraitement biologique seulement 2 semaines avant son enfouissement en casier. La masse sèche enfouie s'élève donc à 6,76 tonnes. La densité solide de placement est de 0,58 t.m⁻³ et la densité sèche de 0,35 t_{MS}.m⁻³.

La masse de déchet enfouie dans le casier PTB2 s'élève à 10,66 tonnes à une humidité de 37,1 %, soit une masse sèche enfouie de 6,71 tonnes. La densité solide de placement atteint 0,54 t.m⁻³, équivalent à une densité sèche de 0,34 t_{MS}.m⁻³ similaire à la densité sèche obtenue pour le casier PTB1.

III.3.2 : Evolution de la température des massifs de déchet et simulation des précipitations



Graphique 21 : Evolution de la température du massif, de la composition du biogaz et de la période de simulation des précipitations pour le casier PTB1

La mesure de la température a débuté au 6^{eme} mois d'enfouissement pour le casier PTB1 et au 4^{eme} mois pour le casier PTB2. Les deux casiers présentent des profils de température similaires aux casiers Témoin et Bioréacteur (cf. Graphique 21 et Graphique 22).La température du casier PTB1 atteint 35° C au 15^{eme} mois de stockage et progresse régulièrement de 1°C par mois pour atteindre 42° C (21,3 mois). Après 24 mois de stockage et des signes de refroidissement du massif, une nouvelle couche de compost a été mise en place pour renforcer l'isolation du casier. La température remonte pour osciller entre 42 et 43°C jusqu'à la fin de l'acquisition de donnée (30,9 mois). Les premières températures relevées sur le casier PTB2 (cf. Graphique 22) sont supérieures à 20°C. Le déchet a en effet été enfoui en février 2004 et n'a donc pas subi la rigueur des mois les plus froids. La tendance est à la baisse depuis le mois 24, le massif a perdu près de 8°C en 4 mois pour atteindre 40,6°C au mois 28.



Graphique 22 : Evolution de la température du massif, de la composition du biogaz et de la période de simulation des précipitations pour le casier PTB2

La simulation de pluie effectuée sur les deux pilotes est identique avec un décalage temporel de trois mois. Elle débute au 6^{eme} et au 3^{eme} mois de stockage respectivement pour le casier PTB1 et PTB2. La simulation de pluie a été effectuée à un taux de 55 mm.mois⁻¹ durant les trois premiers mois, soit ramenée à la tonne de masse sèche enfouie 51 (PTB1) et 52 (PTB2) L.t_{MS}⁻¹.mois⁻¹. Les 4 mois suivants ont fait l'objet d'une simulation de 11,5 mm.mois⁻¹ (10,6 et 10,8 L.t_{MS}⁻¹.mois⁻¹). A partir respectivement du 13^{eme} et du 10^{eme} mois, le taux de simulation de pluie redevient similaire à celui pratiqué initialement (environ 55 mm.mois⁻¹) durant 2 mois. La simulation de pluie est ensuite régulée à environ 4 mm.mois⁻¹ pour que les trois casiers (Témoin, PTB1 et PTB2) atteignent un taux de simulation de pluie similaire. Au total, 393 et 405 L.t_{MS}⁻¹ ont été introduits dans les casiers PTB1 et PTB2, soit une infiltration moyenne rapportée à la surface du casier d'environ 15 mm.mois⁻¹. Ramené à la tonne de déchet humide enfoui dans les casiers, le taux de simulation de pluie est de 235 et 255 L.t_{DE}⁻¹ pour le casier PTB1 et le PTB2.

III.3.3 : Composition et production de biogaz

L'évolution de la composition du biogaz issu des deux casiers (cf. Graphique 21 et Graphique 22) est très similaire. Les deux casiers présentent une augmentation très rapide des teneurs en CO_2 et CH_4 dès le début du captage du biogaz qui correspond aussi au lancement de la simulation de pluie. Le ratio CH_4/CO_2 dépasse l'unité, respectivement au mois 7,2 et au mois 4,1, indiquant des conditions initiales du milieu favorables au développement des méthanogènes. La constance de la qualité du biogaz du casier PTB1 jusqu'au mois 24 montre une bonne adéquation entre la dépression appliquée au massif et la production de biogaz. Le casier PTB2 a subi une dépression trop importante ne permettant pas de conserver la qualité du biogaz lors de la baisse des températures (mois 7 à 9) mais sans conséquence sur le ratio CH_4/CO_2 .



Graphique 23 : Production de biogaz du casier PTB1

La production de biogaz pour les deux casiers est modérée durant cette période jusqu'à la remontée de la température du déchet (inférieure à 1 et 0,6 $\text{Nm}^3.t_{\text{MS}}^{-1}.\text{mois}^{-1}$). Il est intéressant de noter l'effet de l'isolation thermique du massif pour les deux casiers (mois 12 et 9) qui réduit le ratio CH₄/CO₂ (respectivement de 1,56 à 1,07 et de 1,23 à 1,06) en l'espace d'un mois et qui a pour conséquence l'augmentation de la production de biogaz pour les deux casiers.

Les casiers présentent à partir des mois 13 et 10 une cinétique de production de 1,5 Nm³ CO₂.t_{MS}⁻¹.mois⁻¹ et 1,9 Nm³ CH₄.t_{MS}⁻¹.mois⁻¹ pour le casier PTB1 et de 0,8 Nm³ CO₂.t_{MS}⁻¹.mois⁻¹ et 1,0 Nm³ CH₄.t_{MS}⁻¹.mois⁻¹ pour le PTB2 (cf. Graphique 23 et Graphique 24). Les deux casiers présentent une seconde cinétique de production à partir du 20^{ème} mois pour le casier PTB1 et du 18^{ème} pour le casier PTB2. Les cinétiques de production sont alors de 0,23 Nm³ CO₂.t_{MS}⁻¹.mois⁻¹ et 0,32 Nm³ CH₄.t_{MS}⁻¹.mois⁻¹ pour le PTB1 et de 0,3 Nm³.t_{MS}⁻¹.mois⁻¹ pour le CO₂ et le CH₄ du casier PTB2. La rupture de pente est plus marquée pour le casier PTB1.
Le casier PTB2 montre une diminution de la production de biogaz à partir du mois 24 alors que le casier PTB1 conserve sa cinétique. Néanmoins, le réglage de la dépression sur le casier PTB1 ne permet pas d'adapter le captage à la production, ce qui entraîne une baisse de la qualité du biogaz. De plus, une intervention sur le haut des deux casiers (24^{ème} et 21^{ème} mois de stockage), nécessitant l'ouverture de la plaque supérieure, a eu des effets significatifs sur la qualité du biogaz (cf. Graphique 21 et Graphique 22), sans doute à cause d'entrées d'air dans la couche superficielle du massif.



Graphique 24 : Production de biogaz du casier PTB2

Les données du casier PTB1 après 31 mois de stockage indiquent une production totale de biogaz de 24,6 Nm³.t_{MS}⁻¹, soit 42 % du potentiel total de production de biogaz. La production de méthane atteint 13,5 Nm³ CH₄.t_{MS}⁻¹, soit 43 % du BMP du déchet prétraité sommairement. En considérant que la seconde cinétique de production se maintienne, 5 années supplémentaires seraient environ nécessaires pour que le casier PTB1 produise l'intégralité du potentiel de production de biogaz, soit au total, 7,5 années de stockage pour abattre le potentiel de biogaz résiduel du déchet prétraité sommairement.

La très faible production du casier PTB2 (inférieure à 0,01 Nm³.t_{MS}⁻¹.mois⁻¹ depuis le 24^{ème} mois) et la tendance à la baisse de la qualité du biogaz semblent indiquer une stabilisation du déchet PTB2. L'analyse des productions cumulées de CO₂ et CH₄ indique que le casier PTB2 à déjà produit 8,6 Nm³ CO₂.t_{MS}⁻¹ et 10,1 Nm³ CH₄.t_{MS}⁻¹ soit un volume total de 18,7 Nm³.t_{MS}⁻¹ de biogaz à une moyenne de 54 % de méthane. Cette production équivaut à 84 % du potentiel total de production de biogaz. La production de méthane s'élève à 109 % du BMP estimé pour le déchet prétraité. Ces observations confirment la stabilisation du déchet enfoui dans le casier PTB2 après seulement 27 mois d'enfouissement. Il est intéressant de noter que le biogaz produit par le casier est en moyenne plus riche en méthane que lors du test BMP réalisé sur le déchet prétraité (54 % contre 42 %), la production de méthane dépasse d'ailleurs le BMP théorique. Le défaut de CO₂ dans le bilan

biogaz peut provenir de l'absence de captage du biogaz durant les trois premiers mois d'enfouissement à cause de problèmes d'étanchéité aux gaz des pilotes.

III.3.4 : Composition et production de lixiviat

La production et la composition des lixiviats issus des casiers PTB1 et PTB2 sont présentées respectivement dans le Tableau 42 et le Tableau 43.

Durée enfouissement	Volume collecté	pН	Cond.	AGV*	сот	СІТ	DCO	N _{total}	NO3.	${\rm NH_4}^+$	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Fe	P _{total}	SO4 ²⁻	CI.
Mois	L	-	µS.cm⁻¹	mg.L ⁻¹	mgC	.L ⁻¹	mg O ₂ .L ⁻¹	т	ng N .L	-1		mg.L ⁻¹		mg P.L ⁻¹	mg	.L ⁻¹
6,7	19	6,60	17 030	10 650	6 037	867	18 530	869	26	807	1 022	226	125	13	707	2 098
7,4	87	6,56	23 300	9 600	9 808	1 242	28 170	1 117	34	926	1 373	370	180	20	902	3 182
8,8	281	7,10	22 100	6 400	7 017	1 236	20 153	1 126	28	934	1 173	339	117	11	428	2 967
9,5	111	7,22	21 000	4 350	4 053	1 074	11 641	1 014	29	738	388	341	52	10	402	3 070
10,4	41	7,26	20 800	3 300	2 333	990	6 296	1 023	31	787	476	260	46	12	384	2 845
11,3	25	7,33	20 500	-	2 201	-	6 411	1 119	33	696	468	184	56	12	312	2 527
12,3	77	7,34	20 000	-	2 172	-	6 328	1 193	31	567	346	239	47	12	384	2 087
13,2	464	7,41	19 340	-	2 363	-	6 885	1 296	38	738	300	0	45	7	651	3 152
13,9	282	7,47	17 390	-	1 863	855	5 427	1 027	35	682	265	174	37	14	468	1 545
14,8	610	7,54	16 890	2 400	2 003	824	6 340	1 182	38	785	229	163	39	13	601	1 349
15,5	232	7,39	16 840	-	2 184	844	5 576	1 115	39	796	253	151	39	12	640	1 934
16,2	32	7,45	16 410	-	2 368	828	6 046	1 071	37	877	242	117	38	12	533	1 965
17,1	135	7,49	14 730	-	1 610	758	4 110	1 056	34	751	200	110	34	6	444	808
18,0	33	7,61	15 060	-	1 900	774	4 853	1 151	34	731	187	95	34	9	477	484
18,9	35	7,56	14 870	-	1 657	760	4 231	1 081	46	855	180	95	34	11	460	663
20,7	49	7,55	15 140	-	2 000	-	4 280	1 142	39	1 019	138	138	35	11	503	497
21,6	21	8,05	15 130	-	1 909	-	4 831	1 260	43	1 052	5	82	36	13	579	-
23,0	35	7,75	16 050	-	1 893	852	4 790	1 344	45	1 114	177	90	38	13	674	1 539
24,0	28	7,71	16 240	-	2 094	810	5 299	1 398	54	1 034	151	117	36	13	729	1 662
24,9	1	7,68	16 900	-	2 535	854	6 417	1 411	61	923	155	114	49	12	1 003	1 674
26,0	21	7,42	17 150	-	2 406	314	6 088	1 659	12	1 187	146	123	41	16	904	1 641
27,0	30	7,46	17 500	-	2 570	936	6 504	1 634	68	1 292	145	150	50	18	1 042	1 756
28,1	51	7,82	18 250	-	2 200	974	6 814	1 682	80	1 417	128	123	53	18	1 077	1 879
29,3	44	7,92	18 690	-	2 392	1 010	7 408	1 990	86	1 094	89	125	59	20	1 292	1 830
29,9	28	7,95	18 910	-	2 431	1 026	7 529	1 799	88	1 427	107	115	63	21	1 370	1 944
30,9	22	7,78	18 990	-	2 490	1 028	7 713	1 860	94	1 521	108	114	64	21	1 381	2 026

* équivalent acide acétique - Non mesuré

Tableau 42 : Composition et quantité de lixiviat produit par le casier PTB1

Les premiers lixiviats produits par le casier PTB1 (mois 6,7 et 7,4) sont légèrement acides (pH = 6,60) et présentent une concentration significative en AGV (environ 10 g.L⁻¹). Ceci indique une relance brève de l'acidogénèse lors de l'enfouissement des déchets confirmée par la composition du biogaz qui présente un pic de CO₂ durant cette période. Cette situation ne dure pas puisque la composition des lixiviats se stabilise dès le 11^{ème} mois de stockage à des niveaux correspondant à un déchet en méthanogénèse.

Le lixiviat du casier PTB2 présente des caractéristiques sensiblement identiques avec un pic initial de pollution carbonée moins marqué que pour le casier PTB1 (AGV de l'ordre de 4 g.L^{-1} et une DCO d'environ 10 g O₂.L⁻¹).

Au cours du temps, les lixiviats des deux casiers ont une composition qui évolue peu. Les formes azotées augmentent pour les deux casiers puisque l'azote total passe de 1100 à 1900 mg $N.L^{-1}$ et de 700 à environ 1500 mg $N.L^{-1}$ respectivement pour le PTB1 et PTB2, indiquant une augmentation avec le temps de la mobilisation de l'azote. Dans les deux cas,

Durée enfouissement	Volume collecté	pН	Cond.	AGV*	сот	СІТ	DCO	N _{total}	NO3 ⁻	${\rm NH_4}^{\star}$	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Fe	P _{total}	\$04 ²⁻	Cl ⁻
Mois	L	-	µS.cm⁻¹	mg.L ⁻¹	mgC	.L ⁻¹	mg $O_2 . L^{-1}$	п	ng N .L	-1		mg.L ⁻¹		mg P.L ⁻¹	mg	.L ⁻¹
3,7	77	7,08	16 520	4 050	3 137	705	9 166	664	35	250	569	232	49	10	1 358	2 691
4,4	87	7,07	18 420	4 335	4 631	810	10 149	687	34	131	587	217	64	10	1 833	3 233
5,8	191	7,24	16 800	2 890	2 403	606	5 266	708	31	204	361	181	60	8	357	3 049
6,5	228	7,17	16 640	1 050	2 208	744	4 838	691	29	387	484	70	53	7	306	2 742
7,4	41	7,14	16 650	1 200	2 672	717	4 684	647	27	362	334	259	46	7	293	2 456
8,3	25	7,23	16 520	-	2 059	-	4 437	714	29	399	369	163	50	7	263	2 343
9,2	53	7,22	15 300	-	1 585	-	3 417	630	19	306	373	172	46	7	232	-
10,2	74	7,41	19 340	-	1 835	-	3 954	783	26	457	322	-	43	15	267	2 809
10,8	15	7,31	17 410	-	2 001	735	4 313	698	33	422	363	189	49	8	350	1 980
11,8	10	7,72	16 640	1 600	1 584	730	4 432	880	30	421	336	79	39	7	316	-
12,5	4	7,36	16 580	-	2 572	752	4 097	708	31	462	291	167	41	6	341	2 353
13,1	3	7,36	16 600	-	3 109	724	4 952	804	31	525	274	155	41	7	318	2 548
14,0	56	7,40	15 360	-	2 403	688	3 828	813	33	530	238	119	40	9	409	6 364
15,0	17	7,58	16 470	-	3 297	718	5 252	970	41	506	214	116	42	5	458	1 470
15,9	6	7,58	16 720	-	2 890	730	4 603	979	47	615	228	109	43	8	509	1 418
17,7	17	7,54	16 450	-	2 699	-	4 299	876	40	722	140	136	38	8	472	1 271
18,6	6	8,01	15 720	-	1 900	-	2 115	1 514	11	1 219	-	122	8	16	137	-
20,0	12	7,66	16 630	-	2 650	770	4 353	1 006	42	773	187	122	37	8	497	2 190
20,9	7	7,60	17 090	-	2 884	-	4 737	1 090	45	706	214	115	38	8	562	2 378
21,9	5	7,56	17 540	-	3 001	748	4 929	1 054	47	661	168	114	40	6	663	2 390
23,0	5	7,36	17 680	-	2 963	305	4 867	1 224	46	834	166	127	36	8	617	2 374
23,9	11	7,46	17 190	-	2 844	760	4 672	1 203	49	885	156	112	39	9	590	2 288
25,1	10	7,77	18 160	-	1 700	800	5 323	2 520	61	1 006	129	103	46	10	846	2 509
26,2	7	7,81	18 900	-	1 921	844	6 014	1 703	70	813	97	120	52	12	949	2 624
26,9	6	7,84	19 050	-	1 962	848	6 144	1 388	75	1 052	125	94	55	12	1 025	2 660
27,9	7	7,68	18 970	-	2 001	848	6 265	1 436	76	1 114	123	100	60	13	1 158	2 742

les ammoniums représentent une part significative de l'azote relargué (en moyenne 74 et 59 % de l'azote total pour le PTB1 et PTB2).

* équivalent acide acétique - Non mesuré

Tableau 43 : Composition et quantité de lixiviat produit par le casier PTB2

Concernant la quantité de lixiviats produits, les deux casiers ont un comportement tout à fait différent. Le casier PTB1 présente une production conséquente de lixiviat, relativement bien corrélée avec la simulation de pluie avec un faible décalage temporel (de l'ordre d'un mois environ qui équivaut à la fréquence de collecte des lixiviats). Au $17^{\text{ème}}$ mois, la quantité cumulée de lixiviats produits devient supérieure à la quantité d'eau introduite dans le casier pour la simulation de pluie. Après 30,9 mois de stockage et 393 L.t_{MS}⁻¹ d'eau injectée, la production cumulée de lixiviat atteint 413 L.t_{MS}⁻¹.

Le casier PTB2, malgré une simulation de pluie légèrement plus importante (405 $L.t_{MS}^{-1}$) présente une production cumulée de lixiviats de 146 $L.t_{MS}^{-1}$. La production de lixiviat est pourtant significative entre le 3^{ème} et le 8^{ème} mois (environ 94 $L.t_{MS}^{-1}$ en 4 mois) mais chute brusquement à un taux d'environ 10 $L.t_{MS}^{-1}$.mois⁻¹ jusqu'au 11^{ème} mois avant de baisser de nouveau pour se stabiliser à 1 $L.t_{MS}^{-1}$.

Les caractéristiques des deux déchets n'étant pas fondamentalement différentes, il est possible de penser à une rétention anormale du lixiviat dans le casier par une nappe perchée ou une obstruction du point bas du casier. Cette incertitude a une influence importante sur le bilan hydrique du casier et donc sur les flux de polluants par voie liquide et l'humidité du massif calculée. Elle devra être prise en compte dans la discussion des résultats.

III.3.5 : Flux de pollution

III.3.5.1 : Polluants par voie liquide

DCO	AGV*	СОТ	CIT	N _{total}	NO ₃ ⁻	${\sf NH_4}^+$	P_{total}	Fe	504 ²⁻	Cl.	Ca²⁺	Mg²⁺
$gO_2.t_{MS}^{-1}$	g.t _{MS} ⁻¹	g C.t	-1 MS	g N.t _{MS} ⁻¹					g.t _{MS} ⁻¹			
3493	105	1213	293	494	16	342	5	22	248	843	158	67

* équivalent acide acétique

Comme la production de lixiviat le laissait prévoir, le flux de pollution relarguée par le casier PTB2 est très influencé par sa faible production de lixiviat (cf. Tableau 45). A l'exception des AGV pour lesquels le casier PTB2 présente un flux d'émission supérieur à celui du PTB1 (173 contre 105 g.t_{MS}⁻¹ équivalent acide acétique), les flux de polluants du casier PTB2 sont en moyenne 70 % inférieurs à ceux du casier PTB1. La production de lixiviat du casier PTB2 étant elle-même inférieure de 65 % à celle du casier PTB1, les deux déchets présentent donc un potentiel de lixiviation similaire.

Les flux du casier PTB1 (cf. Tableau 44) montrent que le déchet prétraité a un potentiel de relargage de la pollution carbonée non négligeable. La tendance observée sur la composition des lixiviats dans le paragraphe précédent indique une accentuation du lessivage des formes azotées qui reste pour l'instant modéré (494 g $N.t_{MS}^{-1}$).

DCO	AGV*	СОТ	CIT	N_{total}	NO ₃ ⁻	${\sf NH_4}^+$	P_{total}	Fe	504 ²⁻	Cl	Ca ²⁺	Mg ²⁺
$gO_2.t_{MS}^{-1}$	g.t _{MS} ⁻¹	g C.t	-1 MS		g N.t _{MS} ⁻¹				g.t _M	-1 15		
802	173	370	84	112	5	55	1	7	83	401	57	20
* équivalent a	équivalent acide acétique											

Tableau 45 : Flux	x de polluants	émis nar	voie liauide	pour le	e casier PTB2
	x de polladillo	enns pui	voie liquide	i pour le	

La perte de masse occasionnée par ces flux de polluants par voie liquide atteint 3560 $g.t_{MS}^{-1}$ et 1273 $g.t_{MS}^{-1}$ respectivement pour les casiers PTB1 et PTB2.

III.3.5.2 : Polluants par voie gazeuse

III.3.5.2.a : Emissions de H₂S, N₂O et NH₃

Le NH₃ n'a pas été détecté dans le biogaz des deux casiers durant l'intégralité du suivi. Les flux émissifs peuvent être considérés comme inférieurs à 30 mg. t_{MS} ⁻¹ et 20 mg. t_{MS} ⁻¹ pour le PTB1 et PTB2.

Les concentrations de N₂O mesurées dans le biogaz des deux casiers ont été relativement faibles puisque, pour les deux pilotes, comprises entre 0,5 et 4 ppm. L'évolution de la concentration de N₂O et des flux émissifs cumulés sont présentés en Annexe 4. Les flux émissifs calculés s'élèvent à 77 et 72 mg.t_{MS}⁻¹ respectivement pour le PTB1 et le PTB2.

L'évolution de la teneur du biogaz en H_2S ainsi que les flux émissifs associés sont présentés pour chacun des casiers dans le Graphique 25.

Tableau 44 : Flux de polluants émis par voie liquide pour le casier PTB1



Graphique 25 : Concentration et flux émissifs cumulés de H₂S pour les casiers PTB1 et PTB2

Pour les deux casiers, les concentrations en H₂S les plus élevées ont été mesurées lorsque l'activité biologique était la plus intense (production de biogaz importante). Il existe tout de même une nette différence entre les deux casiers, le casier PTB2 se démarquant par des concentrations et un flux émissif de H₂S nettement moins marqué que pour le casier PTB1. Le H₂S n'a d'ailleurs été détecté qu'une seule fois à très faible concentration (1 ppm) depuis le 15^{ème} mois d'enfouissement pour le PTB2. Les concentrations maximales, comprises entre 4 et 6 ppm pour le PTB2 atteignent 15 ppm pour le casier PTB1. Le flux émissif total s'élève à 354 mg.t_{MS}⁻¹ pour le PTB1 contre seulement 38 mg.t_{MS}⁻¹ pour le PTB2.

III.3.5.2.b : Emissions de COV

L'évolution de la production de COV par familles chimiques des casiers PTB1 et PTB2 est présentée dans le Graphique 26 et le Graphique 27.

Les trois familles majoritaires sont identiques pour les deux casiers : les alcanes, les aromatiques et les composés chlorés. Dans les deux cas, ce sont les alcanes qui, dès le début, sont largement majoritaires, suivis des aromatiques et des chlorés. Il est intéressant de noter que les chlorés ont été produits principalement dans les 15 premiers mois d'enfouissement, d'avantage même que les aromatiques. Parmi ces trois familles, l'octane, le nonane et le décane), le toluène, l'éthylbenzène et les xylènes ainsi que le dichlorométhane les composés majoritaires pour les deux sont casiers (cf. Tableau 46 et Tableau 47).

Pour les casiers PTB1 et PTB2, les hydrocarbures (linéaires, cycliques et aromatiques) représentent respectivement 76 et 81 % des COV émis durant le suivi. Les composés chlorés sont largement dominés par le dichlorométhane qui représente 99 et 97 % des émissions totales de chlorés. Les autres familles chimiques telles les acides, furanes, soufrés et autres esters présentent des émissions négligeable de l'ordre de quelques dizaines de mg. t_{MS}^{-1} .

La production totale de COV atteint 11,4 g.t_{MS}⁻¹ pour le casier PTB1 et 6,3 g.t_{MS}⁻¹ pour le casier PTB2 après respectivement 30 et 27 mois de stockage. Ceci représente des émissions de 8,4 et 4,9 g C.t_{MS}⁻¹.



Graphique 26 : Evolution de la production cumulée de COV du casier PTB1



Graphique 27 : Evolution de la production cumulée de COV du casier PTB2

L'évolution des concentrations de COV dans le biogaz issu des deux casiers est présentée dans les Tableaux 73 et 74.

Familles Ch	imiques	Composés majoritair	es
en mg.t	-1 MS	en mg.t _{MS} -1	
Alcanes	5 740	Octane	371
Cycloalcanes	309	Nonane	452
Alcènes	78	Décane	2683
Alcools	36	Acétone	8
Aldéhydes	47	2-Butanone	32
Cétones	67	Benzène	59
Aromatiques	2 614	Toluène	1292
Terpènes	433	Ethylbenzène	488
Soufrés	27	Xylènes (o, m, p)	417
Chlorés	2 058	a,b,c-triméthyl-benzène	104
Furanes	7	Naphthalènes (8H & 10H)	14
Acides	10	Dichlorométhane	2048
Esters	21	a,b-dichlorobenzène	2
Total	11 448	1,2,3-trichloro-Benzène	6
Total	0	Tétrachloréthylène	2

Tableau 46 : Production cumulée de COV du casier PTB1

Familles Chin	niques	Composés majoritaire	S
en mg.t _M	-1 S	en mg.t _{MS} -1	
Alcanes	2834	Nonane	179
Cycloalcanes	82	Décane	1 659
Alcènes	91	Acétone	10
Alcools	112	2-Butanone	112
Aldéhydes	27	Benzène	32
Cétones	142	Toluène	545
Aromatiques	2201	Ethylbenzène	776
Terpènes	144	Xylènes (o, m, p)	412
Soufrés	2	Styrène	45
Chlorés	635	a,b,c-triméthyl-benzène	151
Furanes	4	Naphthalènes (8H & 10H)	5
Acides	6	Dichlorométhane	618
Esters	18	Dichlorotétrafluoroéthane	9
Total	6208	1,2,3-trichloro-Benzène	5
ΤΟταί	0270	Trichloréthylène	1

Tableau 47 : Production cumulée de COV du casier PTB2

III.3.5.2.c : Emissions d'odeur

Les mesures olfactométriques réalisées sur les casiers PTB1 et PTB2 sont présentées dans le Tableau 48. L'intensité olfactive du gaz issu du déchet PTB1 fraîchement enfoui, qui est de 4825 UO.Nm⁻³, est inférieure à l'intensité olfactive des déchets frais des casiers Témoin et Bioréacteur. La première mesure sur le déchet PTB2 (2690 UO.Nm⁻³) n'a été effectuée que 1,4 mois après son enfouissement mais semble confirmer cette tendance.

Les valeurs mesurées sur le casier PTB1 aux mois 14,8 et 18,0 (23365 et 28335 UO.Nm⁻³) correspondent au pic d'émission du H₂S qui est compris entre 10 et 15 ppm durant cette période (cf. Graphique 25). Cependant le H₂S ne suffit pas à expliquer l'intensité olfactive du biogaz puisque pour le mois 30,5 aucune trace d'H₂S n'a été mesurée malgré une intensité olfactive de 20830 UO.Nm⁻³. Concernant le casier PTB2, l'intensité olfactive présente un pic de 18270 UO.Nm⁻³ au plus fort de la production de biogaz (12^{eme} mois), mais reste globalement inférieure à celle du casier PTB1, en accord avec les flux émissifs de H₂S ou de COV qui sont les vecteurs de l'intensité olfactive du biogaz.

Les flux d'odeur sont respectivement de 5,09 x 10^5 et 2,71 x 10^5 UO.t_{MS}⁻¹ pour les casiers PTB1 et PTB2.

Casier P	TB1	_	
Durée	Intensité	Casie	r PTB2
d'enfouissement	olfactive	Durée	Intensité
mois	UO.Nm ⁻³	d'enfouisseme	nt <mark>olfactive</mark>
0,5	4825	mois	UO.Nm ⁻³
4,4	1695	1,4	2690
5,8	660	4,0	930
7,9	8805	4,8	3450
9,9	17380	6,9	10590
14,8	23365	11,8	18270
18,0	27335	15,0	17520
23,0	9320	20,0	3730
27,0	9833	24,0	4301
30,5	20830	27,4	10725
Flux d'oc	deur	Flux o	l'odeur
5,09 x 10 ⁵	UO.t _{MS} ⁻¹	2,71 x 10 ⁵	UO.t _{MS} ⁻¹

Tableau 48 : Evolution de l'intensité olfactive du biogaz issu des casiers PTB1 et PTB2

III.3.6 : Evolution de la perte de masse et de l'humidité des massifs

La perte de masse calculée à partir des données recueillies durant le suivi atteint, pour le casier PTB1, 244 kg et pour le casier PTB2, 173 kg, soit respectivement 3,6 et 2,6 % de la masse sèche initialement enfouie dans les casiers. Les pertes par voie gazeuse sont largement majoritaires puisqu'elles correspondent à 87 et 94 % de la perte de masse sèche totale. Elles sont réparties entre les émissions de CO_2 (respectivement 60 et 66 % de la PMS) et de CH_4 (respectivement 27 et 28 % de la PMS). L'émission de COV, d'H₂S ou de N₂O joue un rôle tout à fait insignifiant (inférieure à 1 ‰). La voie liquide représente 13 % de la perte de masse sèche totale pour le PTB1. La perte de masse par voie liquide pour le casier PTB2, qui ne représente que 6 % de la perte de masse totale, est encore une fois largement influencée par la faible production de lixiviat du casier. Celle-ci influence considérablement l'évolution de l'humidité théorique du déchet enfoui dans le casier PTB2 qui atteint 46,5 % en prenant en compte la perte de masse ou 45,9 % sans prendre en compte la perte de masse. Le casier PTB1 présente quant à lui une humidité théorique de 40,4 % au terme des 30 mois de stockage ou de 39,5 % si la perte de masse n'est pas prise en compte.

III.3.7 : Tassement et évolution de la densité

Le tassement des déchets PTB1 et PTB2 et l'évolution des densités sèches et humides pour les 2 casiers sont présentés dans le Graphique 28.

Les densités sèches initiales des deux casiers PTB sont très similaires, respectivement égales à 0,35 et 0,34 t.m⁻³. L'écart entre les deux a légèrement tendance à augmenter au cours du temps même si celles-ci ne présentent pas une croissance importante. Elles atteignent 0,42 et 0,39 t.m⁻³ après 31 et 28 mois de stockage, soit une augmentation de 21 et 15 %. La densité humide du déchet PTB2 a rattrapé et même dépassé celle du déchet PTB1. Ceci est à relier à l'accumulation anormale de lixiviat dans le casier PTB2. Les densités sèches et humides pour les deux casiers n'évoluent plus beaucoup depuis leur 18^{ème} mois de stockage.

Les massifs de déchet présentent des tassements relatifs de 20 et 15 %. Il apparaît que le tassement primaire observé sur le casier PTB2 est plus important que pour le casier PTB1. Le casier PTB1 présente en fait un tassement primaire qui semble se dérouler en trois phases et s'étendre sur les 10 premiers mois de stockage.

Le comportement géomécanique des déchets en général est discuté dans la partie 4 - 1.3.



Graphique 28 : Evolution des densités effectives et des tassements pour les casiers PTB1 et PTB2

III.3.8 : Bilans carbone et azote

Les bilans carbone et azote des casiers PTB1 et PTB2 sont présentés dans les tableaux cidessous (Tableau 49 & Tableau 50).

Les bilans sur le carbone organique révèlent que 92 % et 95 % du carbone organique initial ont été perdus respectivement dans les casiers PTB1 et PTB2 principalement sous forme gazeuse par la minéralisation du carbone organique en CO_2 et CH_4 . La volatilisation de carbone sous forme de COV ne représente qu'une partie infime du carbone perdu (< 1 ‰). Le carbone organique évacué sous forme liquide correspond à 8 % et 3 % du COT perdu selon le casier.

Ca	arbone entrant	Carbone resta	nt (30,4 mois)					
сот	182 kg C.t _{MS} ⁻¹	92	2%					
601	1230 kg C	11	33					
CIT	N	on mesuré						
Cáyac		COT	≪ COT	4	zote entrant	N restant	(30,4 mois)	
Cevac		∕₀ COT initial	∕₀ COT _{perdu}	N	11,0 kg N.t _{MS} ⁻¹	90	5%	
C-CO ₂	6 kg C.t _{MS}	6 kg C.t _{MS} ⁻¹ 3% 41%		Ntotal	74,4 kg N	71	1,0	
	40 kg C			Nóvaci	lé par voie gazeuse	% N	% N	
C-CH	7 kg C.t _{MS} ⁻¹	19	50%	in evacu		⁷⁰ Ninitial	⁷⁰ Perdu	
	49 kg C	4/0	30%	$N-N_2O$	49 mg N.t _{MS}	4 ppm	54 ppm	
c-cov	8 g C.t _{MS} ⁻¹	46 ppm	0.6‰		- σΝ t ⁻¹			
0.001	57 g C		0,0/00	N-NH ₃	- g N	0%	0%	
	C évacué par	r voie liquide				0/ 11	0/ 14	
	$202 \times C \times c^{-1}$		% CIT	N evac	ue par voie liquide	% N _{initial}	% N _{perdu}	
CIT	293 g C.t _{MS}	∕₀ C∏ initial	∕₀ C∏ _{perdu}	Ν	493 g N.t _{MS} -1	⊿%	100%	
	1984 g C	-	100%	"total	3332 g N	7/0	100%	
сот	1213 g C.t _{MS} ⁻¹	% COT _{initial}	% COT _{perdu}	NH ⁺	245 g N.t _{ms} ⁻¹	7 %	50%	
201	8203 g C	1%	8%	NH ₄	1653 g N	∠/0	50%	

Tubleau 49 : Dilan carbone et azole au casier PTD	Tableau 49	: Bilan	carbone	et azote	du	casier	PTB1
---	------------	---------	---------	----------	----	--------	------

Ca	arbone entrant	Carbone resta	nt (27,4 mois)				
сот	163 kg C.t _{MS} ⁻¹	94	4%				
01	1094 kg C	10	24				
CIT	n	on mesuré					
				А	zote entrant	N restant	(27,4 mois)
C évac	ué par voie gazeuse	% COT _{initial}	% COT _{perdu}	м	9,3 kg N.t _{Ms} -1	99	9%
C-CO ₂	5 kg C.t _{MS} ⁻¹	3%	3% 44%		62,4 kg N	61	,6
Z	31 kg C			N évaci	lé par voie gazeuse	% N	% N .
с-сн	5 kg C.t _{MS} ⁻¹	3%	57%	TT C Vucc	$\frac{16}{100} \text{ mg N} \text{ t}^{-1}$	⁷⁰ Initial	70 Perdu
	36 kg C	570	JZ /0	$N-N_2O$	306 mg N	5 ppm	406 ppm
C-COV	5 g C.t _{MS} ⁻¹	30 ppm	0.5%		-		
C COV	33 g C	50 ppm	0,5/00	$N-NH_3$	- g N	0%	0%
		voia liquida					
				N évac	ué par voie liquide	% N _{initial}	% N _{perdu}
СІТ	84 g C.t _{MS}	% CIT _{initial}	% CIT _{perdu}	N	112 g N.t _{MS} ⁻¹	1 7%	100%
	564 g C	-	100%	"total	754 g N	1,2/0	100%
сот	370 g C.t _{MS} ⁻¹	% COT _{initial}	% COT _{perdu}	NН +	55 g N.t _{ms} -1	0.6%	10%
201	2483 g C	2‰	3%	1117 ₄	369 g N	0,0%	77/0

Tableau 50 : Bilan carbone et azote du casier PTB2

Les flux de carbone inorganique sont difficilement exploitables puisque la teneur en CIT initiale des deux déchets prétraités n'a pas été mesurée. Il est possible de noter que les deux déchets présentent un ratio (CIT/COT)_{lessivé} tout à fait similaire (respectivement 24 et 23 %).

Les bilans azote montrent une perte de 5 et 1 % de l'azote initialement contenu dans le déchet. La voie principale d'émission est la voie liquide, puisque les émissions de NH₃ sont considérées comme nulles et que les émissions sous forme de N₂O sont inférieures à 1 ‰ de l'azote perdu. 50 % et 42 % de l'azote perdu a été évacué sous forme d'ions ammoniums dans les lixiviats.

Chapitre IV : Bilan des filières : de la réception du déchet à l'enfouissement

Les données recueillies durant le prétraitement biologique et l'enfouissement des déchets prétraités permettent d'établir un bilan global sur les deux filières de PTB. Afin de pouvoir comparer les données des deux filières PTB dans leur globalité à celles des filières Conventionnelle et Bioréacteur, les différentes données ont été normalisées par rapport à la tonne de déchet humide entrant la filière, dont les caractéristiques sont présentées dans le chapitre I de la présente partie. Les résultats exprimés par rapport à la tonne de MS enfouie sont convertis en les multipliant par le taux de matière sèche du déchet enfoui et par la perte de masse sèche du déchet lors du prétraitement biologique pour les filières PTB1 et PTB2.



IV.1: Perte de masse totale et bilan hydrique

Figure 36 : Perte de masse et bilan hydrique pour 1 tonne de déchets entrants les filières Conventionnelle et Bioréacteur

La Figure 36 présente un synoptique de l'évolution d'une tonne de déchet entrant les filières Conventionnelle et Bioréacteur ainsi que les bilans hydriques associés. Il est intéressant de noter que malgré une perte de masse sèche respective de 9,1 et 8,8 %, le tonnage de déchet humide présent dans le casier après 34 mois de stockage est supérieur

au tonnage initial (respectivement de 12,4 et 0,4 %). Le gain en humidité du déchet placé dans le casier Témoin (filière Conventionnelle) est supérieur à celui du Bioréacteur. Néanmoins, la simulation de pluie du casier Témoin a été intensive et tardive et il se peut que le déchet présente une humidité supérieure à sa propre capacité de rétention. Le déchet enfoui étant brut, sans prétraitement mécanique, le massif est plus susceptible de présenter des barrières physiques à l'écoulement sous la forme de nappes perchées par exemple, sans pour autant que l'eau ne participe au mouillage du déchet. Le déchet du casier Témoin atteint au bout de 34 mois de stockage une humidité (41,8 %) jamais atteinte par le déchet enfoui dans le Bioréacteur, dont l'humidité maximale a été atteinte au $23^{ème}$ mois avec 37,9 %.

L'évacuation d'eau par « Biogaz / condensation » indiquée sur le schéma de la filière Bioréacteur correspond à l'humidité contenue dans le biogaz capté mais aussi à la condensation qui se produit entre la paroi du casier et la géomembrane. Cette dernière est responsable pour le casier de 5 des 9 kg d'eau évacuée sous cette forme.



Figure 37 : Perte de masse et bilan hydrique pour 1 tonne de déchets entrants les *filières PTB*

La Figure 37 représente schématiquement l'évolution du déchet tout au long de son traitement ainsi que les flux liquides associés. La perte de masse sèche due au prétraitement biologique a été de 27 et 37 % respectivement pour les déchet PTB1 et PTB2, alors que celle-ci n'était que de 3,6 et 2,6 % durant le stockage des déchets prétraités. Ainsi, la perte de masse sèche cumulée atteint 29,6 et 38,6 % de la matière sèche initiale pour les filières PTB1 et PTB2.

Le bilan hydrique des deux filières de PTB a été effectué en intégrant la production d'eau par la respiration des microorganismes durant le traitement biologique. Celle-ci a

été estimée à partir de l'émission de CO_2 durant le PTB en utilisant la relation stoechiométrique de la minéralisation aérobie du carbone organique selon laquelle une mole d'eau est produite pour une mole de CO_2 émise. La production d'eau durant le PTB atteint ainsi 74 et 106 kg.t_{DE}⁻¹ pour le prétraitement de 12 et 25 semaines.

Pour une tonne de déchet humide entrant dans la filière PTB1, soit 719 kg de déchet sec, il ne reste que 506 kg de masse sèche dans le casier PTB1 après 12 semaines de prétraitement biologique et 30 mois d'enfouissement. L'humidité théorique du déchet PTB1 étant de 40,4 %, la perte de masse humide nette n'est que de 151 kg, soit 15,1 % du tonnage entrant. La quantité totale d'eau introduite dans le déchet s'élève à 712 kg.t_{DE}⁻¹, soit 990 kg.t_{MS}⁻¹, dont 38 % sont ressortis sous forme de lixiviats ou jus à traiter ou à recycler dans le traitement (arrosage lors du traitement biologique par exemple). Les pertes en eau par évaporation / condensation représentent 90 % de l'eau ajoutée au déchet durant le PTB.

Pour la filière PTB2, sur une tonne de déchet entrant à 28,1 %, il ne reste, après 25 semaines de traitement biologique et 27 mois de stockage, que 825 kg de déchet à 46,5 % d'humidité théorique, soit une masse sèche de 441 kg. Un total de 690 kg.t_{DE}⁻¹ d'eau a été introduit dans le déchet soit lors de l'arrosage de l'andain, soit pour la simulation des précipitations et seuls 17 % sont ressortis sous forme de lixiviats à traiter. Cette valeur est susceptible d'augmenter si le massif de déchet relargue l'eau qui est apparemment anormalement retenue dans le massif. En faisant l'hypothèse que le déchet PTB2 atteigne le même taux d'humidité que le PTB1, ceci impliquerait un relargage de 92 L.t_{DE}⁻¹ de lixiviat supplémentaire, ce qui ferait passer le taux de relargage de l'eau introduite à 31 %.

Le phénomène de « bioséchage » (évaporation de l'eau constitutive du déchet) lors du traitement biologique a une influence significative sur les bilans hydriques des deux filières PTB.

IV.2 : Flux de pollution

IV.2.1 : Polluants par voie liquide

La pollution par voie liquide produite par une tonne de déchet entrant est détaillée pour chaque filière dans le Tableau 51. Il est aussi précisé le poids du traitement biologique dans le phénomène d'émission pour les filières PTB1 et PTB2.

Concernant les deux filières PTB1 et PTB2, le traitement biologique représente en moyenne 26 et 39 % des émissions de polluants par voie liquide. L'influence plus importante du PTB pour la filière PTB2 tient à la faible production de lixiviat observée dans le casier PTB2.

La majorité des AGV émis ont été lessivés durant le traitement biologique (respectivement 71 et 63 %), lors de l'égouttage du déchet les 2 premières semaines du traitement biologique. Concernant les autres espèces, les différences se font plus par la quantité des effluents mis en jeu plutôt que par leur qualité qui reste dans les mêmes ordres de grandeur pour le PTB et pour les 2 casiers. Pour chacune des deux filières, la part émise durant le stockage des déchets est plus importante que durant le traitement biologique, à l'exception du NH_4^+ , du P_{total} et du calcium pour le PTB2.

Eil	iàrac	DCO	AGV*	СОТ	CIT	N _{total}	NO ₃ ⁻	${\sf NH_4}^+$	Fe	P_{total}	504 ²⁻	Cl	Ca ²⁺	Mg ²⁺
F II	leies	$g O_2.t_{DE}^{-1}$	g.t _{DE} ⁻¹	g C.	t _{DE} ⁻¹		g N.t _{DE}	1			g.t	-1 DE		
Té	moin	425	53	117	149	265	2	234	3	2	46	225	6	13
Bioré	éacteur	3804	1498	1526	313	517	3	445	3	14	128	392	169	40
DTR1	Total	2049	188	682	174	293	9	207	13	4	150	481	117	42
	% PTB**	11%	71 %	7%	11%	11%	6 %	13%	6 %	31%	13%	8 %	29 %	17%
DTR2	Total	579	212	213	58	85	3	53	4	2	57	221	60	16
FIDZ	% PTB	37%	63 %	21%	34%	40 %	1 9 %	53 %	2 0 %	72%	34%	18%	57%	45%

* Equivalent acide acétique ** Poids du traitement biologique dans le processus d'émission global

Tableau 51 : Flux de pollution par voie liquide pour 1 tonne de déchets entrants les filières

Pour les 4 casiers, le bilan de la pollution lessivée est loin d'être complet puisque la production ne s'arrête pas à la phase active du stockage. Ainsi, la pollution relarguée au temps t n'est pas représentative du comportement du massif de déchet à long terme. Il conviendrait pour avoir une bonne idée des réelles quantités de pollution mise en jeu, de poursuivre le suivi encore plusieurs années puis d'« autopsier » les différents déchets en pratiquant des tests de lixiviations et une incubation anaérobie en laboratoire afin de connaître l'état physico-chimique de la matrice solide. Ce point sera abordé dans la discussion finale en 4^{ème} partie de ce mémoire.

IV.2.2 : Polluants par voie gazeuse

Les flux des différents gaz, ramenés à la tonne de déchet entrant chacune des filières, sont donnés dans le Tableau 52. Le Tableau 52 précise également le poids du traitement biologique dans le processus d'émission.

Les volumes de gaz mis en jeu durant le stockage des déchets prétraités sont très inférieurs à ceux liés au traitement biologique. La quantité de biogaz extrait du casier de stockage dans la filière PTB1 est de 20 Nm³.t_{DE}⁻¹ contre 5183 Nm³.t_{DE}⁻¹ durant le traitement biologique et de 13 Nm³.t_{DE}⁻¹ contre 5480 Nm³.t_{DE}⁻¹ pour la filière PTB2. Cette différence se traduit dans le poids du traitement biologique dans le bilan de pollution relarguée par voie gazeuse. En effet, le traitement biologique représente pour le CO₂, les COV, le NH₃ et le N₂O la principale source d'émission (> 94 %). Même les émissions de méthane durant le PTB, pourtant caractéristiques de l'anaérobiose, sont loin d'être négligeables par rapport au méthane produit dans les casiers de stockage, puisque celles-ci comptent pour 23 et 33 % des émissions totales de méthane sur les filières PTB1 et PTB2. Le poids du traitement biologique devrait toutefois baisser significativement lorsque le déchet enfoui dans le casier PTB1 sera complètement stabilisé. Il devrait descendre à 8 % du flux total de méthane en tenant en compte du BMP théorique, pour un flux total sur la filière PTB1 de 13,3 kg $CH_4.t_{DE}^{-1}$. Cependant, malgré le biogaz qui reste à produire, les émissions de CO_2 , N₂O et de COV resteront très minoritaires par rapport aux quantités émises durant le PTB. Pour la filière PTB2, il est possible de considérer le bilan gazeux comme définitif puisque les flux de biogaz mesurés sur le casier PTB2 montrent une quasi stabilisation du déchet enfoui.

Filières		CH₄	CO ₂	NH ₃	COV	H₂S	N ₂ O
		kg.t _{DE} ⁻¹		kg.t _{DE} -1	g.t _{DE} ⁻¹	mg.t _{DE} ⁻¹	
Témoin		20,1	44,5	5.10 ⁻⁶	64	4698	1578
Bioréacteur		17,0	41,1	-	54	1245	179
DTR1	Total	6,6	193,0	4,2	17362	186	77 x 10 ³
FIDI	% PTB**	23%	94 %	100%	99,97 %	0 %	99,96 %
DTR2	Total	4,9	267,7	2,3	18616	17	139 x 10 ³
FIDZ	% PTB	33%	97 %	100%	99,98 %	0 %	99,97 %

** Poids du traitement biologique dans le processus d'émission global

Tableau 52 : Flux de pollution par voie gazeuse pour 1 tonne de déchets entrants les filières

Les bilans gazeux relatifs aux filières Conventionnelle et Bioréacteur ne sont quant à eux que partiels puisqu'une part importante du potentiel de biogaz n'a pas encore été émise (66 et 70 % pour le Témoin et le Bioréacteur). L'extrapolation du potentiel de biogaz théorique mesuré sur le déchet entrant pourrait permettre de connaître la quantité approximative de CO_2 et de CH_4 qui reste encore à produire, mais il est difficile, à partir de ces mesures, de prévoir les émissions de N₂O, de COV ou même d'H₂S. Ce point sera abordé dans la discussion des résultats (Partie 4).

IV.3: Bilans Carbone et azote

Le Tableau 53 présente les bilans pour chacune des 4 filières. Les bilans carbone et azote des deux filières de prétraitement biologique sont, à l'image des émissions liquides et gazeuses, très influencés par la phase de traitement biologique durant laquelle se produit une grande part des transformations du déchet. En moyenne pour les filières PTB1 et PTB2, 90 et 95% du carbone et quasiment 100 % de l'azote émis sous forme gazeuse l'ont été durant le prétraitement biologique. Il en va tout autrement des émissions de carbone et d'azote par voie liquide, qui proviennent majoritairement des lixiviats produits durant l'enfouissement. De plus, comme il l'a été rappelé dans le chapitre IV.2.1, le lessivage du déchet enfoui est amené à se poursuivre même après la fin de la méthanogénèse, conférant aux lixiviats une place encore plus importante dans le bilan d'émission.

Filières	Témoin	Bioréacteur	PTB1		PTB2			
(en kg C.t _{DE} -1)	Total filière	Total filière	Total filière	% PTB**	Total filière	% PTB**		
Carbone entrant								
СОТ	Г 160,3							
CIT			Non mesuré					
	Carbone évacué par voie gazeuse							
C-CO ₂	12,2	11,2	52,6	94 %	73	97 %		
C-CH₄	15,0	12,8	4,9	22%	3,7	32%		
C-COV	0,05	0,04	13,9	99,97%	14,6	99,99 %		
Total C-Gazeux	27,3	24,0	71,4	90%	91,3	95 %		
Carbone évacué par voie liquide								
СОТ	0,1	0,3	0,3	12%	0,4	10%		
CIT	0,1	1,5	1,2	2%	0,1	20%		
Total C-Liquide	0,3	1,8	1,6	4%	0,5	12%		
Carbone restant								
СОТ	132,9	132,9 136,0 88,6 68,6						
CIT -								
Filières	Témoin	Bioréacteur	PTB1 PTB2					
(en kg N.t _{DE} ⁻¹)	Total filière	Total filière	Total filière	% PTB**	Total filière	% PTB**		
Azote entrant								
N _{total}			7,8					
	Az	<mark>ote évacué par</mark>	voie gazeuse					
N-NH ₃	4.10 ⁻⁶	-	1,9	100%	3,5	100%		
N-N ₂ O	1.10 ⁻³	1.10 ⁻⁴	0,08	99,97%	0,14	99,99 %		
Total N-Gazeux	1.10 ⁻³	1.10 ⁻⁴	2,0	~ 100%	3,6	~ 100%		
	Azote évacué par voie liquide							
N _{total}	0,265	0,517	0,293	11%	0,085	40%		
N-NH4 ⁺	0,234	0,445	0,207	13%	0,053	53%		
Azote restant								
N _{total}	7,5	7,3	5,5		4,1			

** Poids du traitement biologique dans le bilan carbone global des filières PTB

Tableau 53 : Bilans carbone et azote des différentes filières

Chapitre V : Les composés organiques volatils

V.1 : Performances pour la quantification des COV

Les problèmes rencontrés avec l'analyse des tubes Tenax sur les effluents gazeux issus de l'andain de prétraitement biologique n'ont pas permis de comparer les performances de quantification des deux techniques analytiques utilisées sur ce type d'effluents. Ces problèmes, dus vraisemblablement à une saturation du piège froid du thermodésorbeur, ont été discutés dans le chapitre VI de la partie 2. Les mesures prises pour éliminer le risque de saturation, en particulier, la réduction importante du volume de prélèvement, ont donné entière satisfaction, permettant ainsi d'étudier les performances respectives des analyses avec les tubes Tenax et charbon actif sur le biogaz issu des casiers de stockage.

Les performances respectives des deux techniques ont été évaluées en comparant un à un les points de mesure réalisés sur les quatre casiers. Un indice d'écart relatif P a été calculé avec les concentrations obtenues (C_{CA} et C_{Tenax} : respectivement obtenues avec le charbon actif et le Tenax) pour chaque composé suivant la formule :

$$P = \frac{(C_{CA} - C_{Tenax})}{Max(C_{CA}, C_{Tenax})}$$

Cet indice varie entre 1 et -1 suivant si le composé n'a été identifié que par le charbon actif (P=1) ou que par le Tenax (P = -1), ou bien si le charbon a sous estimé la concentration par rapport au Tenax (-1 < P < 0) ou le contraire (0 < P < 1).

Il est possible de comparer les deux techniques suivant leurs performances par famille chimique ou selon les caractéristiques physico-chimiques des composés organiques (point d'ébullition, masse molaire, polarité). La comparaison s'appuie sur un total de 69 points de mesure répartis entre les 4 casiers.

Les indices d'écart relatif pour les 4 casiers suivant les différentes familles chimiques sont donnés dans le Tableau 54.

Indice P	Témoin	Bioréacteur	PTB1	PTB2	Moyenne
Alcanes	-0,026	-0,012	-0,098	0,167	0,008
Cycloalcanes	-0,463	-0,287	-0,301	-0,475	-0,381
Alcènes	-0,333	-0,195	-0,422	-0,826	-0,444
Alcools	0,411	0,745	0,213	0,333	0,426
Aldéhydes	-1	-0,869	-1	-1	-0,967
Cétones	0,167	-0,371	-0,144	0,216	-0,033
Aromatiques	-0,161	-0,145	-0,382	-0,367	-0,264
Terpènes	-0,706	-0,455	-0,654	-0,527	-0,585
Soufrés	-0,998	-1	-1	-1	-1
Chlorés	0,285	0,325	0,384	0,893	0,472
Furanes	-1	-1	-1	-1	-1
Acide	-1	NI	-1	-1	-1
Esters	0,000	0,600	0,143	-0,600	0,036

NI : Non identifié par aucune des deux méthodes

Tableau 54 : Comparaison des performances des tubes Tenax et charbon actif par famille chimique

Pour que ceux-ci soient exploitables, les indices présentés dans le Tableau 54 ont été calculés sans prendre en compte les indices P égaux à 1 ou -1 attribuables soit à la meilleure sensibilité des Tenax soit aux meilleures performances des charbons actifs pour les composés très volatils. Les indices égaux à -1 dans le Tableau 54 indiquent que seuls les Tenax ont permis de détecter ces familles, il s'agit des aldéhydes, furanes, acides et soufrés. Pour celles-ci, étant données les faibles concentrations auxquelles elles ont été rencontrées, il est difficile de distinguer si la moindre performance des charbons actifs est inhérente à l'adsorbant lui-même ou si cela tient seulement au manque de sensibilité de cette méthode. Il est possible que, pour ces composés plutôt polaires, une affinité accrue à l'adsorbant, diminuant le rendement de désorption, s'ajoute à la perte de sensibilité due à la désorption liquide.

* Analyse des alcanes

Les deux techniques présentent un bon indice de performance pour les alcanes (P = 0,008). Ceci montre que globalement, les deux méthodes présentent une réponse comparable pour les alcanes. Le charbon actif permet tout de même l'identification de composés légers tels que l'isobutane ou le butane, non détectés par le Tenax. En règle générale pour les alcanes, le charbon actif répond mieux que le Tenax pour les composés non ramifiés de 4 à 9 carbones, l'inverse est observé pour les composés plus lourds ou ramifiés.

Analyse des esters

Les performances des deux techniques vis-à-vis des esters ne sont pas caractéristiques. Les analyses du casier Témoin apparaissent comme les plus représentatives puisque c'est la source pour laquelle le plus d'espèces ont été identifiées. L'indice de performance (P=0,000) qui indique une très bonne corrélation entre les analyses Tenax et charbon actif, cache néanmoins une grande disparité suivant les composés (P compris entre 0,818 pour le butanoate de méthyl et -0,933 pour le butanoate de butyl). Les indices pour les autres casiers confirment l'hétérogénéité des analyses des esters. La littérature fait état de problèmes analytiques liés aux esters pour les charbons actifs (Harper, 2000) qui pourraient expliquer ces disparités (hydrolyse d'ester et trans-estérification).

✤ Analyse des alcools

Les meilleures performances du charbon actif pour les alcools sont clairement mises en évidence (P > 0,213 quels que soient les casiers). Les alcools identifiés, en plus d'être polaires, sont relativement légers (2 à 5 carbones) et sont donc peu adaptés à l'analyse sur tube Tenax.

Analyse des chlorés

Les composés chlorés sont mieux dosés par le charbon actif que par le Tenax (P > 0,285). La différence se fait principalement par rapport à la volatilité des composés identifiés et à la meilleure réponse du charbon actif pour le dichlorométhane qui est le composé majoritaire identifié dans les 4 casiers. Selon, Harper (2000), les composés chlorés présentent, pour le charbon actif désorbé dans le CS_2 , un rendement proche de 100 % et sont peu influencés par la présence d'autres composés.

* Analyse des cétones

Il est difficile de se prononcer sur les performances des deux techniques pour l'analyse des cétones tant elles varient d'un composé à un autre et d'un casier à un autre (-0,936 < P < 0,557). L'acétone par exemple est mieux dosé par le charbon actif pour les casiers Témoin, PTB1 et 2 mais pas pour le Bioréacteur. Pour les casiers Bioréacteur, Témoin et PTB2, ce sont les charbons actifs qui montrent les meilleures performances pour le dosage de la 2-butanone alors que le Tenax donne des meilleurs résultats pour le PTB1. Pour le MIBK, le Tenax surpasse le charbon actif pour tous les casiers sauf le casier Témoin. Les performances pour les cétones sont donc peu prévisibles même si, statistiquement, le Tenax aboutit à des concentrations plus élevées malgré la polarité et la relative volatilité de ces composés.

* Analyse des cycloalcanes, aromatiques, terpènes et alcènes

Pour ce qui concerne les cycloalcanes, aromatiques, terpènes et alcènes, les tendances sont beaucoup plus marquées puisque, pour les quatre casiers, le Tenax présente des concentrations supérieures à celles obtenues avec les charbons actifs (P < 0 quels que soient les casiers). Les trois premières familles présentent toutes la particularité de comporter un cycle de carbone (aromatique ou non) qui peut être une explication des meilleures performances des tubes Tenax. Les moindres performances du charbon actif pour l'analyse des alcènes peuvent être expliquées par une faible stabilité de ces composés dans le CS_2 qui présentent un rendement qui décroît d'autant plus que les concentrations rencontrées sont faibles (Harper, 2000).

Pour conclure, il apparaît que, même si certaines tendances peuvent être dégagées de l'étude des performances des deux techniques étudiées, celles-ci varient beaucoup d'un composé et d'un point de mesure à l'autre. La spécificité des adsorbants largement décrite dans la littérature s'est trouvée, à de nombreuses reprises, contredite par les données expérimentales. C'est, par ailleurs, une raison supplémentaire qui justifie le fait d'employer deux techniques, qui peuvent sembler redondantes, et de se servir des performances de chacune pour mieux caractériser les effluents gazeux.

V.2 : Analyse statistique des mesures de COV effectuées sur le Biogaz des casiers de stockage

Remarques :

L'analyse statistique des données a été réalisée en collaboration avec Arnaud PONTHIEUX, ingénieur au CRP, qui a développé un programme d'analyse en composantes principales sur MATLAB et qui a contribué à la mise en œuvre de la régression linéaire multiple.

V.2.1: Analyse en composantes principales

V.2.1.1 : Généralités

Le lot de données obtenu par le suivi de la qualité du biogaz issu des 4 casiers a été analysé par une méthode statistique exploratoire nommée l'Analyse en Composantes Principales (ACP) afin d'en extraire des informations complémentaires. Cette méthode permet de synthétiser une masse de données conséquente en une information exploitable et compréhensible par une description essentiellement graphique de l'information.

Le but de l'ACP est de réduire la dimension du système pour une visualisation simplifiée des observations, en ramenant un grand nombre de variables, souvent corrélées entre elles, à un petit nombre de composantes principales non corrélées. Pour se faire, il s'agit de déterminer un espace de dimension réduite (généralement 2 ou 3 dimensions) qui respecte au mieux la configuration initiale des points, c'est-à-dire qui minimise la déformation inhérente à la projection dans l'espace. L'espace ainsi créé est constitué d'axes dont les vecteurs unitaires représentent les vecteurs propres du système. La valeur propre associée à chacun des vecteurs propres définit la part d'information prise par chaque dimension et permet de hiérarchiser les axes principaux. Elle permet de mesurer la pertinence de chacune des composantes principales à la description du nuage de points. Plus la somme des valeurs propres est élevée, plus l'espace construit est représentatif du nuage de points initial.

Les concentrations des 13 familles chimiques (exprimées en mg.Nm⁻³), mesurées dans le biogaz issu des 4 casiers de stockage, représentent les 13 variables du système. Chaque point de mesure (111 au total) constitue une observation ou une « unité statistique ».

L'objectif de l'ACP est, à partir de la série de données, d'identifier des comportements similaires de familles chimiques entre elles (évolution des concentrations de chaque famille), sans distinction de la source (casier de stockage) ni des conditions expérimentales des observations. Ceci est accompli par regroupement graphique des variables dans le nouvel espace construit à partir des composantes principales du système.

L'ACP s'est déroulée en deux étapes. Une première ACP a été réalisée sur les 13 variables (familles chimiques) (cf. Annexe 6). A la suite de celle-ci, les acides, soufrés et furanes, très minoritaires en terme de concentration et dont moins de 25 % des valeurs sont différentes de 0, ont été ôtés de la série de données. Une seconde ACP a été réalisée avec les 10 familles chimiques restantes. Seule la seconde ACP est présentée.

V.2.1.2 : ACP réalisées à partir des 10 familles chimiques de COV

L'ACP réalisée avec les 10 variables montre que le premier axe résume 43,3 % de l'information du nuage de point. Ce pourcentage atteint 73,7 % en prenant en compte les trois premières composantes. L'étude de la qualité d'explication pour chaque variable selon l'espace considéré montre qu'il serait nécessaire de travailler avec 4 axes factoriels pour atteindre une qualité d'explication significative. Néanmoins, le but de l'ACP étant de fournir une information visuellement interprétable, seuls les 3 premiers axes factoriels ont été considérés.

Les coordonnées factorielles des variables sur chacun des 3 axes principaux, qui correspondent aux coefficients de corrélation entre les variables et les axes, sont présentées dans le Tableau 55.

Variables	Coordonnées factorielles			
Variables	Axe 1	Axe 2	Axe 3	
Alcanes	-0,704	0,579	-0,199	
Cycloalcanes	-0,857	-0,023	-0,124	
Alcènes	-0,029	-0,605	-0,544	
Alcools	-0,723	-0,296	0,206	
Aldéhydes	-0,068	-0,583	-0,616	
Cétones	-0,751	-0,207	0,218	
Aromatiques	-0,812	0,311	-0,192	
Terpènes	-0,816	-0,277	0,210	
Chlorés	-0,299	0,710	-0,445	
Esters	-0,772	-0,260	0,141	

Tableau 55 : Coordonnées factorielles des 10 variables pour les 3 premiers facteurs

L'analyse des coordonnées factorielles selon les trois premiers axes principaux (cf. Tableau 55) montre que :

• Le facteur 1, qui présente l'importance la plus élevée (43,3 %), est corrélé négativement à toutes les familles chimiques : c'est-à-dire que les points les plus à droite dans le plan factoriel sont les points les plus émissifs. Cet axe définit un gradient d'émission croissant.

• Le facteur 2, dont l'importance est deux fois moindre que le premier facteur (19,2 %), ne suit pas le même sens de variation des variables. Il nuance le premier facteur en opposant clairement les chlorés, les alcanes et dans une moindre mesure les aromatiques aux alcènes et aldéhydes.

• Le facteur 3 (importance de 11,2 %) oppose quant à lui les terpènes, alcools et cétones aux chlorés, alcènes et aldéhydes.

La représentation graphique des plans factoriels permet de visualiser le regroupement de certaines familles chimiques entre elles. Les plans 1-2, 1-3 et 2-3 ainsi que la représentation de l'espace tridimensionnel sont donnés dans le Graphique 29. Le cercle (ou la sphère en 3D) de corrélation de rayon unitaire est représenté. Il est aussi utile pour





interpréter la signification des axes. En effet, pour une direction donnée, plus les variables sont proches du cercle, plus celles-ci ont de l'importance.

Graphique 29 : Représentation des vecteurs propres dans les 3 plans factoriels et visualisation de l'espace 3D

L'observation des différents plans permet de séparer les variables en 3 groupes de corrélations :

- les chlorés, les alcanes et les aromatiques,
- les alcools, esters, terpènes et cétones,
- les alcènes et aldéhydes.

Les vecteurs des variables des deux derniers groupes présentent une norme et une direction très voisine, preuve d'une corrélation significative avec une importance relativement homogène pour les différentes familles chimiques composant les deux groupes.

Il est intéressant de noter que l'ACP effectuée sur les 13 familles chimiques (Annexe 6) a révélé les mêmes groupes de composés.



Graphique 30 : Représentation des individus dans le plan 1-2

La représentation des différents points de mesure dans le plan 1-2, en distinguant les 4 casiers par des couleurs, permet de mettre en évidence que les points les plus émissifs, les plus à gauche pour le facteur 1 (gradient de concentration), appartiennent au Bioréacteur et au Témoin (respectivement en rouge et en vert) (cf. Graphique 30 : représentation inversée par rapport au Graphique 29).Les points appartenant aux casiers PTB1 et PTB2 (en bleu et violet) se situent à l'opposé de toutes les variables, indiquant des concentrations moindres pour ces deux casiers. Cette observation confirme ce que les mesures de concentrations montraient déjà mais permet aussi de valider le rendu de l'analyse en composantes principales.

Les résultats de l'ACP seront repris dans la discussion (Partie 4).

V.2.2: Régression linéaire multiple

V.2.2.1 : Généralités

A partir des trois groupes de familles chimiques mis en évidence par l'ACP, une régression linéaire multiple va permettre de tester si les émissions pour chaque groupe sont corrélées à différents paramètres quantitatifs liés aux conditions expérimentales (température, activité biologique, recirculation de lixiviat, prétraitement biologique). Un des objectifs étant de rechercher une corrélation entre les émissions de COV et l'état de dégradation du déchet.

La régression linéaire multiple (RLM) est une extension de la régression linéaire simple qui permet de prendre en compte plusieurs variables indépendantes plutôt qu'une seule. Cette technique est adaptée au présent problème puisqu'elle permet de rechercher l'effet de plusieurs variables qualitatives liées aux conditions expérimentales sur les émissions des différents groupes de composés. Pour chaque groupe de composés, le principe est de construire un modèle qui permette d'estimer la concentration du groupe considéré en fonction des variables qualitatives choisies (conditions expérimentales). Le détail de la démarche est présenté en Annexe 6.

V.2.2.2 : Préparation des données

Les variables dépendantes ont été obtenues en additionnant les données brutes constituées par les concentrations des différents groupes de composants définis par l'ACP. Celles-ci sont définies dans le Tableau 56.

Groupe de composés	Familles chimiques
Groupe 1	Aldéhydes, alcènes
Groupe 2	Chlorés, alcanes, aromatiques
Groupe 3	Alcools, esters, terpènes, cétones

Tableau 56 : Variables dépendantes considérées pour la régression linéaire multiple

Pour cette étude, plusieurs variables indépendantes, aussi appelées facteurs qualitatifs, ont été testées. Ceux-ci sont présentés dans le Tableau 57.

Facteurs	Température	Biologie	Prétraitement	Recirculation
Niveau	1 : T < 20 °C 2 : T = 20 - 30 °C 3 : T = 30 - 40 °C 4 : T > 40 °C	1 : $CO_2 = 0$; $CH_4 = 0$ 2 : $CO_2 > 0$; $CH_4 = 0$ 3 : $0 < CH_4/CO_2 < 1$ 4 : $CH_4/CO_2 > 1$ 5 : $CH_4/CO_2 > 1 + EA$ 6 : $CH_4/CO_2 < 1 + EA$	1 : Non 2 : Sommaire (Intensif : I) 3 : Poussé (I + Maturation)	1 : Oui 2 : Non

Tableau 57 : Variables indépendantes considérées pour la régression linéaire multiple

Le facteur température traduit la température du massif de déchet à laquelle chaque point de mesure a été effectué. Le facteur biologie correspond à la phase de dégradation biologique dans laquelle se trouvait le déchet. Les différentes phases étant définies par la qualité du biogaz couramment utilisée pour qualifier l'état de dégradation du déchet (cf. Figure 4). A noter les niveaux 5 et 6 qui traduisent les situations des casiers PTB1 et PTB2 pour lesquels des entrées d'air (EA) interviennent du fait de la faible production de biogaz. Ces deux niveaux font référence seulement à la phase de décroissance de la production de biogaz et ne sont pas attribués aux points effectués lors de la mise en place de la méthanogénèse. Le facteur prétraitement traduit l'intensité ou l'absence de prétraitement biologique du déchet avant d'être enfoui. Enfin, le facteur recirculation permet de discriminer le casier Bioréacteur.



V.2.2.3 : Expression des résultats de la régression linéaire multiple

Graphique 31 : Représentation en histogramme de la régression linéaire multiple

Le principal vecteur d'information pour une régression linéaire multiple est la représentation en histogramme de l'influence des facteurs (cf. Graphique 31).

Sur cet histogramme, est représentée en premier lieu, la constante de l'équation (β_0 : la référence) qui correspond à la valeur de la variable dépendante (concentration du groupe de composés étudiés) lorsque tous les facteurs sont au niveau 0 (température < 20°C, Biologie 1 et absence de prétraitement et de recirculation, correspondant aux déchets frais enfouis dans le casier Témoin).

Ensuite, l'influence des différents facteurs est représentée avec un intervalle de confiance à 95 %. L'influence d'un facteur est dite « positive » lorsque la barre correspondante dans l'histogramme est orientée vers le haut, ce qui signifie que la concentration du groupe de composés étudié est augmentée par rapport à la référence lorsque le facteur passe de 0 à 1 (cf. Annexe 6). Parallèlement, l'influence d'un facteur est dite « négative » lorsque l'histogramme est orienté vers le bas. L'influence est plus ou moins marquée selon la taille de la barre.

Il convient de joindre à cette représentation les informations concernant l'importance de la régression dans l'explication de la variabilité de la série de donnée, qui permettent de pondérer les hypothèses et conclusions. Celles-ci seront données dans une table d'ANOVA simplifiée dans laquelle sont indiqués la somme des carrés et le coefficient de régression linéaire R^2 (cf. Annexe 6).

V.2.2.4 : Résultats



V.2.2.4.a : Analyse du groupe 1

Graphique 32 : Représentation en histogramme de la RLM pour le groupe 1

Source	Somme des carrés	R ²
Régression	3,488	0,249
Résiduelle	10,534	
Total	14,021	

Tableau 58 : Table d'ANOVA simplifiée de la RLM pour le groupe 1

L'analyse de la table d'ANOVA montre que la régression ne permet d'expliquer que 25 % de la variabilité des valeurs observées. Il apparaît donc difficile de tirer la moindre conclusion quant à l'influence des différents facteurs sur les émissions des aldéhydes et alcènes. Ceci est d'ailleurs confirmé par les intervalles de confiances sur le Graphique 32 qui interdisent toute exploitation. La faible valeur de la constante du modèle (première barre de l'histogramme) montre par ailleurs que ce groupe est minoritaire pour les points de mesure de référence.

V.2.2.4.b : Analyse du groupe 2



Graphique 33 : Représentation en histogramme de la RLM pour le groupe 2

Source	Somme des carrés	R ²
Régression	20,193	0,522
Résiduelle	18,496	
Total	38,690	

Tableau 59 : Table d'ANOVA simplifiée de la RLM pour le groupe 2

L'analyse de la table d'ANOVA simplifiée indique que le modèle permet d'expliquer 52 % de la variabilité de la série de données. Ceci est jugé correct pour exploiter de manière descriptive la régression mais ne suffit pas pour considérer la régression comme un modèle prédictif (permettant de calculer la concentration du groupe de composés à partir des conditions expérimentales avec une bonne précision).

L'analyse de l'histogramme (Graphique 33) montre l'importance de la constante de la régression linéaire qui indique que le groupe « chlorés, alcanes et aromatiques » présente des concentrations importantes pour les points de mesure de référence.

Il ressort aussi que les facteurs « température » n'ont pas une influence marquée sur les émissions de ce groupe par rapport à la température de référence. En d'autres termes, les émissions de ce groupe se produisent indépendamment de la température du massif. L'activité biologique a, quant à elle, un impact négatif sur les émissions des alcanes, aromatiques et chlorés par rapport aux émissions lorsque l'activité biologique est faible, quel que soit le stade d'avancement considéré. Ceci peut signifier deux choses. D'une part, l'émission de ces composés est plus importante pour les déchets frais pour lesquels aucune activité biologique n'est mise en évidence. D'autre part, les alcanes, aromatiques

et chlorés sont sujets à la biodégradation. L'impact de celle-ci semble décroître légèrement avec l'établissement de la méthanogénèse (influence négative légèrement plus marquée pour Bio2 que pour Bio 3 et 4). Elle est accrue pour le Bio5 et 6 où se rajoute l'effet de dilution lié aux entrées d'air qui diminue de manière artificielle les concentrations des composés.

Le prétraitement des déchets a un impact négatif par rapport au déchet non prétraité, il permet la diminution des concentrations des alcanes, aromatiques et chlorés. L'effet est d'autant plus important que le prétraitement est poussé. La recirculation des lixiviats semble avoir peu d'effet sur les émissions des chlorés, aromatiques et alcanes.



V.2.2.4.c : Analyse du groupe 3

Graphique 34 : Représentation en histogramme de la RLM pour le groupe 3

Source	Somme des carrés	R ²
Régression	58,704	0,798
Résiduelle	14,898	
Total	73,602	

Tableau 60 : Table d'ANOVA simplifiée de la RLM pour le groupe 3

La régression linéaire multiple effectuée sur le groupe 3 permet une analyse quasi prédictive des émissions d'alcools, esters, terpènes, cétones puisque le modèle permet d'expliquer 80 % de la variance de la série de données (cf. Tableau 60).

L'influence croissante de la température est mise en évidence sur l'histogramme (cf. Graphique 34). Ceci indique que les concentrations dans le biogaz, qui sont non négligeables lorsque la température est inférieure à 20°C (constante égale à 1,5), sont d'autant plus importantes que la température du massif de déchet augmente.

Le processus biologique qui conduit à l'installation de la méthanogénèse semble avoir peu d'influence sur les émissions, même si les facteurs Bio5 et Bio6 présentent comme les groupes précédents une influence négative sans doute liée au phénomène de dilution. Cette observation signifie que les différents stades de dégradation dans lesquels se trouve le déchet n'ont pas d'influence sur les concentrations en d'alcools, esters, terpènes, cétones par rapport à un déchet qui ne connaît aucune activité biologique notable.

Le prétraitement biologique est un facteur de réduction importante des émissions de ce groupe. Son influence va croissante avec l'intensité du prétraitement.

La recirculation a, quant à elle, une influence positive faible sur le groupe mais peu significative étant donné l'intervalle de confiance lié à ce facteur.

Les résultats de la RLM et de l'ACP sont repris dans le discussion (Partie 4).

PARTIE 4 DISCUSSION

PARTIE 4 : DISCUSSION

Introduction

Cette partie a pour objectif d'aborder les différents points qui touchent aux trois filières étudiées, considérées dans leur ensemble, à travers des discussions sur les résultats expérimentaux obtenus tout au long du travail de thèse, sur les interprétations à l'aide d'outils statistiques ou sur les hypothèses qui n'ont pu être vérifiées et qui soulèvent de nouvelles interrogations.

La connaissance des mécanismes bio-physico-chimiques qui conduisent aux émissions liquides et gazeuses est encore limitée. Les données de flux émissifs des différents polluants par voie liquide et gazeuse manquent pour évaluer les différentes filières de traitement et surtout pour les comparer entre elles.

Les données issues du présent travail contribuent à la compréhension du comportement du déchet suivant les différentes filières de stockage et participent à la définition des flux et des bilans qui permettent de les comparer.

Ces résultats sont issus d'expérimentations à l'échelle semi industrielle, à mi-chemin entre manipulation de laboratoire et site de taille réelle. La représentativité des phénomènes observés est fondamentale pour l'extrapolation des résultats concernant les flux émissifs, les cinétiques des processus biologiques ou le comportement géomécanique des déchets. Cette représentativité est obtenue grâce à la taille des expérimentations au détriment de la maîtrise et de la précision inhérente aux manipulations de laboratoire. L'expérimentation de laboratoire sur des ordures ménagères implique une réduction granulométrique et une homogénéisation des déchets qui entraînent une modification artificielle des cinétiques des différents processus bio-physico-chimiques et qui interdisent bien souvent la transposition des résultats à l'échelle réelle. L'allongement des processus induit par la taille semi industrielle des présentes expérimentations est garant de cette transposabilité mais expose les expérimentations aux aléas techniques, aux incertitudes et aux hypothèses. L'échelle semi-industrielle est, en quelque sorte, un compromis indispensable entre le laboratoire et le site qui permet l'observation, dans un laps de temps convenable, de phénomènes représentatifs de ceux qui se produisent en grandeur nature, tout en conservant une précision acceptable sur les résultats.

Parmi les paramètres clés qui éclairent sur la possibilité d'intercomparer les filières entre elles, il y a : la similitude du gisement de déchet et de la mise en œuvre technique de la simulation de stockage quelles que soient les filières, la température du déchet et le flux hydrique en phase de stockage. Les deux premiers critères ont été satisfaits grâce à la procédure expérimentale adoptée pour cette étude. La température du déchet, qui représente un paramètre cinétique important dans les processus biologiques et chimiques, a été maintenue à un niveau représentatif des conditions au sein d'une décharge (35-45°C)

(Aran, 2001). La perturbation des conditions thermiques des massifs de déchets engendrée par la mise en place tardive de l'isolation thermique a pu néanmoins modifier le comportement des déchets. Le flux hydrique (simulation de pluie) a été comparable pour les deux casiers PTB, le Bioréacteur n'a pas fait l'objet d'une simulation de pluie, suivant l'hypothèse d'une couverture étanche. Pour des raisons techniques le casier Témoin a subi un flux hydrique atypique qui a influencé son comportement et qui interdit certaines comparaisons qui seront discutées dans les chapitres suivants. Les casiers PTB et Témoin ont cependant subi le même taux de simulation de pluie ramené à la tonne de matière sèche enfouie (respectivement 395, 393 et 405 $L.t_{MS}^{-1}$)

Impacts de la filière de traitement sur les émissions et le comportement du déchet en conditions de stockage

I.1 : Effluents gazeux

I.1.1 : Généralités

Un des facteurs prépondérants qui détermine le flux émissif d'un massif de déchet est le volume de gaz vecteur qui transite au travers de la matrice solide. Le phénomène de stripping que subissent les déchets dépend de la filière de traitement. Les volumes de gaz mis en jeu dans les filières de prétraitement biologique avant enfouissement sont nettement supérieurs à ceux correspondant aux filières Conventionnelle et Bioréacteur (5218 et 5494 Nm³.t_{DE}⁻¹ pour les filières PTB1 et PTB2 contre théoriquement 151 Nm³.t_{DE}⁻¹ pour les filières Conventionnelle et Bioréacteur). Pour les filières de PTB avant enfouissement, c'est l'air insufflé au déchet pour transférer l'oxygène qui représente le principal vecteur d'émissions gazeuses. Les ratios entre la quantité d'air insufflé lors du prétraitement et le volume de biogaz (théorique) produit par les déchets prétraités, qui sont de l'ordre de 150 et 390 pour les déchets PTB1 et PTB2, expliquent en grande partie le rôle prédominant du prétraitement biologique dans le processus d'émission considéré au niveau de la filière.

Le principal objectif du prétraitement biologique, qui est de stabiliser le déchet, est atteint au niveau de la réduction de la production de biogaz (réduction de 79 et 95 % du BMP pour les déchets PTB1 et PTB2), et ce, même avec un procédé simple comme celui qui a été utilisé pour cette étude. La réduction du potentiel de biogaz par le traitement, pendant 25 semaines, de la totalité du flux de déchet est comparable aux performances obtenues en 15-16 semaines par le traitement de la fraction fine (< 80 mm) du déchet par des procédés intensifs (Fricke et al., 1997; Binner, 2002). L'absence de séparation de matière et la simplicité du procédé (faible réduction granulométrique et aération forcée) sont apparues comme deux facteurs déterminants pour expliquer les performances moyennes du traitement biologique (cf. Partie 3 - II.3.5).

La production résiduelle de biogaz, qui varie suivant le degré de prétraitement du déchet, a pour particularité de présenter une cinétique rapide dès le début de la mise en décharge des déchets prétraités. Le phénomène a été atténué par les conditions initiales de température des massifs. Cette réduction de la phase de latence a cependant été

observée par de nombreux auteurs (Leikam et al., 1995 ; Binner, 2002 ; Bockreis et al., 2003, 2004) et apparaît comme une caractéristique paradoxale pour des déchets prétraités, censés être stabilisés.

Cette caractéristique peut avoir une influence importante sur les pratiques de mise en décharge puisqu'elle implique une production potentiellement significative de biogaz même sur la zone encore en exploitation. Suivant le niveau de stabilité atteint, le réseau de captage, qui est installé sur les centres de stockage conventionnels, n'est pas forcément adapté au cas d'un massif de déchets prétraités. Il est cependant nécessaire de réfléchir à un moyen de gérer la production résiduelle qui peut être, comme l'a montré la filière PTB1, non négligeable (59 Nm³.t_{MS}⁻¹ de biogaz). Cette modification des pratiques peut prendre la forme de couches de dégazage passif permettant l'oxydation du biogaz produit (Höring et al., 1999 ; Gebert et al., 2006) ou d'un réseau de captage à l'avancement avec éventuellement une densité de drains adaptée aux caractéristiques du déchet, notamment sa perméabilité (cf. discussion sur le comportement géomécanique, paragraphe I.3).

La production résiduelle de biogaz peut présenter un ralentissement de sa cinétique sur le long terme. Les déchets prétraités, que ce soit le PTB1 ou le PTB2, ont en effet présentés deux cinétiques de production bien marquées (cf. Graphiques 23 et 24) et confirment les travaux de Doedens et al. (2000), qui mettent en évidence un possible allongement du temps de demi-vie de la production de biogaz. Les résultats du PTB1 ont montré que la stabilisation de la matière organique biodégradable résiduelle pouvait être relativement longue (7,5 ans d'après l'estimation effectuée au paragraphe III.3.3 de la partie 3). Cette caractéristique peut, encore une fois, apparaître paradoxale pour un déchet prétraité.

Considérant ces deux caractéristiques, il peut apparaître intéressant de combiner un traitement aérobie succinct (suffisant pour favoriser la mise en place rapide de la méthanogénèse sans trop diminuer le potentiel de biogaz) avec une mise en décharge optimisée permettant d'accélérer la production de biogaz.

Ce constat plutôt positif de l'effet du prétraitement sur la mise en décharge est à nuancer par les désagréments apportés par les importantes émissions liées au traitement aérobie. Outre l'impact sur le bilan de gaz à effet de serre qui est discuté en détail dans le chapitre suivant, le PTB entraîne l'émission de COV dont la toxicité est connue. Les données à l'émission présentent, à ce titre, un intérêt réel pour les études sur les traitements d'effluents gazeux de ce type de procédé et pour les études d'impacts sanitaires. Ces données ne peuvent être comparées en l'état aux limites d'exposition (VLE et VME : Valeur Limite et Valeur Moyenne d'Exposition) et le traitement d'une telle problématique est complexe et sort du cadre de la présente étude. Il est cependant intéressant de souligner les émissions, en quantités non négligeables (entre 3 et 3111 g.t_{DE}⁻¹, cf. Tableau 28), de composés aromatiques tels que le toluène, l'éthylbenzène ou des composés halogénés tels que le dichlorométhane, le trichloréthylène ou le chloroforme ou encore l'acétone, dont les effets sur la santé des personnels exposés peuvent présenter un enjeu important.

Le suivi des casiers de stockage n'a pas permis d'identifier un impact significatif et à long terme de la recirculation de lixiviats sur les émissions gazeuses. Le manque de recul lié à la durée trop limitée du suivi ainsi que la singularité du casier Témoin participent à l'incertitude concernant le rôle de la recirculation. Les aléas techniques liés au système de dégazage du Bioréacteur n'ont sans doute pas contribué à une vision claire de l'impact de la recirculation. A défaut de pouvoir comparer le comportement du Bioréacteur à celui du casier Témoin, il est tout de même possible de confirmer le rôle limitant de l'humidité dans la dégradation de la matière organique (Polhand, 1975) en observant la rapide progression de la production de biogaz mesurée sur le casier Témoin à la suite de la réparation de la simulation de pluie au 23^{ème} mois de stockage (cf. Graphique 10). La rapide mise en place de la méthanogénèse, résultat de la recirculation de lixiviats, décrite dans de nombreux travaux (Warith, 2002 ; François, 2004 ; Gachet, 2005) n'apparaît pas significative et a pu être perturbée par les conditions thermiques du massif dans les 15 premiers mois d'enfouissement et la qualité du lixiviat recirculé.

Un point important concernant le comportement du casier Témoin doit être éclairci. La production de biogaz observée sur ce casier à la fin du suivi (23,6 Nm³.t_{MS}⁻¹.mois⁻¹ au cours du 33^{ème} mois de stockage) est importante au regard des productions maximales observées ou même prédites par les modèles les plus optimistes. Celle-ci est par ailleurs très supérieure au taux de production de biogaz maximal observé sur le Bioréacteur au cours de la même période et sur le même déchet (8,4 Nm^3 .t_{MS}⁻¹.mois⁻¹ au 31^{ème} mois de stockage). La phase de latence de 24 mois, qu'il est possible de qualifier de sèche (absence d'infiltration) avec un double régime thermique (15 mois à température ambiante et 9 mois à 40°C), peut-elle expliquer une telle activité biologique? Il est possible de proposer une analogie avec un méthaniseur à deux étapes, la première permettant la préparation de la matière organique afin d'optimiser le taux de conversion de celle-ci lors de la méthanogénèse, laquelle est réservée à la seconde étape du procédé. La phase de latence ne pourrait-elle pas avoir constitué une période favorisant les processus considérés comme limitants pour le taux de conversion du carbone organique en biogaz, en particulier les processus hydrolytiques (Delgènes et al., 2002)? L'introduction d'une quantité importante d'eau aurait alors permis l'entrée en action des microorganismes méthanogènes, jusque là inhibés par les conditions thermiques, hydriques et physicochimiques du massif. L'absence de lixiviat durant toute cette phase n'a, par ailleurs, pas permis d'obtenir d'informations sur l'état bio-physico-chimique du déchet. L'interrogation reste entière et pourra être levée soit en étudiant dans des conditions contrôlées le scénario de stockage suivi par le casier Témoin, soit en autopsiant le même casier pour analyser l'état du déchet en particulier l'état biochimique de sa matière organique.

Il est intéressant de souligner les différences observées entre les casiers pour les émissions de composés traces. Pour le H_2S , la différence la plus significative est celle entre les casiers PTB et les deux autres. En effet, il apparaît que le prétraitement biologique permet une réduction importante de la production de H_2S (186 et 17 mg.t_{DE}⁻¹ pour les filières PTB1 et PTB2 contre 4698 et 1245 mg.t_{DE}⁻¹ pour les filières Conventionnelle et Bioréacteur). Les mesures de flux d'H₂S sur les casiers sont par ailleurs confirmées par les tests BMP, réalisés sur les déchets pour déterminer leur potentiel de production de biogaz (non exposés dans le présent manuscrit), qui montrent la même tendance. Aucune étude ne fait état de ce phénomène qui ne peut, à priori, pas être expliqué par une limitation

des sulfates (concentration en $SO_4^{2^-}$ dans les lixiviats PTB1 et PTB2 comprise entre 400 et 1400 mg.L⁻¹). Il peut sans doute trouver son explication dans la faible teneur en carbone organique disponible dans les déchets prétraités (type acétate et AGV) qui joue le rôle d'accepteur d'électrons dans la réaction de sulfato-réduction (Percheron, 1997).

Il est difficile de déterminer s'il existe un impact de la recirculation sur la sulfatoréduction. Le processus a montré, pour les casiers Témoin et Bioréacteur, une concomitance avec l'activité méthanogène et les derniers mois de suivi ont mis en évidence une importante production de H_2S pour le casier Témoin suite à la nette augmentation de la méthanogénèse. Cette observation est en accord avec le fait qu'il existe une compétition entre les deux métabolismes anaérobies. La nette différence entre l'intensité de la méthanogénèse et de la sulfato-réduction, matérialisée par les concentrations respectives en CH_4 et en H_2S (environ 55 % contre 100 ppm), a pu dissimuler l'effet de cette compétition. Les bactéries sulfato-réductrices répondant aux mêmes lois de la microbiologie que les méthanogènes, il semblerait logique que l'homogénéisation de l'humidité induite par la recirculation des lixiviats soit tout aussi bénéfique aux BSR qu'aux méthanogènes. Les processus d'inhibition sont susceptibles d'être propres aux deux espèces de bactéries qui ne répondront sans doute pas de la même façon aux variations des conditions de milieu consécutives à la recirculation intensive. D'après Vigneron (2005), il est délicat de prévoir l'évolution des deux processus en présence de sulfates tant les paramètres qui régissent la compétition entre les deux réactions sont méconnus et controversés.

Concernant le N₂O, les émissions relevées sur les différents casiers sont du même ordre de grandeur. Le flux émissif mesuré sur le casier Témoin, qui est supérieur à celui du casier Bioréacteur et des casiers PTB semble être la conséquence des conditions particulières des deux premières années de suivi lors desquelles ont été mesurées les concentrations de N₂O les plus élevées (jusqu'à 80 ppm). Ces valeurs sont à considérer comme des ordres de grandeur de données relativement rares dans la littérature qu'il est nécessaire, à l'avenir, de confirmer par des mesures lors de tests BMP ou sur des réseaux de biogaz sur site par exemple. Les conditions qui conduisent à la production de N₂O montrent qu'il est important de s'y intéresser dans le cadre de l'enfouissement des déchets comme l'ont fait Tsujimoto et al. (1994) ou Rinne et al. (2005). Néanmoins ces études se sont intéressées aux émissions surfaciques à travers les couvertures temporaires ou définitives et non à la production intrinsèque de N₂O au sein du massif de déchet. La nitrification ex-situ des lixiviats avant leur recirculation peut être un scénario donnant lieu à des émissions de N₂O, qu'il semble intéressant d'étudier.

L'impact des émissions sur le bilan de gaz à effet de serre des différentes filières est discuté dans le chapitre suivant.

Concernant l'azote et le carbone, dont les bilans ont été présentés pour chacune des filières dans le Tableau 53, il ressort que, pour la phase d'enfouissement, la voie gazeuse joue un rôle minime dans la mobilité de l'azote contenu initialement dans le déchet quelle que soit la filière (en moyenne < 0,01 % N_{initial}). Le prétraitement biologique, avec les émissions de NH₃ et de N₂O, permet une réduction, par voie gazeuse, de respectivement 25 et 46 % du « stock » d'azote du déchet prétraité mis en décharge. A la fin du suivi de la phase de stockage, il restait dans les déchets stockés respectivement 96, 94, 71 et 53 % de
l'azote contenu dans le déchet initialement, pour les filières Conventionnelle, Bioréacteur, PTB1 et 2.

Les émissions gazeuses représentent la voie majoritaire d'élimination du carbone quelle que soit la filière et la phase du traitement (PTB ou enfouissement). En effet, en moyenne selon les 4 filières, plus de 99 % du transfert de carbone s'est effectué par voie gazeuse. Le prétraitement biologique permet une réduction de 47 et 54 % du stock de carbone organique du déchet par rapport à un déchet brut. Le faible stock de carbone du déchet prétraité enfoui entraîne une réduction du flux de carbone lors de l'enfouissement, qui, d'après Scheelhaase (2001), peut atteindre 90 %. L'émission de COV durant le PTB, qui semble largement imputable à la volatilisation de composés organiques présents initialement dans le déchet (cf. discussion sur les émissions de COV lors du PTB, paragraphe I.1.4.1), représente une part non négligeable du flux de carbone organique sur l'ensemble des filières PTB (respectivement 19 et 16 %).

D'un point de vue « cycle du carbone », il apparaît que le traitement biologique avant enfouissement, en convertissant une part importante du carbone organique en CO_2 (30,9 et 44,2 % respectivement suivant les deux filières étudiées), annule la possibilité de convertir celui-ci en méthane valorisable énergétiquement, sans pour autant permettre un retour à la terre de la matière organique stabilisée par valorisation agronomique.

I.1.2 : Bilan gaz à effets de serre des différentes filières

Le calcul de la production de gaz à effet de serre (GES) par les filières passe par l'utilisation d'un indice nommé Pouvoir de Réchauffement Global (PRG), plus connu sous sa version anglophone, Global Warming Potential (GWP), qui définit la capacité d'un gaz à absorber les rayons infrarouges réfléchis par la terre. Cet indice se mesure par rapport au potentiel du CO₂ qui est pris pour référence (PRG = 1). L'horizon de temps pris en compte dans ce calcul est conventionnellement choisi égal à 100 ans. Le but de ce calcul est d'estimer la production de GES de chacune des filières et d'appréhender le rôle des gaz comme le N₂O ou les COV dont le poids dans l'impact « effet de serre » des émissions gazeuses des filières de traitement est méconnu.

(D'après IPCC, 1992)

Tableau 61 : Potentiel de réchauffement global des composés gazeux identifiés

Le PRG des différents gaz concernés et identifiés dans cette étude est donné dans le Tableau 61. Comme pour toutes les études d'impact effet de serre, le CO_2 d'origine biologique n'est pas comptabilisé et n'est indiqué dans le tableau qu'à titre indicatif.

L'estimation de la production de gaz à effet de serre présentée ici ne considère que les sources d'émissions sans discuter des facteurs qui pourraient modifier de manière importante les émissions réelles tels que le taux de captage et d'oxydation du biogaz ou le traitement des effluents gazeux émis lors du traitement biologique. L'objectif de ce paragraphe est de considérer les données brutes sans discuter des hypothèses qui incombent à leur utilisation dans une étude d'impact ou une analyse de cycle de vie par exemple.

La durée de l'étude et la taille des casiers de stockage n'ont pas permis d'aller jusqu'à la stabilisation du déchet. Il a été décidé, pour effectuer le bilan, d'extrapoler les données disponibles sur la base du potentiel de biogaz théorique par rapport au potentiel de biogaz déjà produit. Cette méthode n'a un effet significatif que pour les COV et le N₂O dont il apparaît difficile de prévoir l'évolution avec le temps, l'erreur commise sur l'émission de méthane apparaissant plus négligeable. Le résumé des données ainsi que les résultats du bilan sont présentés dans les Tableaux 62 et 63. Les données pour le casier PTB2 n'ont pas été extrapolées en considérant que la production de biogaz pour ce casier est complète. Les facteurs d'extrapolation correspondant au ratio du potentiel théorique de biogaz sur la quantité déjà produite sont de 2,973, 3,369 et 2,398 respectivement pour les casiers Témoin, Bioréacteur et PTB1.

Filières		Données en kg.t _{DE} -1		PRG Tota	% total
		Brutes	Extrapolées	kg CO ₂ eq .t $_{DE}^{-1}$	
	CH_4	20,1	55,5	1165,5	<mark>99,6 %</mark>
	N ₂ O	1,6 x 10 ⁻³	4,7 x 10 ⁻³	1,5	0,1 %
Témoin	CCl₃F	93 x 10⁻ ⁶	275 x 10 ⁻⁶	1,1 1170	0,1 %
Tenioin	CH_2Cl_2	1,8 x 10 ⁻³	5,2 x 10 ⁻³	46,8 x 10 ⁻³	< 0,01 %
	CHCl ₃	2 x 10 ⁻⁶	6 x 10 ⁻⁶	162 x 10 ⁻⁶	< 0,01 %
	COV	63,8 x 10 ⁻³	189,7 x 10 ⁻³	2,1	0,2 %
	CH_4	17,0	55,5	1165,5	99,8 %
	N ₂ O	179 x 10⁻ ⁶	603 x 10 ⁻⁶	0,2	< 0,01 %
Bioréacteur	CCl₃F	10 x 10 ⁻⁶	34 x 10 ⁻⁶	0,1 1167 ,	9 < 0,01 %
	CH_2Cl_2	1,7 x 10 ⁻³	5,7 x 10 ⁻³	51,3 x 10 ⁻³	< 0,01 %
	COV	53,5 x 10 ⁻³	180,2 x 10 ⁻³	2,0	0,2 %

Tableau 62 : Bilan GES pour les filières Conventionnelle et Bioréacteur

Pour les filières Conventionnelle et Bioréacteur, la production de méthane liée à la dégradation biologique de la matière organique représente plus de 99 % de la production de gaz à effet de serre. La production de N₂O ne compte que pour 0,1 % du bilan global de GES pour la filière Conventionnelle et est négligeable pour le Bioréacteur. Les très faibles émissions de composés CFC comme le CCl_3F (respectivement 93 et 10 mg.t_{DE}⁻¹) entrent en compte dans le bilan GES grâce à leur important PRG (4000 pour le CCl_3F). Etant donné que les déchets entrants sont les mêmes pour les deux filières et que c'est le potentiel de

Filières		Données PTB	Données enfouissement (kg.t _{DE} -1)		Total	PRG	Total	% total
		en kg.t _{DE} -1	brutes extrapolées		TOLAI	kg CO ₂ eq t_{DE}^{-1}		% totai
	CH_4	1,5	5,1	11,8	13,3	279,3	767,2 (PTB = 68%)	36,5 %
PTB1	N_2O	77 x 10 ⁻³	40 x 10 ⁻⁶	96 x 10 ⁻⁶	77 x 10 ⁻³	23,9		3,1 %
	CCl₃F	69 x 10 ⁻³	-	-	69 x 10 ⁻³	276,0		36,0 %
	CH_2Cl_2	1219 x 10 ⁻³	1,1 x 10 ⁻³	2,6 x 10 ⁻³	1,2	10,8		1,4 %
	CHCl ₃	3 x 10 ⁻³	-	-	3 x 10 ⁻³	81 x 10 ⁻³		< 0,01 %
	COV	16065 x 10 ⁻³	6 x 10 ⁻³	14 x 10 ⁻³	16,1	177,1		23,0 %
PTB2	CH_4	1,6	3,3		4,9	165,9		24,2 %
	N_2O	139 x 10 ⁻³	33 x 10 ⁻⁶		139 x 10 ⁻³	43,1		6,3 %
	$C_2Cl_2F_4$	-	4 x 10 ⁻⁶		4 x 10 ⁻⁶	37 x 10 ⁻³	(Q () A	< 0,01 %
	CCl₃F	69 x 10 ⁻³			69 x 10 ⁻³	276,0	000,4 (PTB = 81%)	40,2 %
	CH_2Cl_2	1349 x 10 ⁻³	280 x 10 ⁻⁶		1349 x 10 ⁻³	12,1	(1,8 %
	CHCl ₃	3 x 10 ⁻³	< 1 x 10 ⁻⁶		3 x 10 ⁻³	81 x 10 ⁻³		< 0,01 %
	COV	17192 x 10 ⁻³	3 >	< 10 ⁻³	17,2	189,2		27,5 %

production de méthane qui joue le rôle prédominant, les émissions de GES pour les deux filières, exprimées en kg eq. $CO_2 \cdot t_{DE}^{-1}$, sont similaires (respectivement 1170,2 et 1167,9).

Tableau 63 : Bilan GES pour les filières PTB1 et PTB2

Le bilan de production de GES pour les deux filières de PTB étudiées montre une situation très différente par rapport aux deux filières précédentes. La première différence qu'il convient de souligner réside dans la production totale de GES ramenée à la tonne de déchets entrants la filière qui est inférieure de 34 et 41 % respectivement pour la filière PTB 1 et PTB2 par rapport à la filière Conventionnelle. Cette différence atteint 79 et 89 % si seule la phase de stockage est considérée. Ceci met par ailleurs en évidence la contribution importante de l'étape du traitement biologique dans le bilan de GES surtout au travers de l'émission de CFC et des COV en général qui contribuent pour un peu plus de 60 et 69 % des émissions des filières PTB1 et PTB2. Les émissions de méthane ne comptent plus que pour 36 et 24 % des émissions de GES pour ces deux filières, le N₂O seulement pour 3 et 6 %.

Ces résultats ont deux implications, la première par rapport à l'importance de prendre en compte les émissions de composés organiques et plus particulièrement les CFC dont les PRG sont élevés. La seconde implication correspond à la nécessité d'éclaircir le rôle des COV dans le processus de réchauffement global pour avoir la possibilité de discriminer les composés ou familles de composés qui ne sont pas émis en quantité égale plutôt que d'utiliser un PRG global. Les chiffres ont montré que la valeur du PRG des COV peut jouer un rôle important dans le bilan des filières de prétraitement biologique avant enfouissement.

Pour conclure, il faut rappeler que ces chiffres ne correspondent qu'à la production directe des filières auxquelles il convient de confronter des scénarii de captage et de traitement à l'émission qui auront des impacts en général positifs sur les réelles émissions de GES.

I.1.3 : Nuisances olfactives générées par les trois filières de stockage

De la même manière que pour les émissions de gaz à effet de serre, la discussion qui suit n'a trait qu'à la source de nuisance olfactive sans prendre en compte les divers facteurs qu'il convient de considérer pour déterminer le réel impact de chacune des filières. Ces facteurs sont, entre autres : la configuration de la source d'émission (ponctuelle ou surfacique), l'environnement direct de la source qui influe sur la dispersion et l'abattement éventuel de l'odeur, les moyens de lutte ou de traitement spécifiques à chaque site et enfin la situation des populations impactées par rapport à la source. La prise en compte de tous ces paramètres sort cependant du domaine de la présente étude.

Afin de pouvoir comparer des chiffres, il convient de procéder à la même approximation que pour les GES, qui consiste à extrapoler les données relatives aux filières Conventionnelle, Bioréacteur et PTB1 à partir du biogaz déjà produit et du potentiel théorique. L'influence de l'extrapolation sur les données calculées peut être considérable pour les filières Conventionnelle et Bioréacteur pour lesquelles le H_2S joue un rôle important dans l'émission d'odeur. Il semble néanmoins difficile de proposer un scénario quant à l'évolution de la production de H_2S pour chacun des deux casiers et il apparaît alors plus raisonnable, même si l'erreur commise est importante, d'appliquer la règle d'extrapolation définie pour les gaz à effets de serre.

Les flux d'odeurs calculés, ramenés à la tonne de déchets entrants dans chacune des filières sont donnés dans le Tableau 64.

Filières	Témoin	Bioréacteur	PTB1	PTB2	
Flux d'odeur	1.94×10^{7}	4.00×10^{6}	2,76 x 10 ⁷	2,79 x 10 ⁷	
UO.t _{DE} ⁻¹	1,04 X 10	4,09 X 10	(PTB: 97,7 %)	(PTB: 99,5 %)	

Tableau 64 :	Nuisance ol	factive	générée	par les	filières	de	traitement
		,	3	p			

A l'échelle de la filière, les émissions d'odeur sont toutes, approximativement, du même ordre de grandeur. Il est possible de discuter quant à la validité du chiffre du Bioréacteur pour lequel une nette baisse de la production de H_2S et de l'intensité olfactive du biogaz dans les derniers mois du suivi a pu participer à une estimation (par extrapolation) plutôt faible du potentiel d'odeur de la filière.

Les chiffres mettent en évidence un impact significatif du prétraitement biologique avant enfouissement. Si la phase de stockage est considérée seule, le prétraitement biologique avant enfouissement induit une baisse significative de la production d'odeur (réduction de 97 et 99 % du flux d'odeur par rapport à la filière Conventionnelle pour les filières PTB1 et 2). Cette baisse peut trouver son explication dans deux phénomènes : le premier est la réduction du vecteur d'émission d'odeur que constitue le biogaz grâce à la stabilisation de la matière organique du déchet, le second est la nette réduction de la production de H₂S et des composés organiques odorants observée à la fois grâce aux flux émissifs (influencés par la réduction de production de biogaz) mais aussi avec les teneurs de ces différents composés dans le biogaz provenant des déchets prétraités. Celui-ci présente d'ailleurs, en moyenne, des intensités olfactives nettement inférieures au biogaz des autres casiers. Les moyennes des intensités olfactives des biogaz des différents casiers sont de : 41 731, 33 330, 12 405 et 8 023 UO.Nm⁻³ respectivement pour les casiers Témoin, Bioréacteur, PTB1 et 2.

Le dépôt des déchets, qui ne contribue pas au flux d'odeur à proprement parler (absence de biogaz) mais qui constitue un point important dans les problèmes de nuisances olfactives des centres de stockage (Christensen et al., 1996), est aussi impacté positivement par le prétraitement biologique. En effet, le potentiel de volatilisation de composés odorants qui est responsable de l'impact olfactif des alvéoles en exploitation (Chiriac, 2004a) est susceptible d'être considérablement réduit, comme tendent à le montrer les premières analyses de COV effectuées sur chaque casier. La moyenne des deux premières mesures effectuées sur les casiers PTB1 et 2 sont respectivement de 1018 mg.Nm⁻³ et 150 mg.Nm⁻³ contre 3252 et 11649 mg.Nm⁻³ pour les casiers Témoin et Bioréacteur.

Cette influence plutôt positive du PTB sur la phase d'enfouissement des déchets ne doit cependant pas cacher l'importante émission d'odeur lors du prétraitement biologique. Les flux d'odeur mesurés, équivalents à une concentration d'odeur moyenne de 5060 UO.Nm⁻³, conduisent à ne concevoir le traitement biologique que dans des lieux confinés pour lesquelles une canalisation et un traitement des effluents gazeux sont possibles.

Ce déplacement de la gestion du problème d'odeur sur une phase d'une durée réduite, durant laquelle il semble relativement aisé de « ponctualiser » la source d'odeur, apparaît intéressant pour régler le problème de nuisance olfactive dont souffrent les filières de traitement de déchets mais implique une contrainte technique et financière supplémentaire pour le traitement biologique. Ceci est confirmé par la tendance observée dans les pays germanophones, où d'importants moyens de traitement sont mis en place : lavage du NH₃, biofiltration et même post-traitement thermique des effluents (Cuhls, 2001).

I.1.4 : Emissions de COV

I.1.4.1 : Emissions de COV durant le prétraitement biologique

Les émissions de COV décrites au chapitre II.5.4 de la partie 3 représentent une quantité considérable de polluants organiques équivalente à plus de 14 kg $C.t_{DE}^{-1}$. Celles-ci sont très supérieures aux valeurs relevées dans la littérature allemande où les différents auteurs ont mis en évidence des flux émissifs de l'ordre de 0,2 - 1 kg.t_{DE}^{-1} (Fricke et al., 1997; Cuhls, 2001) et tout aussi supérieures aux valeurs relevées pour le compostage d'ordures ménagères (0,6 kg .t_{DE}^{-1}; Smet et al., 1999).

Certaines particularités du déchet et des conditions expérimentales peuvent permettre d'expliquer l'importance de ces valeurs.

La qualité du déchet entrant, tout d'abord, apparaît comme un paramètre clé d'autant que les composés organiques présents initialement dans le déchet (composés endogènes) semblent être la principale source pour les émissions gazeuses de COV (cf. prédominance des hydrocarbures aliphatiques et aromatiques). L'introduction dans le procédé biologique de la totalité du flux de déchet sans la séparation de la partie grossière, comme cela est pratiqué dans les unités de PTB allemandes, peut expliquer, en partie, les émissions. La fraction grossière, principalement composée de plastiques, papiers et cartons, est souillée lors de son mélange au sein de la matrice déchet. Cette fraction, qui ne présente pas un potentiel de dégradation important, offre peu de site d'adsorption des composés volatils et de larges surfaces de contact avec le flux gazeux qui favorisent leur volatilisation.

L'hétérogénéité du massif ainsi que sa granulométrie moyenne importante ne correspondent pas aux conditions optimales pour le développement d'un film microbien homogène propice à la dégradation des composés organiques et à la minéralisation totale de la matière organique (Bryers, 2000). Les ordures ménagères résiduelles sont en outre plus susceptibles de contenir des DTQD responsables du relargage de polluants organiques.

Les émissions peuvent aussi trouver leur explication dans les particularités du dispositif expérimental. En effet, la double couverture qui a permis la canalisation du flux gazeux a isolé thermiquement le massif de déchet en diminuant les pertes thermiques avec l'extérieur et a ainsi favorisé le phénomène de désorption/volatilisation des composés organiques présents dans le déchet.

L'absence d'échanges gazeux avec l'atmosphère environnant a sans doute accentué la charge polluante du flux gazeux lors des épisodes d'aération. De plus, la couche supérieure de l'andain, habituellement en contact avec l'air, peut habituellement constituer une couche oxydante supplémentaire agissant comme un biofiltre et permettant l'oxydation des composés organiques volatilisés au cœur du massif. La double couverture a sans doute réduit considérablement le gradient de concentration d'oxygène et le rôle de cette couche supérieure.

I.1.4.2 : Emissions de COV durant le stockage des déchets

Comme il a été montré dans la synthèse bibliographique, peu d'études ont été menées pour caractériser les flux émissifs de composés organiques volatils issus du stockage des ordures ménagères. Les résultats présentés dans la partie 3 mettent en évidence plusieurs points qu'il est intéressant de détailler.

Le premier point concerne la charge polluante du gaz au début du stockage. Pour les 4 casiers, c'est pour le déchet fraîchement enfoui que les concentrations en COV ont été les plus élevées (moyennes des deux premières mesures comprises entre 11649 et 150 mg.Nm⁻³ selon les casiers). Cette observation confirme les résultats de travaux antérieurs effectués en laboratoire (Ihnatolya, 2002 ; Cowie, 2004; Barlaz et al., 2004) ainsi que les mesures effectuées au bord des alvéoles de stockage (Chiriac, 2004a). Ceci met en avant que le déchet représente une source importante de composés organiques volatilisables dès la mise en décharge. Les déchets prétraités, qui présentent des concentrations initiales en COV plus faibles (respectivement 1018 et 150 mg.Nm⁻³ pour les déchets prétraités sommairement et les déchets stabilisés), semblent avoir une « réserve » de composés organiques volatilisables moindre.

Le second point a trait à la nette prédominance, quel que soit le casier de stockage concerné, des composés chlorés, des alcanes et des composés aromatiques. La prédominance de ces composés pour les casiers s'explique par la présence de résidus de peintures et autres solvants ou produits ménagers (cf. Tableau 2). La présence toujours très marquée de ces composés dans le biogaz des casiers PTB1 et PTB2 montre qu'en plus d'être présents sous des formes facilement volatilisables, ces composés semblent être profondément absorbés dans les déchets puisque ceux-ci les relarguent même après 25 semaines de traitement biologique au cours duquel les déchets ont été balayés par la soufflerie (5480 Nm^3 d'air par tonne de déchets traités) et où des émissions importantes ont été mesurées (18,6 kg.t_{DE}⁻¹ en 25 semaines de traitement). La limitation des transferts de composés organiques dans les ordures ménagères par les processus de diffusion a été décrite dans la littérature (Mitchell, 2005).

Les terpènes font partie des composés majoritaires dans le cas du stockage Conventionnel et du Bioréacteur et dans une moindre mesure pour les casiers PTB1 et 2. La production par les plantes de ces composés est relativement bien documentée dans la littérature et il n'est donc pas surprenant de les voir couramment identifiés dans le biogaz (Allen et al., 1997; Parker et al., 2002). Le processus d'émission de ces composés reste néanmoins singulier. Les déchets frais, malgré une teneur en végétaux relativement importante (14,5 % en masse humide), ne présentent pas d'importantes concentrations (inférieures à 1 % du total de COV mesuré). Les études relatant des émissions de terpènes de différents biens de consommation ou de produits alimentaires sont pourtant nombreuses (cf. III.3 de la partie 1). La cinétique de relargage des terpènes, présentée par les différents graphiques dans la partie 3 (Graphique 12, 17, 25 et 26 suivant les casiers), semble indiquer une concomitance avec l'activité biologique. Lerdau et al. (1997) ont montré que les plantes produisent des terpènes, via des cellules végétales dédiées, qui sont sécrétés dans des structures spéciales de stockage qui en minimisent la diffusion. Les travaux d'Isidorov et al. (2002) et de De Gouw et al. (1999) ont montré que la décomposition microbiologique et même le simple dessèchement du matériel végétal suffisait à libérer les composés volatils piégés dans ces structures. Cette action indirecte de la biodégradation peut expliquer le lien qui semble exister entre l'activité microbiologique et l'émission de terpènes. La question reste néanmoins entière en considérant les très faibles émissions de terpènes mesurées lors du traitement biologique (inférieures à 0,1 % des émissions totales de COV) qui présente pourtant les conditions propices pour la libération de ces composés. Ceci peut laisser supposer une dégradation des terpènes après leur libération, soit thermiquement du fait de leur faible stabilité thermique (Mc Graw et al., 1999), soit par les microorganismes (Misra et al., 1996).

Les émissions d'acides carboxyliques dans le biogaz sont peu documentées dans la littérature. Malgré un rôle majeur joué par ces composés en tant qu'intermédiaires de la réaction biologique anaérobie et une présence importante au sein de la matrice déchet lors de la phase d'acidogénèse, les émissions d'acides représentent moins de 0,1 % des émissions de COV mesurées sur les différents casiers de stockage. Cette observation est en accord avec les travaux de Cowie (2004) qui a montré qu'ils représentaient moins de 3 % des émissions totales de COV pour une ordure ménagère résiduelle ou quelles que soient les fractions du déchet considérées (déchets de cuisine, jardin, papiers/cartons).

Il existe un facteur 100 entre les flux émissifs de COV liés au stockage et au traitement biologique : 185 g.t_{DE}⁻¹ en moyenne selon l'estimation faite dans le Tableau 62 pour les filières Conventionnelle et Bioréacteur contre 18 613 g.t_{DE}⁻¹ pour le traitement biologique poussé. Une explication de cette forte disparité peut être proposée à partir d'une description qualitative des conditions qui prévalent dans le déchet pour ces deux modalités de traitement.

Les composés organiques contenus dans le déchet sont présents dans les différentes phases du déchet :

- adsorbés dans la phase solide,
- solubilisés dans la phase liquide aqueuse,
- présents sous forme liquide organique,
- volatilisés dans la phase gazeuse.

Les échanges entre les phases liquides et solides vers la phase gazeuse sont, dans le cas du PTB, accélérés par deux processus : d'une part, le renouvellement fréquent de la phase gazeuse engendré par l'aération du déchet, et, d'autre part, le dégagement de chaleur induit par l'activité des microorganismes aérobies qu'il est possible d'assimiler à une thermodésorption in situ des composés adsorbés sur la matrice solide. Ce dégagement de chaleur participe aussi localement à la volatilisation accrue des composés présents sous forme liquide organique, dont l'équilibre avec la phase gazeuse (matérialisé par la pression de vapeur saturante) dépend de la température. L'accélération des échanges entre les différentes phases et l'évacuation rapide des composés potentiellement biodégradables. Ceci réduit le rôle des microorganismes qui constituent le principal puits de composés organiques volatilisables.

Parallèlement, le milieu anaérobie peut être considéré comme plus stationnaire dans le sens où les équilibres entre les différentes phases sont beaucoup moins perturbés. La phase gazeuse n'évolue que par la création de CO_2 et de CH_4 , la chaleur dégagée par l'activité des microorganismes anaérobies est beaucoup plus faible que dans le cas du métabolisme aérobie (cf. Partie 1 - Chapitre I) et le régime d'écoulement au sein du massif peut être qualifié de moins turbulent, par analogie à la mécanique des fluides. Cette stabilité du milieu entraîne une production plus faible de gaz, vecteur des émissions, et augmente le temps de séjour des composés organiques dont la biodisponibilité est ainsi accrue.

I.1.4.3 : Analyse statistique sur la concentration des COV dans le biogaz

L'ACP présentée dans la Partie 3, chapitre V.2.1, a montré qu'il était possible de regrouper les familles chimiques en trois groupes suivant l'évolution de leurs concentrations dans les biogaz issus des 4 casiers de stockage. Ces trois groupes sont :

- les aromatiques, chlorés et les alcanes,
- les cétones, terpènes, alcools et esters
- les aldéhydes et les alcènes.

Le regroupement de ces familles de composés selon leurs concentrations dans le biogaz permet de supposer qu'il existe des similitudes au niveau des processus qui conduisent à leurs émissions.

Le premier groupe (aromatiques, chlorés, alcanes) est constitué par les trois familles chimiques identifiées dans les 4 casiers comme étant les composés majoritaires. Cependant, ce ne peut être la raison de leur regroupement car l'analyse en composantes principales permet de s'affranchir de la prédominance de certaines variables par rapport à d'autres, en effectuant un changement de variable sur les données préalablement normées. Les trois familles de COV ont par ailleurs été identifiées comme étant d'origine anthropogénique, donc déjà présentes, en l'état, dans le déchet et ne pouvant être les produits d'une activité biologique.

L'ACP permet ainsi de confirmer une similitude de leur processus d'émission respectif qui, d'après la bibliographie (Wilkins, 1994 ; Inhatolya, 2002 ; Cowie, 2004 ; Barlaz, 2004 ; Pierrucci et al., 2005) et les observations effectuées sur les déchets frais dans cette étude, semble être régi par le phénomène de volatilisation. La régression linéaire multiple (cf. Partie 3 ; V.2.2.4.b) a montré que la variation de conditions thermiques du déchet au cours de leur stockage ($20^{\circ}C - > 40^{\circ}C$ par rapport à $< 20^{\circ}C$) n'influençait pas les émissions de ce groupe de composés. La RLM montre clairement l'influence de l'activité biologique qui permet de réduire leurs concentrations dans le biogaz quel soit le stade de l'activité biologique considéré (Bio2, 3, 4, cf. Tableau 57). Ceci confirme la possibilité de biodégradation de ce type de composé mise en évidence par de nombreux travaux (Chaudhry et al., 1991 ; Wang et al., 1998 ; Zengler et al. 1999). La régression montre par ailleurs que le prétraitement des déchets a un impact négatif sur les émissions de ces composés lors du stockage par rapport à des déchets non prétraités alors que la recirculation ne présente pas une influence significative.

L'ACP met en évidence un second groupe formé par les alcools, esters, terpènes et cétones.

Les alcools et cétones sont des composés produits par voie biologique en conditions anaérobies (Cowie, 2004). Leur biodégradation en conditions anaérobies a par ailleurs été montrée. Ces composés sont aussi présents dans le déchet, comme le montre les différentes études menées sur les objets de consommation courante (cf. Partie 1 - Tableau 2), l'éthanol est susceptible d'être présent en quantité dans les déchets de boissons alcoolisées.

Il a été montré que les terpènes étaient présents initialement dans le déchet au travers notamment du matériel végétal mais aussi dans de nombreux produits pour lesquels ils sont utilisés comme agents de parfum (Chiriac, 2004a). La discussion dans le paragraphe I.1.4.2 a montré que leur libération pouvait être liée à la dégradation biologique des structures végétales qui les stockent. La biodégradation des terpènes est par ailleurs documentée (Misra et al., 1996).

La formation par voie biologique d'esters n'a pas été rapportée dans la littérature et ces composés ont été identifiés dans de nombreux produits de consommation (cf. Tableau 2). La production de ces composés par estérification entre les alcools et les acides carboxyliques (Scott et al., 1988) est une possible explication du regroupement de cette famille de composés avec les alcools. La réaction est catalysée par les H⁺ (Arnaud, 1990), fortement libérés lors de la production d'AGV (phase d'acidogénèse). L'ACP réalisée sur 13 familles chimiques (cf. Annexe 6) a de plus permis d'établir une distinction entre le comportement des cétones/terpènes et des alcools/esters au sein de ce groupe (cf. plan 2-3, Graphique 42).

La régression linéaire multiple réalisée sur les concentrations de ces familles dans le biogaz (cf. Partie 3 - V.2.2.4.c) a montré une influence importante de l'augmentation de la température sur les émissions de ce groupe de composés. La température est un des principaux facteurs cinétiques de l'activité microbiologique qui apparaît jouer un rôle direct sur les émissions des cétones, alcools et terpènes (production par voie biologique et biodégradation) et influencer indirectement la génération d'esters par la production des substrats nécessaires à la réaction d'estérification (alcools et acides). La température accélère par ailleurs l'atteinte de l'équilibre qui caractérise l'estérification (Arnaud, 1990). La régression a mis en évidence un impact neutre des facteurs biologiques définis pour cette étude (Bio 2, 3, 4, cf. Tableau 57). L'effet antagonique de l'activité biologique sur ces composés (production et dégradation) peut expliquer cette neutralité. De plus, l'influence des facteurs bio2, 3 et 4 est déterminée par rapport aux émissions d'un déchet qui ne présente pas d'activité biologique (Bio1, déchets frais). Or, les composés qui composent ce groupe sont aussi initialement présents dans le déchet.

La recirculation de lixiviat ne présente pas d'influence sur les émissions de ce groupe contrairement au prétraitement biologique qui montre que les émissions des déchets stabilisés sont réduites par rapport à un déchet non prétraité.

Il apparaît difficile d'expliquer la similitude dans le processus d'émission des alcènes et des aldéhydes mise en évidence par l'ACP. Les alcènes sont minoritaires quels que soient les casiers (entre 0,12 et 1,44 % des émissions). Les mêmes observations ont été effectuées par Cowie (2004). Ils peuvent être produits par des moisissures en aérobiose (Meruva et al., 2004) mais leur production par voie biologique n'a pas été mise en évidence dans des conditions anaérobies. L'étude des COV émis par des objets de consommation courante (cf. Tableau 2) n'a pas permis non plus d'identifier des sources potentielles d'alcènes. Il en va autrement des aldéhydes qui ont été détectés sur des papiers et cartons imprimés (Hansen et al., 2003) ou sur différents emballages composites (Ezquerro et al., 2002). La production d'aldéhydes par voie biologique a été montrée par Claeson et al. (2002). La régression linéaire multiple n'apporte pas d'informations complémentaires pour expliquer le résultat de l'ACP étant donné qu'il n'a pas été possible d'établir un modèle suffisamment robuste (R²=0,25) pour décrire l'évolution des concentrations en fonction des facteurs qualitatifs étudiés (cf. V.2.2.4.a).

Un des enseignements de l'analyse statistique des données est que les processus qui conduisent aux émissions de COV sont très complexes et que l'approche retenue (analyse par famille chimique, paramètres expérimentaux qualitatifs) pour cette étude ne semble pas suffire à expliquer les phénomènes bien qu'elle apporte un éclairage intéressant sur les composés qui forment les deux principaux groupes. L'analyse statistique des données en discriminant les composés à l'intérieur des familles chimiques et en utilisant des paramètres quantitatifs plutôt que qualitatifs pourrait apporter d'avantage d'informations.

I.2 : Effluents liquides

I.2.1 : Généralités

Le suivi du prétraitement biologique a permis de mettre en évidence une production de jus non négligeable (53 kg.t_{DE}⁻¹) et plutôt inhabituelle pour ce genre de procédé. Les facteurs qui ont conduit à cette production et les moyens qui auraient sans doute permis de la réduire ont été détaillés dans la présentation des résultats au chapitre II.4.1 de la partie 3, il n'apparaît donc pas nécessaire de revenir sur ce point dans la présente discussion.

Le processus de lixiviation est régi par deux principaux paramètres qui sont, d'une part, la stabilité de la matière organique contenue dans le déchet qui joue un rôle important dans la mobilisation des différents composés et, d'autre part, la quantité d'eau qui transite au travers du déchet et qui joue le rôle de vecteur du lessivage des déchets. Les conditions des 24 premiers mois de stockage dans le casier Témoin, avec l'absence d'entrée d'eau dans le massif, ont conduit à une absence atypique de lixiviats qui ne permet pas de comparer les flux de polluants par voie liquide des trois autres casiers à une référence qu'aurait constituée la filière Conventionnelle. Néanmoins, à partir des connaissances issues de la littérature et du suivi des casiers Bioréacteur, PTB1 et 2, il est possible de tirer plusieurs enseignements quant à l'impact de la recirculation, d'une part, et du prétraitement biologique, d'autre part, sur le comportement des déchets à la lixiviation.

Les bilans azotes des différentes filières, reportés dans le Tableau 53, montrent que, quelle que soit la filière, le stock d'azote mobilisable après 27, 30, ou 33 mois de stockage, suivant les déchets, est encore conséquent (entre 4,1 et 7,5 kg $N.t_{DE}^{-1}$). L'abattement de l'azote pour les filières Conventionnelle et Bioréacteur ne s'élève qu'à respectivement 4 et 6 % de l'azote initialement contenu dans le déchet. La perte d'azote lors de l'enfouissement se fait quasiment à 100 % sous forme liquide (Höring et al., 1999), et cela peut constituer un des facteurs limitants dans le processus de stabilisation d'un massif de déchet tel que défini par Barlaz et al. (2002). Le prétraitement biologique, qui est responsable de l'abattement de 26 et 47 % respectivement pour les déchets PTB1 et 2, joue un rôle important dans la réduction de la teneur en azote dans le déchet enfoui qui reste néanmoins conséquente (5,5 et 4,1 kg $N.t_{DE}^{-1}$). L'impact du prétraitement biologique sur le potentiel de lixiviation du déchet est discuté dans le chapitre 1.2.3.

I.2.2 : Influence de la recirculation sur la lixiviation des déchets enfouis

La comparaison des flux de polluants par voie liquide entre les différents casiers de stockage (cf. Tableau 51), au-delà de toutes les particularités liées à chaque filière (absence de lixiviats, colmatage), montre l'impact significatif de la recirculation sur le relargage des espèces polluantes. Les résultats ont par ailleurs montré l'impact significatif de la gestion des lixiviats dans le bilan des émissions de polluants par voie liquide, notamment la capacité de stockage insuffisante qui conduit à l'évacuation de lixiviat. Celle-ci compte pour 41 % en moyenne dans le bilan de la pollution relarguée pour les trois premières phases de recirculation.

Les flux importants de polluants organiques (2191 g.t_{MS}⁻¹ d'AGV et 7129 g O_2 .t_{MS}⁻¹ de DCO) mesurés lors de la première phase de recirculation (cf. Annexe 3) confirment l'influence de la stabilité du déchet et de la quantité d'eau qui transite au travers du massif sur le processus de lessivage. L'augmentation régulière de la charge polluante des lixiviats mesurée durant cette période, jusqu'à 93 g O_2 .L⁻¹ de DCO et une conductivité de 39,4 mS.cm⁻¹ au mois 20,7, confirme l'occurrence d'une accumulation des polluants au fur et à mesure de la recirculation. Celle-ci se produit lorsque l'activité biologique au sein du déchet est faible ou inexistante. La dégradation biologique peut, en effet, constituer une manière de contrer le phénomène d'accumulation, d'une part, en dégradant les molécules oxydables et, d'autre part, en modifiant les conditions physico-chimiques du milieu et indirectement la mobilité des polluants.

La matérialisation d'un équilibre de relargage atteint après environ 17 mois de stockage (cf. Tableau 37 : qualité du lixiviat entre les mois 16,6 et 20,7), est par ailleurs une parfaite illustration de l'influence de la qualité du lixiviat recirculé sur le phénomène de relargage, laquelle a déjà été mise en évidence par François (2004). En effet, le lixiviat atteint une composition d'équilibre avec le déchet frais qui minimise les échanges entre la matrice solide et la phase liquide. L'activité biologique semble alors elle-même inhibée à cause de la charge polluante de la phase liquide. Les concentrations en AGV et le pH $(AGV > 30 \text{ g.L}^{-1} \text{ et pH compris entre 6 et 6,2})$ présentent les signes les plus significatifs d'une inhibition selon les valeurs relevées dans la littérature (cf. Tableau 1). Le milieu apparaît en quelque sorte bloqué. La perturbation apportée au système par la dilution du lixiviat à réinjecter a montré qu'elle semblait être un moyen de défaire les équilibres. Il est possible de penser que la dilution successive des lixiviats ait permis la poursuite du lessivage du déchet (vraisemblablement dans la zone supérieure du massif) jusqu'à ce que la charge polluante de la phase liquide permette le développement d'une activité biologique significative. Le changement radical des conditions du milieu observé à partir du 21^{eme} mois de stockage (hausse du pH de 6,22 à 8,16 et réduction de 89 et 97 % de la DCO et des AGV) semble avoir été induit par un développement progressif de l'activité biologique matérialisé par une augmentation de la production de biogaz de 71 % entre les mois 19 et 24. Ce processus peut être qualifié de « cercle vertueux » puisque ce développement de l'activité biologique est accéléré par le changement des conditions du milieu, en particulier la réduction de la charge polluante de la phase liquide, qui se trouve être largement induite par les microorganismes.

L'impact négatif démontré d'une recirculation intensive sur un déchet jeune doit être pris en compte dans la définition d'une stratégie de recirculation pour le concept du Bioréacteur. Il convient, semble-t-il, de définir, pour chaque phase de dégradation du déchet, l'effluent liquide le mieux adapté aux objectifs qui doivent être définis au préalable. Une piste de développement serait peut être de définir une période d'humidification et de lessivage durant laquelle peu d'attention serait portée aux conditions physico-chimiques imposées au microorganismes. Cette phase préliminaire, semblable à un flushing, ferait ensuite place à une phase d'ensemencement du massif par une recirculation plus modérée de lixiviats âgés. Une fois la méthanogénèse installée durablement au sein du massif, il serait possible de recirculer les lixiviats jeunes (très chargés en pollution organique). Qi Wang et al. (2006) ont en effet montré la possibilité de dégrader un lixiviat présentant une importante charge organique en le recirculant sur un massif en méthanogénèse stable. Les auteurs n'ont cependant pas détaillé l'impact de cette pratique sur la production de biogaz qui mérite d'être étudié avant de l'envisager à plus grande échelle. La recirculation de lixiviats chargés sur un déchet stabilisé peut de plus aboutir à la fixation de polluants dans la phase solide comme le suggère François (2004).

I.2.3 : Influence du prétraitement biologique sur la lixiviation des déchets prétraités

Pour débuter la discussion de l'impact du prétraitement biologique sur le comportement à la lixiviation des déchets, il convient de rappeler que contrairement aux déchets prétraités allemands, dont certains auteurs soulignent la faible perméabilité, garante d'un relargage de pollution par voie liquide moindre (Höring et al., 1999 ; Scheelhaase, 2001), les déchets prétraités PTB1 et 2 présentent une perméabilité tout à fait similaire à un déchet brut et sont donc soumis aux mêmes infiltrations et phénomènes de lessivage. Les lixiviats issus des casiers PTB1 et PTB2 ont présenté rapidement les caractéristiques d'un lixiviat intermédiaire selon les critères définis par Millot (1986). En effet, après les premiers mois d'enfouissement, les lixiviats ont un pH supérieur à 7 et une DCO inférieure à 5000 mg O_2 .L⁻¹. Ces observations concordent avec la rapide mise en place de la méthanogénèse, indiquant une maturité avancée des déchets. L'absence d'une « phase acide », avec des lixiviats chargés en pollution organique biodégradable, a un impact positif en terme de flux émissifs pour les filières PTB. Cette absence a été montrée par diverses études sur les déchets prétraités (Leikam et al., 1997; Raninger et al., 1999; Cappai et al., 2005).

Le potentiel de relargage des déchets prétraités est, malgré tout, loin d'être négligeable. Des tests de lixiviation effectués sur les deux déchets prétraités avant leur mise en décharge (PTB1 et 2) (Morais et al., 2005 ; cf. Annexe 7) révèlent que la pollution carbonée oxydable dissoute (DCO de l'éluat) a été réduite de 76 et 82 %. La mobilité de l'azote Kjeldahl a été diminuée de 52 et 43 % respectivement pour les deux déchets. Les pourcentages importants d'abattement ne doivent cependant pas occulter un potentiel résiduel de relargage significatif du carbone comme de l'azote dont le processus et la cinétique appellent certaines interrogations.

Les flux de polluants par voie liquide observés sur les casiers PTB1 et PTB2 confirment un potentiel de lixiviation de la pollution carbonée encore significatif, le casier PTB1 a émis environ 3,4 kg $O_2.t_{MS}$ ⁻¹ de DCO, et 1,2 kg COT. t_{MS} ⁻¹. Les flux pour le casier PTB2 sont biaisés par le bilan hydrique anormal du casier mais le déchet PTB2 présente, d'après la composition des lixiviats, un potentiel de relargage légèrement plus faible. L'étude du comportement à la lixiviation (cf. Annexe 7) montre un impact positif du prétraitement biologique poussé par rapport au prétraitement sommaire (réduction de 42 et 26 % du potentiel de lixiviation de la DCO et du COT entre le PTB1 et PTB2).

Les essais de lixiviation en colonnes de Cappai et al. (2005), qui ont mis en évidence un relargage d'environ 20 et 25 kg.t_{MS}⁻¹ de DCO pour des déchets prétraités 8 et 15 semaines, confirment les observations effectuées sur les casiers. Les valeurs élevées sont expliquées par les flux de lessivage importants appliqués aux déchets (3,2 m³.t_{MS}⁻¹). Ces travaux montrent par ailleurs la lente cinétique de relargage de la pollution carbonée puisque la DCO dans les lixiviats se maintient supérieure à 1000 mg O₂.L⁻¹ jusqu'à un taux de lessivage de 3 m³.t_{MS}⁻¹. Les résultats de la caractérisation du potentiel de lixiviation après incubation des déchets en condition de stockage anaérobie (Morais et al., 2006 ; cf. Annexe 7) ont montré une réduction de 49 % du relargage de la DCO par rapport au déchet enfoui pour le déchet PTB1 mais une augmentation du relargage de la DCO de 5 % pour le PTB2, montrant une poursuite potentielle du phénomène de lessivage bien après la fin de la phase active (phase de production de biogaz).

Le pollution carbonée a par ailleurs la caractéristique d'être réfractaire à la biodégradation (Capai et al., 2005) puisque composée d'une part importante de macromolécules humifiées (Berthe, 2006). La faible biodégradabilité des lixiviats a par ailleurs été mise en évidence par la baisse du ratio DBO₅/DCO tout au long du suivi des casiers PTB1 et PTB2.

L'étude des bilans sur l'azote a montré que le stock d'azote dans les déchets prétraités PTB1 et 2 était encore conséquent (respectivement 74 et 53 % de l'azote initial). La

qualité des lixiviats, qui indique des concentrations croissantes d'azote total au cours de l'enfouissement, montre que l'azote mobilisable est majoritairement minéral sous forme ammoniacale. Cette observation est en accord avec les nombreuses études entreprises sur les déchets prétraités (Höring et al., 1999 ; Lorber et al., 2001 ; Cappai et al., 2005).

Les tests de lixiviation en colonnes réalisés par Cappai et al. (2005) sur des déchets prétraités confirment la lenteur du processus de relargage de l'azote ammoniacal puisque des taux de lixiviation d'environ 3,2 et 2,0 m³.t_{MS}⁻¹ sont nécessaires, pour des déchets prétraités 8 et 15 semaines, pour atteindre un plateau à environ 960 et 600 g N-NH₄⁺.t_{MS}⁻¹. L'atteinte de ces taux de lixiviation peut, dans les conditions réelles, prendre plusieurs centaines d'années suivant les sites et le taux d'infiltration (Ehrig, 1988).

Il existe dans la littérature différentes études (Ziegler et al., 1997 ; Cappai et al., 2005) qui mettent en évidence, au cours du prétraitement biologique, une possible fixation de l'azote ammoniacal sous forme d' « azote humique » qui serait responsable d'une réduction de la mobilité de l'azote en plus de la diminution du stock d'azote engendrée par les pertes par voie gazeuse lors du prétraitement. Cette hypothèse ne s'appuie cependant que sur des observations incomplètes (défauts de bilan qui empêchent de conclure) et des analogies peu robustes avec la science du sol. Ce phénomène mérite cependant d'être éclairci avec un bilan complet sur l'azote d'un déchet tout au long de la filière avec le suivi des différents compartiments de l'azote, ainsi que l'étude, si la fixation est avérée, de la stabilité à long terme de cette forme de l'azote.

I.3 : Comportement géomécanique des déchets dans les casiers de stockage

Le suivi des tassements dans les quatre casiers en parallèle des paramètres bio-physicochimiques propres à chaque massif a permis de mettre en évidence plusieurs points.

Le premier est relatif à l'influence de la température sur le tassement. Bien que non documentées dans la littérature, les données expérimentales mettent en évidence une accélération de la déformation des massifs qui concorde avec la date de la remontée en température du déchet suite à la mise en place du compost isolant. Cette accélération est visible sur les graphiques 14, 20 et 28 au mois 15 pour les casiers Bioréacteur et Témoin, au 12^{eme} mois pour le PTB1 et au mois 9 pour le PTB2. Le lien avec la température est plus discutable pour les casiers PTB1 et 2 pour lesquels la remontée en température coïncide avec une accélération du processus biologique et du transfert de matière vers la phase gazeuse. C'est néanmoins pour ces deux casiers que le phénomène est le plus accentué. La température est par contre complètement découplée des autres paramètres pour les casiers Témoin et Bioréacteur qui ne présentaient à cette date pas d'activité biologique significative ni un flux hydrique important (période de drainage pour le Bioréacteur et absence de simulation de pluie pour le casier Témoin). L'influence de la température sur le tassement n'a jamais été étudiée sans doute à cause de l'inertie thermique d'un massif de déchet qui ne subit pas, en conditions réelles, de tels gradients de température. Cette relation ne reste qu'une hypothèse qu'il conviendrait d'étudier en découplant les différents paramètres qui agissent sur le tassement. Il est néanmoins possible de penser que l'augmentation de la température du massif entraîne une diminution de la viscosité générale du matériau et en particulier de l'eau, dont la viscosité diminue de moitié entre 20 et 50°C. Les contacts entre particules deviennent alors plus glissants et confèrent à la structure un caractère plus instable. Le rôle de l'eau est confirmé par le fait que les deux casiers PTB sont ceux qui présentent l'humidité et la hausse de température la plus importante et inversement, que le casier Témoin est celui qui présente l'humidité la plus basse et la hausse de température la moins significative.

Le second point intéressant est la corrélation entre le tassement du massif et la perte de masse sèche qui résulte de la dégradation biologique du déchet. Si le tassement du déchet n'était le résultat que de l'action biochimique des microorganismes par le transfert de matière vers la phase gazeuse, il y aurait alors une parfaite corrélation entre l'évolution de l'état de dégradation du déchet et le tassement relatif de celui-ci. Ce n'est naturellement pas le cas puisque l'action biochimique a pour première conséquence l'effondrement des vides interparticulaires (Olivier, 2004). Il est cependant intéressant de mesurer l'impact de ce transfert de matière (perte de masse sèche) sur le tassement, ou, en d'autre terme, d'estimer le ratio de la perte de masse sèche sur le tassement relatif (tassement rapporté à la hauteur initiale de déchet). Pour ce faire, il convient de prendre en compte le tassement seulement à partir du début de la dégradation sans tenir compte du tassement primaire qui ne dépend que du poids propre du massif (à partir des mois 6, 4, et 4 respectivement pour le Bioréacteur, PTB1 et PTB2). Sur cette base, la perte de masse sèche représente en fin d'essai entre 22 et 46 % du tassement survenu au cours de la même période (respectivement 45,8 % pour le Bioréacteur, 22,5 % et 36,1 % pour les casiers PTB1 et PTB2). Ces chiffres confirment le rôle majoritaire des phénomènes d'effondrement et de migration des particules fines dans les tassements. Ceci doit être considéré avec précaution, la part relative de la perte de masse dans le phénomène de tassement dépendant probablement de la mise en place du déchet et du niveau de compactage initial ainsi que de la définition de la période de tassement primaire qui reste assez subjective. Ces résultats restent néanmoins intéressants puisqu'il est rare d'être en mesure d'évaluer en continu au cours d'un essai la part relative de la perte de masse dans les tassements. Ils justifient, par ailleurs, la retenue de certains auteurs (Olivier, 2004) vis à vis des modèles qui ne considèrent que la perte de masse sèche pour expliquer les tassements. S'agissant enfin du casier Témoin, ce dernier n'a pas été considéré comme significatif du fait du caractère exponentiel plutôt atypique de la perte de masse subie par le massif.

Le troisième point a trait à l'influence du broyage et du traitement biologique sur le tassement relatif des massifs de déchet. Pour le broyage, il est intéressant de constater la différence de densité sèche initiale du casier Bioréacteur qui est de 25 % plus importante que celle obtenue dans le casier Témoin (respectivement 0,426 et 0,342 t.m⁻³). Cet écart, qui résulte du broyage subi par les déchets du Bioréacteur, s'est maintenu tout au long des 34 mois de stockage puisqu'en fin d'essai l'écart relatif est rigoureusement le même, avec des densités sèches de 0,564 et 0,438 t.m⁻³. Ceci indique qu'il n'y a pas eu de rattrapage au cours du temps du gain de densité initialement apporté par le broyage. Seul le flux hydrique au travers du déchet diffère réellement entre les deux casiers, puisque le Bioréacteur a connu un flux hydrique, ramené à la tonne de déchets entrants, 4,5 fois plus élevé que le casier Témoin. Cette différence pourrait expliquer en partie l'écart entre les densités sèches puisque la circulation du lixiviat au travers du massif peut être responsable

de la migration des particules fines dans les macropores par entraînement et donc de l'accélération du phénomène de tassement (Olivier, 2004).

L'influence du broyage, cumulé au prétraitement biologique, peut être abordée en analysant les données issues des casiers PTB1 et PTB2. Contrairement aux idées reçues qui associent prétraitement biologique à des densités de placement élevées (Binner, 2002), le cas du traitement de l'intégralité du flux de déchet sans séparation de matériaux n'aboutit pas à des densités de placement importantes. La densité sèche initiale obtenue pour les deux casiers PTB est similaire (0,345 et 0,336 t.m⁻³ pour les casiers PTB1 et PTB2) mais très inférieure à la densité obtenue pour le casier Bioréacteur. Il est possible de penser qu'en favorisant la dégradation biologique, le prétraitement enlève au déchet une composante qui joue un rôle important dans la densité globale d'un déchet : la matière organique. De plus, contrairement à la méthode allemande de PTB avant enfouissement, qui aboutit à un déchet qui présente l'aspect d'une matrice terreuse, les déchets PTB1 et PTB2 ont conservé les principaux éléments structurants qui assurent au massif sa « cohésion de fibre » (Olivier, 2004) mais aussi son élasticité, à savoir : les plastiques et dans une moindre mesure les papiers/cartons. Ceci peut expliquer la faible densité de placement des déchets prétraités malgré le broyage. Le prétraitement biologique a néanmoins un effet sur le tassement du déchet une fois enfoui. En effet, la réduction de l'activité biologique se traduit par un effondrement moindre (Scheelhaase et al., 2001b). De plus, la meilleure homogénéité du déchet (meilleure distribution des macropores au sein du massif) devrait garantir une réduction des tassements différentiels qui sont très problématiques sur les CSD (endommagement des ouvrages de dégazage et de récupération de lixiviats, des couvertures argileuses).

Le vide de fouille (capacité de stockage) gagné grâce au broyage et au traitement biologique des déchets peut être évalué en comparant le volume occupé par une tonne de déchet brut (casier Témoin) avec celui occupé par une tonne de déchet broyé (casier Bioréacteur) et l'équivalent d'une tonne de déchet broyé et prétraité (c'est-à-dire en tenant compte de la perte de masse humide liée au PTB). Les volumes correspondant à chacune des 4 filières sont présentés dans la Figure 38.

Le gain de vide de fouille à l'enfouissement apporté par le broyage des déchets est de 20 %. Les prétraitements biologiques de 12 et 25 semaines apportent un gain supplémentaire de 9 et 17 % pour atteindre respectivement 29 et 37 % par rapport à l'enfouissement d'une tonne de déchets bruts (ces valeurs sont dépendantes de la méthode de chargement et de compactage du déchet). L'influence des filières PTB étudiées par rapport à la filière Conventionnelle est faible par rapport aux gains de vide de fouille rapportés dans la littérature allemande qui vont jusqu'à 77 % principalement du fait de la séparation d'environ 50 % du flux à l'entrée du traitement biologique et d'une densité de placement très supérieure (jusqu'à 1,3 t.m⁻³) (Binner, 2002). En considérant le volume occupé par une tonne de déchet entrant la filière (ou équivalent) après respectivement 27, 30 et 34 mois de stockage, les conclusions sont différentes. En effet, le tassement observé dans les différents casiers entraîne une réduction des écarts entre les filières, le déchet Bioréacteur présentant un volume massique (volume pour 1 tonne de déchet enfoui) inférieur au déchet PTB1 et peu différent de celui du PTB2 (1,18 m³.t_{DE}⁻¹ pour le PTB1 et PTB2).



Figure 38 : Gain de vide de fouille à l'enfouissement pour 1 tonne de déchet entrant

Enfin, la perméabilité des déchets prétraités est, à priori, très différente de celle des déchets prétraités allemands pour lesquels un problème de perméabilité aux gaz se pose en cas de nécessité d'un captage du potentiel de biogaz résiduel. Comme il a été rappelé, le déchet prétraités conserve ses éléments structurants qui lui assurent une perméabilité sans doute supérieure à celle d'un déchet brut broyé, du fait de la nette réduction de la matière organique putrescible qui contribue peu aux transferts dans le déchet. Ce point n'apparaît donc pas limitant pour envisager un réseau de captage temporaire ou à l'avancement.

CONCLUSION ET PERSPECTIVES

CONCLUSION ET PERSPECTIVES

La mise en place et le suivi d'une expérimentation à l'échelle semi industrielle a permis l'étude et la comparaison du comportement des ordures ménagères suivant trois scénarii de traitement : le stockage Conventionnel, le stockage en mode Bioréacteur et le prétraitement biologique avant enfouissement.

Les flux émissifs des polluants sous forme liquide ou gazeuse ont été déterminés et ont abouti à l'établissement de bilans matières (bilan hydrique, bilan de masse, bilan carbone, bilan azote). De plus, l'étude en parallèle des trois filières à partir du même gisement initial a permis leur comparaison sur des bases communes.

L'étude d'un procédé de prétraitement biologique avant enfouissement simple et peu coûteux mis en œuvre sur la totalité du flux de déchet a prouvé son efficacité dans la réduction des émissions de biogaz lors du stockage des déchets prétraités. La comparaison de deux modalités de prétraitement (prétraitement sommaire et poussé) a cependant montré que l'arrêt prématuré de la stabilisation biologique pouvait avoir des conséquences contre-productives, engendrer notamment un allongement de la phase active de la décharge (7,5 ans pour le déchet prétraité sommairement contre environ 2 ans pour le déchet stabilisé). L'intensité du traitement, qui dépend particulièrement de sa technicité et de la composition du déchet entrant, détermine la durée de traitement nécessaire pour atteindre les objectifs de stabilité définis pour le stockage des déchets prétraités. La durée du traitement est aussi proportionnelle aux dépenses énergétiques et aux émissions associées au traitement. Il existe donc un compromis environnemental, mais aussi économique qu'il est possible de déterminer en agrégeant aux scénarios techniques les émissions et les coûts liés aux différentes étapes de la filière. Les résultats issus du présent travail seront une source de données pour des études de type ACV. Le suivi du biogaz issu des casiers ayant recu les déchets prétraités a montré une absence des premières phases habituellement observées sur un déchet brut. La mise en place précoce de la méthanogénèse est caractérisée par une progression rapide de la qualité du biogaz dès la phase d'enfouissement et l'obtention d'une production maximale de biogaz quelques mois après l'observation des premières traces de méthane. Un ralentissement de la production a ensuite été observé pour les deux déchets prétraités, marquant clairement deux cinétiques de production distinctes. L'effet de la recirculation de lixiviats sur la production de biogaz n'a pu être observé clairement, principalement à cause de la durée limitée du suivi des casiers ainsi que la singularité du casier Témoin dont le comportement a été perturbé par l'absence de simulation de pluie.

Le suivi des émissions liquides des déchets en condition de stockage a permis d'établir des flux émissifs pour chacune des filières par rapport à la tonne de déchets entrants. Les problèmes techniques rencontrés sur le casier Témoin n'ont pas rendu possible l'observation de lixiviats durant les 24 premiers mois, compromettant la possibilité de comparer les autres filières à la filière Conventionnelle.

La recirculation pratiquée sur le casier Bioréacteur a permis de montrer l'occurrence d'une accumulation de polluants lorsque celle-ci était mise en œuvre sur le déchet jeune. La dilution des lixiviats avant recirculation est apparue appropriée pour permettre le développement de l'activité biologique et d'une production de biogaz soutenue.

Le suivi des casiers de stockage des déchets prétraités a montré que la stabilisation avant enfouissement entraînait une réduction de la charge polluante du lixiviat du fait de l'absence de la phase initiale de la biodégradation (acidogénèse) caractérisée par un lessivage important de la pollution carbonée facilement biodégradable. Cependant, le comportement à la lixiviation du déchet indique un relargage de l'azote sous forme minérale (NH₄⁺) et du carbone sous forme d'une pollution réfractaire à la biodégradation. La poursuite du suivi des casiers devrait permettre d'éclaircir les questions qui subsistent sur le comportement à long terme des déchets prétraités.

Le travail de thèse a largement porté sur les émissions de COV durant les différentes étapes des filières étudiées, avec en premier lieu une étude sur l'analyse de ce type de composé dans des matrices complexes (effluent gazeux de traitement aérobie ou biogaz). La comparaison de deux méthodes couramment utilisées pour l'analyse de composés à l'état de trace (adsorption sur Tenax ou charbon actif avant analyse GC/MS) a permis de mettre en évidence la complémentarité de ces deux techniques ainsi que des possibles disfonctionnements liés à la matrice à analyser (large gamme de composés et de concentrations, humidité élevée, forte concentration de CO_2).

L'étude des émissions de COV a permis de conduire une réflexion sur les mécanismes de genèse de ces composés ainsi que les processus qui mènent à leur émission. L'identification de composés xénobiotiques (hydrocarbures, composés chlorés), initialement présents dans le déchet, ainsi que de composés dont les processus d'émissions semblent d'avantage liés à l'activité des microorganismes (cétones, alcools, terpènes) a été étayée par une analyse statistique des concentrations de ces familles chimiques dans les biogaz issus des casiers de stockage.

Un approfondissement de la compréhension des phénomènes d'émission peut être opéré par l'affinage de l'analyse statistique en discriminant des composés dans l'analyse, en considérant quantitativement les paramètres liés aux conditions expérimentales et en introduisant des caractéristiques physiques des composés (point d'ébullition, masse molaire, polarité). L'identification de la volatilisation des composés endogènes comme source principale d'émission ne pourra être confirmée qu'en développant un protocole permettant d'évaluer le potentiel de composés organiques volatilisables d'un déchet, tout comme il est déterminé un potentiel méthanogène ou un potentiel à la lixiviation. Il est possible d'imaginer, par analogie au comportement à la lixiviation, un test de volatilisation soit en batch avec mise à l'équilibre du déchet avec une phase gazeuse ou soit un protocole de stripping dynamique, ceci, bien sûr, en contrôlant les paramètres clés du phénomène (température, activité biologique, temps de contact, flux du gaz vecteur). Il

sera possible avec un tel test de déterminer l'influence de la composition ou d'un prétraitement sur le potentiel émissif du déchet.

Le rôle de l'activité biologique, en particulier, son effet antagonique sur les émissions, doit être étudié en découplant les facteurs clés qui régissent le phénomène. Ceci ne pourra être réalisé que par des expérimentations de tailles réduites, répétables, dans un premier temps sur une matière organique bien connue (type cellulose), en ayant recours par exemple au traçage radioactif du carbone organique pour identifier les voies d'émissions empruntées (volatilisation directe, volatilisation après minéralisation incomplète ou minéralisation).

La détermination des flux gazeux pour chacune des filières dans leur ensemble a permis d'identifier le rôle important joué par les COV (en particulier les CFC) et par le N_2O dans le bilan des gaz à effet de serre des filières de prétraitement biologique avant enfouissement par rapport aux filières Conventionnelle et Bioréacteur. Les flux de COV ont par ailleurs permis de mettre en évidence des composés qui sont connus pour avoir un impact potentiel sur la santé. Les émissions de COV particulièrement importantes mesurées durant le PTB doivent être confirmées par des expérimentations en pilotes permettant la conduite de réplicats et le test de différentes modalités de traitement pour comprendre les facteurs qui ont conduit à de telles émissions. Cette compréhension passera par une meilleure définition conceptuelle du processus d'émission. Les flux d'odeurs, déterminés par le suivi de l'intensité olfactive des effluents gazeux, ont montré l'impact significatif du prétraitement biologique, d'une part, sur la génération de nuisances olfactives et, d'autre part, sur la réduction de la nuisance générée lors de la phase de stockage des déchets prétraités. Il apparaît, à partir des données mesurées, que la recirculation de lixiviat ne semble pas avoir d'impact sur la génération d'odeurs. Les flux de COV et les espèces émises entre les filières Conventionnelle et Bioréacteur sont similaires et il semble que ce soit le potentiel du déchet à former plus ou moins du H_2S durant sa dégradation qui puisse expliquer la différence mise en évidence entre les deux filières.

REFERENCES

Références :

AbfAblV Verordnung über die umweltverträgliche Ablagerung von Siedlungsabfällen und über biologische Abfallbehandlungsanlagen vom 20. Fundstelle : BGBI I 2001 : 305, Deutschland, 16 p., 2001

ADANI F., TAMBONE F., GOTTI A. Biostabilisation of municipal solid waste. Waste Management, 24 (8), pp. 775-783, 2004

ADEME Etat des lieux et perspectives de la collecte et du traitement des déchets dangereux en quantités dispersées en France. Rapport final, 115 p., 2004.

ADEME Les déchets en chiffres. Direction des sols, Angers, décembre 2005.

ADEME Note de synthèse du programme de recherche sur la gestion des installations de stockage de DMA en Bioréacteur. Juillet 2006, 13 p., 2006.

ADIB R. Le MBT en Allemagne & Autriche, Rapport d'avancement CRPE/ADEME, non publié, 2005.

AGUILAR-JUAREZ O. Analyse et modélisation des réactions biologiques aérobies au cours de la phase d'exploitation d'un casier d'un CET. Thèse de doctorat, Toulouse : INSA de Toulouse, 233p., 2000.

ALLEN M. R., BRAITHWAITE A., HILLS C. Analysis of the trace organic compounds in landfill gas using automated thermal desorption gas chromatography-mass spectroscopy. International Journal of Analytical Chemistry, 62, pp. 43-52, 1996.

ALLEN M. R., BRAITHWAITE A., HILLS C. Trace organic compounds in landfill gas at seven U. K. landfill waste disposal sites. Environmental Science and Technology, 31(4), pp. 1054-1061, 1997.

ANGERER T., HÄUSLER G., HANUS-ILNAR K. Abluftemissionen der MBA - Anlage Siggerwiesen. Berichte BE - 138 des Österreichischen Umweltbundesamtes, 1998.

ANGERER T., HÄUSLER G., HANUS-ILNAR K. Abluftemissionen der MBA - pilotanlage Kurfstein. Berichte BE - 126 des Österreichischen Umweltbundesamtes, 1999a.

ANGERER T., HÄUSLER G., HANUS-ILNAR K. Abluftemissionen der MBA - Anlage Allerheiligen. Berichte BE - 139 des Österreichischen Umweltbundesamtes, 1999b.

ARAGNO, M. The Landfill Ecosystem : A microbiologist's look inside a black box. P. Baccini Editions, Swiss Workshop on land disposal of solid waste, Gerzensee : Springer Verlag, 1988.

ARAN C. Modélisation des écoulements de fluides et des transferts de chaleur au sein des déchets ménagers. Application à la réinjection de lixiviat dans un centre de stockage. Thèse de doctorat, Toulouse : Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse, 247 p., 2001.

ARNAUD P. Cours en chimie organique, 15^e édition. Eds Dunod, Paris, 505 p., 1990.

ASTM Annual book of ASTM standards, 11.03 Atmospheric Analysis, Occupational Health and safety. D 3687-89, Philadelphia, USA, 1991.

AUGENSTEIN D., YAZDANI R., KIEFFER J., BENEMANN J. Yolo County, California controlled landfill program: a summary of results since 1994. Proc. Sardinia 05, 10th International Landfill Symposium, Cagliary, CD ROM, 2005.

AYUSO M, PASCUAL J. A., GARCIA C, HERNANDEZ T. Evaluation of urban wastes for agricultural use. Soil science and plant nutrition, 42(1), pp. 105-111, 1996.

BARDOS P. Composting of mechanically segregated fraction of municipal solid waste - a review. r3 Environmental Technology Limited. SITA Environmental Trust, 143p., 2004.

BARLAZ M. A., MILKE M. W., HAM R. K. Gas production parameters in sanitary landfill simulators. Waste Management and Research, vol. 5, p.27, 1987.

BARLAZ M. A., HAM R. K., SCHAEFER D. M. Journal of environmental engineering, ASCE, 115(6), pp. 1088-1102, 1989a.

BARLAZ M. A., SCHAEFER D. M., HAM R. K. Bacterial population development and chemical characteristics of refuse decomposition in a simulated sanitary landfill. Applied Environmental Microbiology, 55(1), pp. 55-65, 1989b.

BARLAZ M. A., HAM R. K., SCHAEFER D. M. Methane production form municipal refuse : a refuse review of enhancement techniques and microbial dynamics. Critical reviews in Environmental Control, CRC Press, Vol. 19, n°6, pp. 557-584, 1990.

BARLAZ M. A., HAM R. K. Leachate and gas generation. Geotechnical practice for waste disposal, Chap. 6, D. E. Daniel, Chapman & Hall, London, pp. 113-136, 1993.

BARLAZ M. A. Microbiology of solid waste landfill. Microbiology of solid waste. Boca Raton : CRC Press, pp. 31-70, 1996.

BARLAZ M. A., ROOKER A. P., KJELDSEN P., GABR M. A., BORDEN R. C. Critical evaluation of factors required to terminate the post closure monitoring period at solid waste landfills. Environmental Science and Technology, 36, pp. 3457-3465, 2002.

BARLAZ M. A., COWIE S. J., STALEY B., HATER G. R. Production of non-methane organic compounds (NMOC) during the decomposition of refuse and individual waste components under various operating conditions. SWANA Landfill Symposium, June 21-24, Monterey, CA, 2004.

BECK-FRIIS B., PELL M., SONESSON U., JÖNSSON H., KIRCHMANN H. Formation and emission of N_2O and CH_4 from compost heaps of organic household waste. Environmental Monitoring and assessment, 62, pp. 317-331, 2000.

BECK-FRIIS B., SMARS S., JÖNSSON H., KIRCHMANN H. Gaseous emissions of carbon dioxide, ammonia and nitrous oxide from organic household waste in a compost reactor under different temperature regimes. Journal of agriculture engineering and research, 78(4), pp. 423-430, 2001.

BELIVI H., BACCINI P. longterm behaviour of municipal solid waste landfills. Waste management and research, 7, pp. 43 - 52, 1989.

BENSON C. H., BARLAZ M. A., LANE D. T., RAWE J. M. State of the practice reviews of bioreactor landfills. USEPA Report, Hackensack, USA, 92 p., 2005.

BEREZKIN V. G., DRUGOV, Y. S. Gas chromatography in air pollution analysis. Journal of chromatography library, vol. 49, 211 p., 1991.

BERTHE C., REDON E., FEUILLADE G. Fractionation of the organic matter contained in leachate resulting form two modes of landfilling : leachate recirculation and mechanical and biological pre-treatment. Proc. of 4th International Landfill Research Symposium, Lulea University, 242 p., 2006.

BINNER E., ZACH A. Biological reactivity of residual wastes in dependence of the pretreatment. Waste management and research, 17, pp. 543 - 552, 1999.

BINNER E. The impact of mechanical biological pretreatment on the landfill behaviour of solid wastes. Workshop on Biowaste, 8-10 avril 2002, Bruxelles, 2002. (En ligne www.boku.ac.at/abf)

BINNER E., KITZBERGER K. Conditions / parameters characterising the composting process. Proc. Sardinia 03, 9th International Landfill Symposium, Cagliary, CD-ROM, 2003.

BOCKREIS A., STEINBERG I., ROHDE C., JAGER J. Gaseous emissions of mechanicallybiologically pretreated waste from long-term experiment. Proc. Sardinia 03, 9th International Landfill Symposium, CD-ROM, Cagliary, 2003.

BOCKREIS A., STEINBERG I. Emissionen mechanisch-biologisch behandelter Abfälle bei der Deponierung - eine Bilanz aus Langzeitversuchen. Proc. Abfallforschungstage 2004, Kuehle-Weidemeier M., Göttingen, Allemagne, 2004.

BOCKREIS A., STEINBERG I. Comparison of different sampling methods on area sources. Proc. Sardinia 05, 10th International Landfill Symposium, CD-ROM, Cagliary, 2005.

BOGNER, J., K. SPOKAS, L. NIEMANN, M. NIEMANN, J. BAKER Emissions of Non-methane organic compounds at an Illinois landfill: preliminary field measurements. Proc. Sardinia 97, 6th International Landfill Symposium, Cagliary, 1997.

BOGNER J. Global methane emissions from landfills : new methodology and annual estimates : 1980 - 1996. Global Biogeochemical cycles, 17(2), pp. 1065-1083, 2003.

BOOKTER T. J., HAM R. K. Stabilisations of solid waste in landfills. Journal of Environmental Engineering Division, vol. 108, pp. 1089-1100, 1982.

BORJESSON T., STOLLMAN U., ADAMEK P., KASPERSSON A. Analysis of volatile compounds for detection of molds in stored cereals. Cereal chemistry, 66, pp. 300-304, 1989.

BORJESSON T., STOLLMAN U., SCHNURER J. Volatile metabolites and other indicators of penicillium aurantiogreseum growth on different substrate. Applied environmental microbiology, 56, pp. 3705-3710, 1990.

BORJESSON T., STOLLMAN U., SCHNURER J. Volatile metabolites produced by six fungal species compared with other indicator of fungal growth on cereal grains. Applied and environmental microbiology, 58(8), pp. 2599-2605, 1992.

BOUCHEZ T., BODE FLANDROIS S., MUNOZ M. L., MOREAU Y., BORDIER C., DUQUENNOI C. Consequences of leachate concentrate injection into municipal solid waste. Proc. Sardinia 01, 8th International Landfill Symposium, Cagliary, Vol. 1, pp 133-142, 2001.

BROOKS B. I., YOUNG P. J. The development of sampling and gas chromatography-mass spectrometry analytical procedure to identify and determine the minor organic compounds of landfill gas. Talanta, 30(9), pp. 665-679, 1983.

BRUMBACH M., SIDAINE J.-M. : Procédés de pré-traitement mécanique et biologique avant enfouissement. Universität Stuttgart, pour le compte du CRPE, non publié, Stuggart, 135 p., 1996.

BRYERS J. D. Biofilms II : Process analysis and applications. Wiley Series in Ecological and applied Microbiology, Ralph Mitchell Series Editor, 432 p., 2000.

BUIVID M. G., WISE D. L., BLANCHET M. J., REMEDIOS E. C., JENKINS B. M., BOYD W. F., PACEY J. G., Fuel gas enhancement by controlled landfilling of municipal solid waste. Resources and Conversion, vol. 6, pp. 3-20, 1981.

CABRERA M. L., CHIANG S. C. Water content effect on denitrification and ammonia volatilisation in poultry litter. Soil Science Society of America, 58(3), pp. 811-816, 1994.

CAPPAI G., CARUCCI A., DE GIOVANNIS G., MUNTONI A. Further investigations on MBP and relative implications. Proc. Sardinia 05, 10th International Landfill Symposium, Cagliary, CD ROM, 2005.

CERNUSCHI S., GUIGLIANO M., GROSSO M., LONATI G. Trace organics atmospheric emissions form landfill gas production and flaring. Proc. Sardinia 03, 9th International Landfill Symposium, CD-ROM, Cagliary, 2003.

CHANG L. Investigation on landfilling of MSW pretreated with different processes. Proc. Sardinia 93, 4th International Landfill Symposium, Cagliary, Vol. 2, pp. 2049-2056, 1993.

CHAUDHRY G. R., CHAPALAMADUGU S. Biodegradation of halogenated organic compounds. Microbioly and molecular biology reviews, 55(1), pp. 59-79, 1991.

CHIRIAC R. Caractérisation des émissions de composes organiques volatils issus des centres de stockage de DMA et de leur dispersion dans l'environnement. Thèse de Doctorat, INSA de Lyon, 273 p., 2004a.

CHIRIAC R., FINE L., GASS J. L., CARRE J. Optimisation des prélèvements par accumulations et dosage par couplage GC/MS desCOV présentes dans les stockages d'ordures ménagères. Première approche de comparaison des méthodes analytiques. Déchets Sciences et Techniques, 33, pp. 3-12, 2004b.

CHIRIAC R., LORNAGE R., FINE L., CARRE J., GASS J. L., LAGIER T. Development of a μ TD/ μ GC/MS coupling for on-site environmental analyses. Characterisation of VOC emissions from landfills. Internt. Journ. Of Environmental Chemistry, sous presse, 2006.

CHRISTENSEN T. H., KJELDSEN P. Basic biochemical processes in Landfills. Sanitary Landfilling : Process, technology and Environmental impact : Academic Press, 1989.

CHRISTENSEN T. H., COSSU R., STEGMANN R. Landfilling of waste : Biogas. Elsevier, Science publishers : London, 840 p., 1996.

CHUGH, S., PULLAMMANAPPALLIL, P., RUDOLPH, V. Effects of recirculated leachate volume on MSW degradation. Waste management and research, 16(6), pp 564-573, 1998.

CIWM Biological techniques in solid waste management and land remediation. Chartered Institution of Waste management, Northampton, 70 p., 2002.

CLAESON A. S., LEVIN J. O., BLOMQUIST G., SUNESSON A. L. Volatile metabolites from microorganisms grown on humid building materials and synthetic media. Journal of Environmental Monitoring, 4, pp. 667 - 672, 2002.

CLEMENS J., CUHLS K. Greenhouse gas emissions during mechanical and biological waste treatment of municipal waste. Environmental technology, 24, pp. 745-754, 2003.

COWIE S. J. Emissions of non methane organic compounds (NMOCs) and hazardous air pollutants (HAP) from decomposing refuse and individual waste components and under different conditions. Master of Science Thesis, NCS university, Raleigh, USA, 175 p., 2004.

CUHLS K. Schadstoffbilanzierung und Emissionsminderung bei der mechanisch-biologischen Abfallbehandlung. Veröffentlichungen des ISA der Universität Hannover, Heft 114, 265 p., 2001.

CZEPIEL P., DOUGLAS E., HARRISS R., CRILL P. Measurement of N₂O from composting organic waste. Environmental science and technology, 30, pp. 2519-2525, 1996.

DAVOLI E., GANGAI M. L., MORSELLI L., TONELLI D. Characterisation of odorants emissions from landfills by SPME and GC/MS. Chemosphere, 51, pp. 357-368, 2003.

DE BERTOLDI M., RUTILI A., CITTERIO B., CIVILINI M. Coposting management : a new process control through O_2 feedback. Waste Management and Research, 6, pp. 239-259, 1988.

DEFRA Review of environmental and health effects of waste management: Municipal solid waste ad similar wastes. DEFRA publications, London, 264 p., 2004.

DE GOUW J. A., HOWARD C. J., CUSTER T. G., FALL R. Emissions of volatile organic compounds from cut grass and clover are enhanced during the drying process. Geophysical Res. Letters, 26, 811-814, 1999.

DEIPSER A., STEGMANN R. The origin and fate of volatile trace components in municipal solid waste landfills. Waste management and research, 12, pp. 129-139, 1994.

DELGENES J. P., PENAUD V., MOLETTA R. Pretreatments for the enhancement of the anaerobic digestion of solid wastes, water Intelligence Online, ICWA, INRA-Narbonne France, 2002.

DEL GRECO O., OGGERY C. Geotechnical parameters of sanitary waste. Proc. Sardinia 93, 4th International Landfill Symposium, Cagliary, Vol. 3, pp 515-524, 1993.

DENT C. G., SCOTT P. E., BALDWIN G. A study of landfill gas composition at three UK domestic waste disposal sites. Proc. of the energy from landfill gas conference, Dpt of the environment, Solihull, UK, pp. 130-150, 1986.

Raphaël LORNAGE – Thèse – 2006

DERNBACH H. Landfill gas utilization in Braunschweig–Quality of gas and damages due to corrosion. Waste management and research, 3, pp. 149-159, 1985.

DIAZ L. F., SAVAGE G. M. Approaches to mechanical-biological treatment of solid wastes. International Seminar and Workshop "The sustainable Landfill", Padua, Italy, CD-rom of proceedings, CISA, 2005.

DISTLER M. A., ZAMOJSKI L. Chemical composition, physical properties and off-site migration of municipal landfill gas. AWMA annual meeting, British Columbia, Etats-Unis, 1991.

DOEDENS H., VON FELDE D., CUHLS C., KETELSEN K., BROEKER E., FEHRE E., GIEBEL B. Wissenschaftliche Begleitung der drei großtechnischen Demonstrationsanlagen zur mechanisch-biologischen Vorbehandlung von Restabfallen der Niedersachsen. Endbericht. ISAH, Hannover, 2000.

DRUILHE C., DE GUARDIA A., ROGEAU D., LE MOUËL N. Dynamique du carbone et de l'azote en fermentation et identification de voies de réduction des émissions ammoniacale. Rapport ADEME/CEMAGREF, 128 p., 2001.

ECOLOGIC, Umweltbundesamt, Strategie für die Zukunft der Siedlungsabfallentsorgung (Ziel 2020) - Kurzfassung. FuE-Vorhaben 201-32-324, 2004.

EHRIG H.J. Water and elements balances of landfills. The landfill, Baccini P., Ed. Springer Verlag, Berlin, Allemagne, 1988.

EITZER B. D. Emissions of volatile organic chemicals from municipal solid waste composting facilities. Environmental science and technology, 29, pp. 896-902, 1995.

EKLIND Y., KIRCHMANN H. Composting and storage of organic household waste with different litter amendment. II : Nitrogen turnover and losses. Bioresource technology, 74, pp. 125-133, 2000.

ELEAZER W. E., ODLE W. S., WANG Y. S., BARLAZ M. A. Biodegradability of municipal solid waste components in laboratory-scale landfills. Environmental Science and Technology, 31, pp. 911-917, 1997.

EL-FADEL M., FINDIKAKIS A. N., LECKIE J. O. Estimating and enhancing methane yield from municipal solid waste. Hazardous waste and hazardous materials, 13(3), pp. 309-331, 1996.

ENVIRONMENT AGENCY Monitoring Hydrogen sulphide and total reduced sulphur in atmospheric releases and ambient air. Technical guidance Note M13, UK Environmental Agency, Bristol, UK, 43 p., 2001.

EZQUERRO O., PONS B., TENA M. T. development of a headspace SPME-GC-MS method for the identification of odour-causing volatile compounds in packaging materials. Journal of chromatography A, 963, pp. 381-392, 2002.

FARQUHAR G. J., ROVERS F. A. Gas production during refuse decomposition. Water, Air and Soil Pollution, vol. 2, pp. 483-495., 1973.

FISCHER G., SCHWALBE R., MOLLER M., OSTROWSKI R., DOTT W Species-specific production of microbial volatile organic compounds (MVOC) by airborne fungi from a compost facility. Chemosphere, 39(5), pp. 795-810, 1999.

FISCHER G., MÜLLER T., SCHWALBE R., OSTROWSKI R., DOTT W Exposure to airborn fingi, MVOC and mycotoxins in biowaste-handling facilities. International journal of hygiene and environmental health, 203(2), pp. 97-104, 2000.

FOCHT D. D., VERSTRAETE W. biochemical ecology of nitrification and denitrification. Advances in Microbial Ecology, 1977.

FRANCOIS V. Détermination d'indicateurs d'accélération et de stabilisation des déchets ménagers enfouis. Etude de l'impact de la recirculation de lixiviats sur colonnes de déchets. Thèse de doctorat, Université de Limoges, 185 p., 2004.

FRANCOU C. Stabilisation de la matière organique au cours du compostage de déchets urbains : Influence de la nature des déchets et du procédé de compostage - recherche d'indicateurs pertinents. Thèse de doctorat, Paris : INAPG, 288 p., 2003.

FRICKE K., WALLMANN R., DOEDENS H., CUHLS K. Abluftemissionen bei der mechanischbiologischen Restabfallbehandlung. Bio- und Restabfallbehandlung, Wiemer & Kern, Witzenhausen-Institut für die Abfall, Umwelt und Energie, 1997.

GACHET C. Evolution bio-physico-chimique des déchets enfouis au centre de stockage de déchets ultimes du SYDOM du Jura sous l'effet de la recirculation de lixiviats. Thèse de Doctorat, Villeurbanne, INSA de Lyon, 271 p., 2005.

GAWLOWSKI J., GIERCZAK T., JEZO A., NIEDZIELSKI Y. Adsorption of the water vapour in the solid sorbents for the sampling of volatile organic compounds. The analyst, 124, pp. 1553-1558, 1999.

GEBERT J., GRONGROFT A. Performance of a passively vented filed scale biofilter for the microbial methane oxidation : improved determination. Waste Management, 26(4), pp. 399-407, 2006.

GLENSVIG D., MORTENSEN P., Mapping of chemicals in dry-cleaned textiles from Rynex and hydrocarbon dry-cleaning shops, Danish EPA, 87 p., 2003.

GOU B., GUZZONE B. State survey on leachate recirculation and landfill bioreactors. Solid Waste Association of North America, Silver Spring, Maryland, 1997.

GOUGHT M., ROWLAND S. Characterization of Unresolved Complex Mixtures of Hydrocarbons from Lubricating Oil Feedstock. Energy & Fuels, 5, pp. 869-874, 1991.

GOULD J. P., CROSS W. H., POLHAND F. G. Factors influencing mobility of toxic metals in landfills operated with leachate recycles. Emerging technologies in hazardous waste management. Tedder et Polhand editions, Washington DC, USA, ACS Symposium series 422, 1989.

GOURDON R. Aide à la définition des déchets dits biodégradables, fermentescibles, méthanisables, compostables. Association RECORD, Etude n° 00-0118/1A, 151 p., 2002.

HALVADAKIS C. P., ROBERTSON A. P., LECKIE J. O. Landfill methanogenesis: literature review and critique. Technical report N°271, Dept of civil engineering, Stanford University, 1983.

Raphaël LORNAGE – Thèse – 2006 LACE – UCB Lyon I

HAM R. K., BOOKTER T. J., Decomposition of solid waste in test lysimeters. Journal of Environmental Engineering Division, vol. 108, pp. 1047-1070., 1982.

HANSEN O. C., EGGERT T. Survey, emission and evaluation of volatile organic chemicals in printed matter, Danish EPA, 110 p., 2003.

HARRIES C. R., CROSS C. R., SMITH R. Development of a Biochemical methane Potential (BMP) test and application to testing of municipal solid waste samples. Proc. Sardinia 01, 8th International Landfill Symposium, Cagliary, vol. I, pp. 579-588, 2001a.

HARRIES C. R., CROSS C. R., SMITH R. Application of Biochemical methane Potential (BMP) testing to the study of municipal solid waste decomposition in MSW lysimeter. Proc. Sardinia 01, 8th International Landfill Symposium, Cagliary, vol. I, pp. 589-598, 2001b.

HARPER M. Sorbent trapping of volatile organic compounds from air. Journal of Chromatography A, 885, pp. 129-151, 2000.

HARTZ S. R., KLINK R. E., HAM R. K. Temperature effects : Methane generation from landfill samples. Journal of the Environment Engineering Division, Vol. 108, pp 629-638, 1982.

HEIKES D. L., JENSEN S. R., FLEMING-JONES M. E. Purge and trap extraction with GC-MS determination of volatile organic compounds in table ready foods. Journal of agriculture and food chemistry, 43, pp. 2869-2875, 1995.

HELLMANN B. Emission of climate relevant gases from compost piles. International symposium : "Biological Waste Management : A wasted chance ?", S35, Hamburg, 1995.

HELLMANN B., ZELLES L., PALOJÄRVI A., BAI Q. Emission of climate relevant gases and succession of microbial communities during open-windrow composting. Applied and environmental microbiology, 63(3), pp. 1011-1018, 1997.

HJELMAR O., JOHANNNESSEN L. M., KNOX K., EHRIG H. J., WINTHER P. CHRISTENSEN T. H. Management and composition of leachates from landfills. Final report for the commission of the European Communities, DGXI A. 4. Waste 92. VKI, Horschlom, Danemark, 1994.

HJELMAR O., ANDERSEN L., HANSEN J. B. Leachate emissions form landfills. Swedish Environmental Protection Agency, Final Report, Stockolm, 47 p., 2000.

HOLT M. S., BERNSTEIN S. L. Linear alkylbenzenes in sewage sludges and sludge amended soils. Water research, 26(5), pp. 613-624, 1992.

HORING K., KRUEMPELBECK I., EHRIG H.-J. Long term emission behaviour of mechanicalbiological pre treated municipal solid waste. Proc. Sardinia 97, 6th International Landfill Symposium, Cagliary, pp. 409-418, 1999.

IFAS Emission potential of mechanically-biologically pretreated municipal solid waste . Rapport pour le compte du CRPE, non publié, Hamburg, 51 p., 2006.

IPCC Preliminary guideline for assessing impacts of climate change. World Meteorological Organization and United Nation Environment Progamme, 1992.

Raphaël LORNAGE – Thèse – 2006 LACE – UCB Lyon I

IHNATOLYA J. C. Production of non methane organic compounds during the decomposition of refuse and individual waste components and under different conditions. Master of Science Thesis, NCS university, Raleigh, USA, 62 p., 2002.

INCHEM, IPSC INCHEM Home Environmental health criteria 164 - methylene chloride. Second Edition, consulté en ligne en mai 2006. http://www.inchem.org/documents/ehc/ehc164.htm

ISODOROV V., JDANOVA M. Volatile organic compounds from leaves litter. Chemosphere, 48, pp. 975-979, 2002.

JAMES K. J., STACK M. A. The impact of leachate collection on air quality in landfills. Chemosphere, 34(8), pp. 1713-1721, 1997.

JOKELA J. P., KETTUNEN R. H., RINTALA J. A. Methane and leachate pollutant emission potential from various fractions of municipal solid waste (MSW): Effect of source separation and aerobic treatment. Waste management and research, 20, pp. 424-433, 2002.

KARNIK M., PARRY C. Landfill odour control : a practitioner's experience. Proc. Sardinia 01, 8th International Landfill Symposium, Cagliary, II, pp. 692-700, 2001.

KIM J. Y., PARK J. K., EMMONS B., ARMSTRONG D. E. Survey of volatile organic compounds at a municipal solid waste cocomposting facility. Water environmental research, 67(7), pp. 1044-1051, 1995.

KINMANN R. N., NUTINI D. L., WALSH J. J., VOGT W. G., STAMM J., RICKABAUGH J. Gas enhancement techniques in landfill simulators. Waste Management and Research, vol. 5, p. 13, 1987.

KIRCHMANN H., WIDEN P. Separately collected organic household wastes : chemical composition and composting characteristics. Swedish journal of agricultural research, 24, pp. 3-12, 1994.

KJELDSEN P., BARLAZ M. A., ROOKER A. P., BAUN A., LEDIN A., CHRISTENSEN T. H. Present and long-term composition of landfill leachate: a review. Critical reviews in environmental science and technology, 32(4), pp. 297-336, 2002.

KNOWLES, 1982

KNOX K. Assessment of landfill gas potential using leachate and gas analysis. DoE report N° CWM 019/90, UK Waste technical division, London, UK, 1990.

KOMILIS D. P., HAM R. K., STEGMANN R. The effect of municipal solid waste pre-treatment on landfill behaviour : a literature review. Waste Management and Research, Vol. 17, pp. 10-19, 1999.

KOMILIS D. P., HAM R. K. A laboratory method to investigate gaseous emissions and solid decomposition during composting of municipal solid waste. Compost science and utilisation, 8(3), pp. 254-265, 2000.

KOMILIS D. P., HAM R. K., PARK J. K. Emission of volatile organic compounds during composting of municipal solid wastes. Water research, 38, pp. 1707-1714, 2004.

KOMILIS D. P. A kinetic analysis of solid waste composting at optimal conditions. Waste Management, Vol. 26(1), p. 82-91, 2006.

KORNER I., BRILSKY H., JENSEN U., RITZKOWSKI M., STEGMANN R. Possibilities for the regulation of the composting process to optimize the nutrient composition of compost. ORBIT, proceedings, 1997.

KORNER I., SCHLEGELMILSCH M., STEGMANN R. Regulation of nitrogen contents of composts during composting - first experimental results. ORBIT 1999, proceedings, pp. 123-129, 1999.

LAURSEN S. E., HANSEN J., DROJDAHL A. Survey of chemical compounds in textile fabrics. Danish EPA, 120 p., 2003.

LECKIE J. O., PACEY J.G., HALVADAKIS C. Landfill management with moisture control. Journal of the Environmental Engineering Division, ASCE, vol. 105, pp. 337-355, 1979.

LECLERC B. Le guide des matières organiques. Guide technique de l'ITAB, Paris, 238 p., 2001.

LE CLOIREC P. Les composés organiques volatils dans l'environnement. Lavoisier TEC & DOC, Paris, 734 p., 1998.

LEE S. C., LAM S., FAI H. K. Characterisation of VOCs, ozone and PM10 emissions from office equipment in an environmental chamber. Building and environment, 36(7), pp. 837-842, 2001.

LEE S. C., KWOK N. H., GUO H., HUNG W. T. The effect of wet film thickness on VOC emissions form a finishing varnish. Science of the total environment, 302(1-3), pp. 75-84, 2003.

LEIKAM K., STEGMANN R. The emission behaviour of mechanically-biologically pretreated residual wastes. Waste Reports : Emissionsverhalten von Restmull, ABF-BOKU, Vienne, 1995.

LEIKAM K., STEGMANN R. Mechanical-biological pretreatment of residual municipal solid waste and the landfill behaviour of pretreated waste. Proc. Sardinia 97, 6th International Landfill Symposium, Cagliary, Vol. 1, pp. 463-473, 1997.

LERDAU M., LITVAK M., PALMER P., MONSON R. Controls over monoterpene emissions from boreal forest conifers. Tree Physiology, 17, pp. 563-569, 1997.

LEUSCHNER Enhancement of degradation : Laboratory Scale Experiments. In : Sanitary Landfill : Process Technology and Environmental Impact. Academic Press: New York, pp. 83-102, 1989.

LOIZIDOU M., KAPETANIOUS E. G. Study of the gaseous emissions from a landfill. The science of the total environment, 127, pp. 201-210, 1992.

LORBER K. E., NUELLES M., RAGOSSNIG A., RANINGER B., SCHULTIK J. Longterm comparison between mechanical biological pretreated and non pretreated landfill. Proc. Sardinia 01, 8th International Landfill Symposium, Cagliary, Vol. 1, pp. 239-246, 2001.

Raphaël LORNAGE – Thèse – 2006

LORNAGE R., KLEEBERG K. K., STEGMANN R., LAGIER T., CARRE J. Investigation on volatile organic compounds and odorous emissions during solid waste treatment : implementation of different analytical techniques. Proc. Sardinia 05, 10th International Landfill Symposium, Cagliary, CD ROM, 2005.

LORNAGE R., REDON E., LAGIER T., HEBE I., CARRE J. Performances of a low-cost MBT prior to landfilling : study of the biological treatment of the size reduced MSW without mechanical sorting. Waste Management. Sous presse, 2006.

LUBBERDING H. J. Microbiology of wastewater treatment. S. Lecture Notes, 1998.

MARKÈS INTERNATIONAL LIMITED Advice on sorbent selection and conditioning sample tubes. Thermal Desorption Technical Support, Note 5, 9 p., 2002.

MARTINS O., DEWES T. Loss of nitrogenous compounds during composting of animal wastes. Bioressource Technology, 42, pp. 103-111, 1992.

MATA-ALVAREZ J., MARTINEZ-VITURTIA A. Laboratory simulation of municipal solid waste fermentation with leachate recycle. Journal of Chem.. Tech. Biotechnology, vol.36, pp. 547-556, 1986.

MC GRAW G. W., HEMINGWAY R. W., INGRAM L. L., CANADY C. S., MCGRAW W. B. Thermal degradation of terpenes : Camphene, 3-carene, limonene and alpha-pinene. Environmental Science and Technology, 33, pp. 4029-4033, 1999.

MC NEAL T. P., HOLLIFIELD H. C. Determination of volatile chemicals released from microvawe-heat-susceptor food packaging. Journal of AOAC international, 76(6), pp. 1268-1275, 1993.

MERUVA N. K., PENN J. M., FARTHING D. E. Rapid identification of microbial VOCs from tobacco molds using closed-loop stripping and gas chromatography/time-of-flight mass spectrometry. Journal of Industrial Microbiology and Biotechnology, 31(10), pp. 482-488, 2004.

METHA R., BARLAZ M., YAZDANI R., AUGENSTEIN D., BRYARS M., SINDERSON L. Refuse decomposition in the presence and absence of leachate recirculation. Journal of the environmental engineering, 128(3), pp. 228-236, 2002.

MISRA G., PAVLOSTATHIS S. G., PERDUE E. M., ARAUJO R. Aerobic biodegradation of selected monoterpenes. Applied Microbiology and Biotechnology, 45(6), pp. 831-838, 1996.

MITCHELL L. A. Factors controlling desorption rates of hydrophobic organic contaminants from municipal solid waste. Master of Science Thesis, NCS university, Raleigh, USA, 148 p., 2005.

MOLZ F. J., WIDDOWSON M., BENEFIELD L. D. Simulation of microbial growth dynamics coupled to nutrient and oxygen transport in porous media. Water resources Research, vol. 22, n°8, pp 1207-1216., 1986.

MORAIS J., BAYARD R. Influence de la stabilisation biologique des ordures ménagères brutes sur le comportement en CSDU - Essais de lixiviation et essais pilotes anaérobies sur échantillons d'OM après prétraitement aérobie. Laepsi - Insavalor, rapport intermédiaire pour le compte du CRPE, non publié, 59 p., 2005.

Raphaël LORNAGE – Thèse – 2006
MORAIS J., BAYARD R. Synthèse des résultats de la caractérisation initiale et finale des déchets issus des essais pilotes anaérobies sur échantillons d'OM après prétraitement aérobie. Laepsi -Insavalor, rapport final pour le compte du CRPE, non publié, 14 p., 2006.

MORRIS J. F. W., VASUKI N. C., BAKER J. A., PENDLETON C. H. Findings from longterm monitoring studies at MSW landfill facilities with leachate recirculation. Waste Management, 23(7), pp. 653-666, 2003.

MOUKHTAR S., COURET C., ROUIL L., SIMON V. Biogenic volatile organic compounds (BVOC) emissions from Abies alba in a French forest. Science of the total environment, 354(2-3), pp. 232-245, 2006.

MUSTIN M., Le compost, gestion de la matière organique. Editions François Dubusc : Paris, 954 p., 1987.

NAKASAKI K., KURAOMI H., WAKIZAKA H., HIYAMA R., AKAKURA N. Quantitative analysis of ammonia and odorous sulphur compounds evolved during thermophilic coomposting. Waste management and research, 16(6), pp. 514-524, 1998.

NAZAROFF W. W., WESCHLER C. J. Cleaning products and air fresheners : exposure to primary and secondary air pollutants. Atmospheric environment, 38(18), pp. 2841-2865, 2004.

NILLSON N., JENSEN M. S. Survey and assessment of chemical substances in hobby adhesives, Danish EPA, 41 p., 2003.

OGOR Y., GUERBOIS M. Comparison of landfill methane emission models : a case study. Proc. Sardinia 05, 10th International Landfill Symposium, Cagliary, CD ROM, 2005.

OLIVIER F. Tassement des déchets en CSD de classe II : du site au modèle. Thèse de Doctorat, Université de Grenoble, 325 p., 2004.

PACEY J. G. Prediction of landfill gas production and recovery. International gas research conference, Government Institute MD, pp. 896-915, 1982.

PACEY J. P., RAMIN Y., REINHART D., MORCK R., AUGENSTEIN D. The bioreactor landfill : an innovation in solid waste management. SWANA, Silver springs, Maryland, 1999.

PARKER T., DOTTRIDGE J., KELLY S. Investigation of the composition and emissions of trace components in landfill gas. R&D technical report P1-438/TR, Komex, Environment Agency, UK, 140 p., 2002.

PARKER T., APPS G., ROSEVEAR A. Evaluation of chemical analysis techniques for trace components of landfill gas. Proc. Sardinia 03, 9th International Landfill Symposium, CD-ROM, Cagliary, 2003.

PERCHERON G. Dépollution carbonée et azotée d'un effluent industriel riche en sulfate. Thèse de Doctorat, université de Montpellier II, 177 p., 1997.

PIERUCCI P., PORAZZI E., MARTINEZ M. P., ADANI F., CARATI C., RUBINO F. M., COLOMBI A., CALCATERRA E., BENENATI E. Volatile organic compounds produced during the aerobic biological processing of municipal solid waste in a pilot plant. Chemosphere, 59, pp. 423-430, 2005.

Raphaël LORNAGE – Thèse – 2006

PÖHLE H. Geruchstoffemissionen bei der Kompostierung von Bioabfall. Thèse de doctorat, Université vétérinaire de Leipzig, 1994.

POLHAND F. Sanitary landfill stabilisation with leachate recycle and residual treatment. USEPA Report N $^{\circ}$ EPA-600/2-75-043, 1975.

POLHAND F. Leachate recycle as landfill management option. Journal of the environmental Engineering Division, Vol. 106, p. 1057, 1980.

POHLAND F., KIM J. In situ anaerobic treatment of landfills for optimum stabilisation and biogas production. Water Science and Technology, 40 (8), pp; 203-210, 1999

PURCELL B. E., SOLLARS C. J., BUTLER A. P. Enhanced moisture movement in simulated landfill environments. Proc. Sardinia 97, 6th International Landfill Symposium, Cagliary, Vol. 1, pp 409-418, 1997.

QI WANG, MATSUFUJI Y., DONG L., HUANG Q., HIRANO F., TANAKA A. Research on leachate recirculation form different types of landfills. Waste Management, 26, pp. 815-824, 2006.

RANINGER B., PILZ G., GHESER D. Optimisation of mechanical-biological treatment of waste to achieve Austrian landfill requirements. Proc. Sardinia 99, 7th International Landfill Symposium, Cagliary, 1999.

RAPPARINI F., BARALDI R., FACINI O Seasonal variation of monoterpene emission from Malus domestica and Prunus avium. Phytochemistry, 57(5), pp. 681-687, 2001.

REES J. F. The fate of carbon compounds in the landfill disposal of organic matter. Journal Chem. Tech. Biotechnol. Vol. 30, pp. 161-175, 1980.

REINHART D. R. A review of recent studies on the sources of hazardous compounds emitted from solid waste landfills : a US experience. Waste management and research, 11, pp. 257-268, 1993.

REINHART D. R. Active municipal landfill operation. Draft report to US environmental protection agency, Cincinnati, OH, USA, 1995.

REINHART D. R., AL-YOUSFI A. B. The impact of leachate recirculation on municipal solid waste landfill operating characteristics. Waste management and Research, vol. 14, pp. 337-346, 1996.

REINHART D. R., TOWNSEND T. G. Landfill bioreactor design and operation. Lewis Publisher, Boca Raton, New York, 189 p., 1998.

REINHART D. R., Mc CREANOR P. T., TOWNSEND T. The bioreactor landfill : its status and future. Waste Management and Future, Vol. 20, pp. 172-186, 2002.

RIEGER A., BIDLINGMAIER W. The reactivity of mechanically-biologically pretreated wastes. Waste Reports : Emissionsverhalten von Restmull, ABF-BOKU, Vienne, 1995.

RINNE J., PIHLATIE M., LOHILA A., THUM T., AURELA M., TUOVINEN J.-P., LAURILA T., VESALA T. Nitrous oxide emissions form a municipal landfill. Environmental Science and Technology, 39, pp. 7790-7793, 2005.

ROBINSON H. D., KNOX K., BONE B. D., PICKEN A. Leachate quality form landfills MBT waste. Waste Management, Vol. 25 (4), pp. 383-391, 2005.

ROUSSEAUX P., BORGES DE CASTILHOS A., VERMANDE P., VERON J. Determination of trommel meshes for optimal separation of compostable solid waste from Florianopolis. Resources, Conservation and Recycling, Vol. 6(3), pp. 217-229, 1992.

RUTH J. H. Odour thresholds and irritation levels for several chemical substances : a review. Américan industrial hygiene association journal, 47, pp. 142-151, 1986.

SAN I., ONAY T. T. Impact of various leachate recirculation regimes on municipal solid waste degradation. Journal of Hazardous Materials, Vol. 87(1-3), pp. 259-271, 2001.

SCHARFF H., JACOBS J. Comparison of methane emission models and measurements. Proc. Sardinia 05, 10th International Landfill Symposium, Cagliary, CD-ROM, 2005.

SCHEELHAASE T. Landfill behaviour of MBP-waste and new landfill concepts for a low emission landfill. Proc. Sardinia 01, 8th International Landfill Symposium, Cagliary, Vol. 1, pp. 247-254, 2001.

SCHEELHAASE T., BIDLINGMAIER W., KLUMPER A., MAILE A., RECHBERGER M. Geotechnical behaviour of mechanically-biologically pretreated resual waste. Proc. Sardinia 01, 8th International Landfill Symposium, Cagliary, Vol. 3, pp. 445-453, 2001b.

SCHEUTZ C., KJELDSEN P., CHANTON J., BLAKE D., BOGNER J. Comparative oxidation and net emissions of CH_4 and selected non- CH_4 organic compounds in landfill cover soils. Environmental Science and Technology 37, pp. 5150-5158, 2003.

SCHLEGEL H. G. Allgemeine Mikrobiologie. Thieme Verlag, Stuttgart, 1992.

SCHULTE B., ENTENMANN W. Ablagerung von MBA deponat - Einbaubetrieb und Einbaugeräte. Oral presentation on "Mechanical Biological Waste Treatment MBT in Practice", 6th ASA Waste days, Hannover, 2006.

SCHWARZE S., SOLLARS C. J. Identification of VOC in landfill gas to indicate the extent of waste degradation. Proc. Sardinia 97, 6th International Landfill Symposium, Cagliary, Vol. 1, pp. 145-154, 1997.

SCOTT P. E., DENT C. G., BALDWIN G. The composition and environmental impact of household waste derived landfill gas. Second report, DoE report N°CWM 041/88, UK waste Technical division, London, UK, 133 p., 1988.

SCRUDATO R. J., PAGANO J. J., LANE M. A., HANSEN D. L. Leachate recirculation in normally placed and stabilized refuse. Proc. Sardinia 93, 4th International Landfill Symposium, Cagliary, Vol. I, pp. 969-978, 1993.

SMARS S., BECK-FRIIS B., JONSSON H., KIRCHMANN H. Influence of temperature during the initial phase of composting on biological activity and emission of ammonia and dinitrogen oxide. ORBIT 1999, proceedings, pp. 119-122, 1999.

SMET E., VAN LANGERHOVE H., DE BO I. The emissions of volatile compounds during the aerobic and the combined anaerobic/aerobic composting of biowaste. Atmospheric Environment, 33, pp. 1295-1303, 1999.

SOUSA E. T., RODRIGUES F., MARTINS C., OLIVEIRA F. S., PEREIRA P. A., ANDRADE J. B. Multivariate optimization and HS-SPME/GC-MS analysis of VOCs in red, yellow and purple varieties of Capsicum chinense sp. Peppers. Microchemical Journal, 82(2), pp. 142-149, 2006.

SOYEZ K., PLICKERT S. Mechanical biological pre-treatment of waste - state of the art and potentials of biotechnology. Acta Biotechnologia, Vol. 22(3-4), pp. 271-284, 2002.

STEGMANN, R., LEIKAM, K., HOINS, H., WEBER, B. Versuche zur mechanischen und biologischen Restabfallvorbehandlung in Gebietskörperschaften des Landes Schleswig-Holstein. Projektbericht für die GA des Kreises Pinneberg mbH GAB, Kreis Rendsburg-Eckernförde, Zweckverband Ostholstein, 1995.

STEGMANN R. Description of laboratory scale method to investigate anaerobic degradation processes taking place in solid waste. Proc. Sardinia 97, 6th International Landfill Symposium, Cagliary, Vol. 1, pp. 37-43, 1997.

STEGMANN R., IFAS Emission potential of mechanically-biologically pretreated municipal solid waste. Rapport pour le CRPE, non publié, Hamburg, 51 p., 2006.

STRATHEROPOULOS M., AGAPIOU A., PALLIS G. A study of volatile organic compounds evolved in urban waste disposal bins. Atmospheric environment, 39, pp. 4639-4645, 2005.

SVENDSEN N., PEDERSEN S. F., HANSEN O. C., MOSSING J. T., BERNTH N. Survey of chemical substances in toothbrushes. Danish EPA, 95 p., 2004.

SWAN J. R. M., CROOK B., GILBERT E. J. Microbial emissions from composting sites. Issues in environmental science and technology, Vol. 18, 2002.

TABASARAN O. Mean research topics in the department of waste management at the University of Stuggart and a report on current investigations of practical interest concerning the landfill gas. Elmia, Jonkoping, Suède, 1979.

TANG J., CHAN C. Y., WANG X., CHAN L. Y., SHENG G., FU J. Volatile organic compounds in a multistorey shopping mall in Guangzhou, South China. Atmospheric Environment, 39, pp. 7374-7383, 2005. ADANI F., TAMBONE F., GOTTI A. Biostabilization of municipal solid waste. Waste Management, Vol. 24, pp. 775-783, 2004.

TAYLOR G. T. The methanogenic bacteria. Progress in industrial microbiology. Vol. 16, pp. 231-329, 1982.

THAUER R. K., JUNGERMANN K., DECKER K. Energy conservation in chemotrophic anaerobic bacteria. Bacteriological Reviews, 41(1), pp. 100-180, 1977.

THIEL R. Observed benefits and problems associated with leachate recirculation. Proc. Sardinia 05, 10th International Landfill Symposium, Cagliary, CD-ROM, 2005.

THOMAS K. W., PELLIZARI E. D., PERITT R. Effect of dry-cleaned clothes on tetrachloroethylene levels in indoor air, personal air and breath for residents of several New Jersey homes, Journal of Exposure Analysis and Environmental Epidemiology. Vol. 1 nr. 4, pp 475-490, 1991.

THOMAS C. L., BARLAZ M. A. Production of non-methane organic compounds during refuse decomposition in a laboratory-scale landfill. Waste management and research, 17, pp. 205-211, 1999.

TITTLEBAUM M. E. Organic carbon content stabilisation through landfill leachate recirculation. Journal of Water Pollution Control Federation, Vol. 54(5), p. 428, 1982.

TSUJIMOTO Y., MASUDA J., FUKUYAMA J., ITO H. N₂O emissions at solid waste disposal sites in Osaka City. Journal of Air and Waste Management Association, 44, pp. 1313-1314, 1994.

UMWELTBUNDESAMT, Ökologischen Vertretbarkeit der mechanisch-biologischen Vorbehandlung von Restabfällen einschließlich deren Ablagerung. Berlin, Germany, 65 p., 1999.

VIGNERON V. Voix de réduction des oxydes d'azote lors de leur injection dans un massif de déchets ménagers et assimilés. Thèse de doctorat, Université Paris XII, 336 p., 2005.

VIKRAM A., LUI L. H., HOSSAIN A., KUSHALAPPA A. C. Metabolic fingerprinting to discriminate diseases of stored carrots. Annals of applied biology, 148(1), pp. 17-25, 2006.

VON FELDE D., DOEDENS H. Mechanical-biological pretreatment : results of full scale plant. Proc. Sardinia 97, 6th International Landfill Symposium, Cagliary, Vol. 1, pp. 37-43, 1997.

VON FELDE D., DOEDENS H. Full scale results of landfilling mechanical and biological pretreated MSW. Proc. Sardinia 99, 7th International Landfill Symposium, Cagliary, Vol. 1, pp. 533-539, 1999a.

VON FELDE D. Ablagerung mechanisch-biologisch verbehandelter Abfälle.Ergebnisse der niedersächsischen Demonstrationsanlagen. Münsteraner Schriften zur Abfallwirtschaft, 2(6), 1999b.

WALSH J. J., STAMM J. W., VOGT G. Demonstration of landfill gas enhancement techniques in landfill simulators. Proc. 10th Symposium Energy from Biomass and wastes, 1986.

WANG Y. S., BARLAZ M. A. Anaerobic biodegradability of alkylbenzenes and phenol by landfill derived microorganisms. FEMS Microbiology Ecology, 25(4), pp. 405-418, 1998.

WARDENCKI W., SOWINSKI P., CURYLO J. Evaluation of headspace solid-phase microextraction for the analysis of volatile carbonyl compounds in spirits and alcoholic beverages. Journal of Chromatography A, 984(1), pp. 89-96, 2003.

WARITH M. Bioreactor landfills : experimental and field results. Waste Management, Vol. 22, pp. 7-17, 2002.

WATSON-CRAIK I. A., SENIOR E., Treatment of phenolic wastewaters by co-disposal with refuse. Water research, 23(10), pp. 1293-1303, 1989.

WEBER B. Minimierung von Emissionen der Deponie. Veröffentlichungen des ISA des Universität Hannover, Thèse de doctorat, Heft 74, 1990.

WELSH D. T., CASTALDELI G., BARTOLDI M., POLI D., CARERI M., DE WIT R. Denitrification in an intertidal seagrass meadow, a comparison of N-15-isotope and acetylene-Block techniques : dissimilatory Nitrate reduction to ammonia as a source of N_2O ? Marine biology, 136(6), pp. 1029-1036, 2001. WENS P., VERCAUTEREN T., DE WINDT W., VERSTAETE W. Factors inhibiting anaerobic degradation in a landfill. Proc. Sardinia 01, 8th International Landfill Symposium, Cagliary, Vol. I, pp. 13-20, 2001.

WILKINS K Volatile organic compounds from household waste. Chemosphere, 29(1), pp. 47-53, 1994.

WILKINS K. Volatile metabolites from actinomycetes. Chemosphere, 32(7), pp. 1427-1434, 1996a.

WILKINS K. Volatile organic compounds from garden waste. Chemosphere, 32(10), pp. 2049-2055, 1996b.

WILKINS K. Gaseous organic emissions from various types of household waste. Annals of agricultural and environmental medicine, 4, pp. 87-89, 1997.

WILLIAMS P. T. Waste treatment and disposal. Department of fuel and energy, the university of Leeds, UK. England : John Wiley & Sons, 417 p., 1998.

WILLUMSEN H. C. Actual landfill gas yields. Landfilling of waste : Biogas. Christensen, Cossu, Stegmann, E & FS SPON, pp. 293-295, 1996.

YAOWU H., YUHEI I., MOTOYUKI M., HAINAN K., NOIRO I., TEIHENG S. Nitrous oxide emissions from aerated composting f organic waste. Environmental Science and Technology, 35, pp. 2347-2351, 2001.

YOLO COUNTY DIVISION OF INTEGRATED WASTE MANAGEMENT. Trash to cash - Controlled Landfill Bioreactor Project. Public Technology Inc. Energy Program, Order No. 98/97-317, 1997.

YOUNG P. J., PARKER A. The identification and possible environmental impact of trace gases and vapours in landfill gas. Waste management and research, 1, pp. 213-226, 1983.

YUEN S. Bioreactor landfills promoted by leachate recirculation. A full scale study. Thèse de doctorat, université de Melbourne, 461 p., 1999.

ZACH A., LATIF M., BINNER E., LECHNER P. Influence of mechanical and biological pretreatment on the toxicity of municipal solid waste. Compost Science and Utilisation, Vol. 7(4), pp. 25-33, 1999.

ZACH A., BINNER E., LATIF M. Improvement of municipal solid waste quality for landfilling by means of mechanical biological pretreatment. Waste management and research, 18, pp. 25-32, 2000.

ZENGLER K., RICHNOW H. H., ROSSELLO-MORA R., MICHAELIS W., WIDDEL F. Methane formation from long chain alkanes by anaerobic microorganisms. Nature, 401, pp. 266-269, 1999.

ZIEGLER C. Nitrogen fixation and release from biologically pretreated MSW. Proc. Sardinia 97, 6th International Landfill Symposium, Cagliary, Vol. 1, pp 513-521, 1997.

ZHOU G. M., FANG H. H. P. Competition between methanogenesis and sulfidogenesis in anaerobic wastewater treatment. Water Science and Technology, 38(8-9), p. 317-324, 1998.

ZOU S. C., LEE S. C., CHAN C. Y. Characterisation of ambient volatile organic compounds at a landfill site in Guangzhou, South China. Chemosphere, 51(9), pp. 1015-1022, 2003.

ANNEXES

Annexes

Annexe 1 : Suivi de la qualité des effluents liquides	.250
Annexe 2 : Analyse des COV	.252
Annexe 3 : Casier Bioréacteur	.258
Annexe 4 : Emissions de N_2O pour les casiers PTB 1 et PTB 2	.260
Annexe 5 : Evolution des paramètres majoritaires des lixiviats des casiers de stockage	.261
Annexe 6 : Méthodes d'analyse statistique utilisées pour les émissions de COV des casiers de stockage	.263
Annexe 7 : Tests de lixiviation effectués sur le déchets brut et les déchets stabilisés	.266

Annexe 1 : Suivi de la qualité des effluents liquides

Le suivi de la qualité des effluents liquides a été effectué par des kits d'analyse rapide Dr Lange. En parallèle de ces analyses, des analyses normalisées ont été effectuées afin de valider les mesures et d'établir, le cas échéant, des facteurs correctifs lorsque les analyses kits ont montré une déviation par rapport aux résultats des analyses normalisées. Les analyses d'AOX, de manganèse et de sulfures ont montré une dispersion importante des résultats par rapport aux analyses normalisées, ils ont été retirer de la liste des paramètres suivis. Pour le kit d'analyse des nitrates, trop peu de points de mesure étaient disponibles pour la validation rigoureuse du kit, il a été décidé néanmoins de conserver les points de mesure réalisés étant donné les bons résultats des kits N_{total} et NH_4^+ . L'erreur commise par l'absence de correction sur ce paramètre est estimée à environ 5% étant donné les performances des 2 autres kits de mesure pour l'azote.

Pour les autres paramètres : N_{total} , NH_4^+ , P_{total} , Mg^{2+} , Ca^{2+} , DCO, SO_4^{2-} , Fe et Cl⁻, les résultats des mesures en parallèle ainsi que les facteurs correctifs sont présentés par les graphiques suivants. Le résume les facteurs correctifs à appliquer pour chacun des paramètres.





Graphique 35 : Représentation des analyses normalisées en fonction des analyses Dr Lange

Paramètres	C _{DrLange} /C _{Normalisée}	Facteur de corrélation
DCO	1,1090	0,9843
N _{total}	1,0475	0,9894
NH_4^+	0,9601	0,8016
P _{total}	0,9862	0,9146
Cl	0,9773	0,8871
Ca ²⁺	1,0093	0,9978
Mg ²⁺	1,2904	0,6733
Fe	1,3710	0,9474
SO4 ²⁻	0,8981	0,7893

Tableau 65 : Facteurs de corrélation entre les analyses Dr Lange et les analyses normalisées

Annexe 2 : Analyse des COV

A2.1 : Détails des chaînes analytiques et conditions expérimentales

	Ultra Unity Markès (thermodésorbeur)/
	GC6890N / MS5973 Agilent Technologies
Tube adsorbant	Tenax - TA
	Désorption primaire (Splitless)
	5 min à 280°C
Conditions de	Désorption secondaire (Splitless)
desorption	5 min à 300°C
	Température initiale du piège : 0°C
Type de colonne	HP5-MS 30 m
Conditions de colonne	Température initiale: 35°C 5°C.min ⁻¹ jusqu'à 220°C, 15°C.min ⁻¹ jusqu'à 300°C, 5 min à 300°C
Détecteur de	Mode SCAN 19 - 350 amu, source d'e: 70eV, Turne = 230° C, Turne = 150° C, harring = 35 UA

Tableau 66 : Chaîne analytique et conditions expérimentales pour l'analyse des tubes Tenax TA

GC	5890 / MS 5973 Agilent technologies
Tube adsorbant	Charbon actif SKC Anasorb 226-01
Injecteur	Mode splitless, T _{injecteur} =200°C
Type de colonne	DB5-MS 60m
Conditions de	Température initiale :36°C pendant 2 min
colonne	5°C.min-1 jusqu'à 260°C
Détecteur de masse	Mode SCAN 20 - 300 amu, source d'e ⁻ : 70eV, T _{source} =230°C, T _{quadripôle} =150°C, I _{ionisation} =35µA

Tableau 67 : Chaîne analytique et conditions expérimentales pour l'analyse des tubes Charbon actif

A2.2 : Liste des composés étalonnés

Composé	s étalonnés
Trichloromonfluorométhane	m-Xylène
Isopropanol	p-Xylène
1,1-dicloroethène	Nonane
2-Butanone	o-Xylène
Hexane	1,1,2,2-tetrachloroéthane
Chloroforme	1-méthyléthyl-Benzène
1,1,1-trichloroéthane	a-Pinène
1,2-dichloroéthane	b-pinène
1,1-dichloropropène	Decane
1-Butanol	1,2,3-Triméthylbenzène
Benzène	Limonène
Heptane	Undécane
Trichloréthylène	Dodécane
1,2-dichloropropane	propylbenzène
cis-1,3-dichloropropène	2-chloro-Toluène
Toluène	4-chloro-Toluène
1,1,2-trichloroéthane	1,3,5-triméthyl-Benzène
1,3-dichloropropane	tert-butyl-Benzène
Octane	1,4-dichlorobenzène
tetrachloroéthylène	butyl-Benzène
chlorobenzène	1,2,3-trichloro-Benzène
1,1,1,2-tetrachloroéthane	Naphtalène
Ethylbenzène	1,2,4-trichloro-Benzène

Tableau 68 : Liste des composés étalonnés pour l'analyse des tubes à charbon actif

Compo	osition de la solution étalon Me	egamix 200, Restek
1,1-dichloro-éthène	1,1,2-trichloro-éthane	2-chlorotoluène
Dichlorométhane	1,3-dichloro-propane	n-propyl-benzène
trans-1,2-dichloro-éthène	dibromochloro-méthane	4-chlorotoluène
1,1-dichloro-éthane	1,2-dibromo-éthane	1,2,4-triméthyl-benzène
cis-1,2-dichloro-éthène	Tétrachloroéthylène	tert-butyl-benzène
2,2-dichloro-propane	chloro-benzène	1,3,5-trimethylbenzène
bromochlorométhane	1,1,1,2-tétrachloro-éthane	1,4-dichloro-benzène
Chloroforme	Ethylbenzène	sec-butylbenzène
1,1,1-trichloro-éthane	o-Xylène	1,3 dichlorobenzène
1,2-dichloro-éthane	m-xylène	p-isopropyltoluène
1,1-dichloro-1-propéne	Bromoforme	1,2-dichloro-benzène
Tétrachlorométhane	styrène	n-butylbenzène
Benzène	p-Xylène	1,2-dibromo-3-chloro-propane
Trichloroéthylène	1,1,2,2-tétrachloro-éthane	1,2,4-trichloro-benzène
dibromo-méthane	cis-1,3-dichloro-1-propène	naphtalène
bromodichloro-méthane	1,2,3-trichloropropane	1,2,3-trichloro-benzène
trans-1,3-dichloro-1-Propène	isopropylbenzène	1,1,2,3,4,4-hexachloro-1,3-Butadiène
Toluène	bromo-benzène	1,2-dichloropropane

Tableau 69 : Liste des composés étalonnés pour l'analyse des tubes Tenax

A2.3 : Résultats des analyses réalisées sur l'andain de prétraitement biologique

Durée de traitement				Concentration en mg.Nm ⁻³										
(en semaines)	1	2	3	4	5	7	8	9	10	12	14	16	19	22
Pentane	716,49	965,01	882,21	-	-	-	1,46	1,64	15,13	13,19	39,87	-	-	1,70
Hexane	735,62	969,16	952,21	-	-	13,54	6,23	43,94	38,20	39,40	102,21	11,61	27,02	3,35
Heptane	636,43	856,16	848,88	490,78	52,78	24,07	6,96	300,34	218,77	213,61	929,06	106,96	237,29	12,02
Octane	365,30	482,76	480,76	6,73	-	55,85	17,98	294,16	225,23	269,20	804,49	114,62	201,52	9,20
Nonane	229,41	310,51	310,50	5,55	-	77,38	23,36	211,96	178,28	207,28	475,64	86,36	125,77	5,38
Décane	886,80	1199,63	1361,96	21,86	2,50	627,73	190,73	1363,96	1074,99	1246,26	2324,47	428,05	577,67	4,48
Undécane	12,22	11,47	11,23	-	-	12,62	6,13	11,55	8,39	6,12	-	-	-	-
Cyclohexane	252,90	333,39	316,82	28,88	4,15	-	-	72,12	54,34	60,52	241,68	24,23	61,44	7,33
Toluène	802,36	1067,23	1371,78	10,76	14,55	98,78	24,35	627,36	474,94	564,61	1765,80	231,55	460,63	14,01
o-Xylène	85,35	111,70	111,18	4,05	-	30,51	10,55	90,95	75,31	90,63	221,78	38,62	55,96	2,98
m-Xylène	48,70	64,08	55,64	42,93	3,20	8,89	5,05	10,45	11,58	13,59	16,78	-	6,40	-
p-Xylène	16,16	20,78	18,70	-	-	7,60	4,52	-	5,50	10,62	10,67	-	4,42	-
Triméthylbenzène	30,02	31,78	27,88	2,01	-	9,41	5,18	13,67	5,77	27,36	46,82	-	6,95	-
Ethyl-benzène	74,06	96,69	82,85	-	5,83	2,27	0,29	-	8,08	-	16,23	-	4,64	-
Butyl-benzène	-	3,40	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Propyl-benzène	6,07	7,70	7,07	-	-	1,90	-	-	2,63	-	-	-	-	-
Ethyl-toluène	30,64	44,38	6,49	-	-	-	0,93	16,55	14,08	0,66	28,82	-	8,48	-
Méthyléthyl-benzène	17,06	26,23	20,22	-	-	4,06	0,88	9,85	8,03	0,87	-	-	4,93	-
Limonène	12,05	15,19	4,59	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
a-Pinène	7,46	5,20	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
b-pinène	-	2,69	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Trichloréthylène	-	5,05	8,87	248,20	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Trichloromonofluorométhane	31,78	50,01	44,01	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	4,55
Chloroforme	-	6,13	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Dichlorométhane	169,96	258,64	238,46	-	-	-	-	463,38	379,89	409,62	1170,10	170,23	436,65	56,23
Acétone	39,02	43,27	31,74	-	-	-	-	-	4,65	-	-	-	-	3,68
 Non détecté 														

Tableau 70 : Evolution des concentrations de COV dans les effluents gazeux du PTB

A2.4 : Résultats des analyses réalisées sur le biogaz des casiers de stockage

Durée	Concentration en mg.Nm ⁻³												
(en mois)	Alcanes	Cycloalcanes	Alcènes	Alcools	Aldéhydes	Cétones	Aromatiques	Terpènes	Soufrés	Chlorés	Furanes	Acides	Esters
0,2	12911,56	774,00	-	-	-	-	3215,96	21,81	-	4171,04	-	-	0,41
0,7	745,60	51,54	-	-	-	-	1346,41	59,99	-	-	-	-	-
1,2	44,77	-	-	-	-	-	32,10	45,60	-	-	-	-	-
1,6	669,47	1,22	2,27	131,52	0,05	80,72	122,78	45,38	0,87	-	0,34	3,09	-
2,8	1037,45	6,09	-	-	-	-	236,07	11,55	-	10,15	-	-	-
3,2	2163,77	120,18	-	-	0,78	4,90	952,41	22,50	1,98	3786,39	-	-	-
7,9	200,20	15,77	6,84	-	1,42	27,20	33,47	7,84	0,26	143,18	0,77	-	-
8,5	81,08	41,12	0,89	2,00	-	2,61	18,10	10,46	2,69	51,75	1,56	-	-
9,7	141,08	29,85	2,37	11,21	1,02	109,67	38,96	71,45	1,41		1,23	-	-
10,6	91,68	0,96	1,41	-	-	77,13	8,72	24,22	-	9,04	-	-	0,29
11,2	470,90	5,84	2,30	12,77	-	192,04	58,41	26,26	-	40,45	-	-	-
12,6	59,70	19,81	0,09	-	0,91	20,43	27,72	58,65	-		1,35	-	0,05
13,3	385,24	4,94	1,89	-	-	90,10	70,37	28,15	-	131,30	-	-	1,57
14,3	478,74	-	2,42	-	-	23,64	83,68	16,31	-	200,77	-	-	4,88
15,4	437,31	6,81	2,12	8,65	-	181,72	72,94	57,37	-	161,84	-	-	-
16,8	134,34	5,28	1,47	3,27	0,21	35,93	25,87	32,00	0,22	54,58	0,18	-	0,73
17,5	271,31	43,13	-	-	0,12	27,18	93,55	121,99	0,23	95,48	-	-	0,88
18,6	231,52	70,59	1,58	-	1,57	77,97	64,36	140,93	0,47	22,89	-	-	1,40
19,8	322,06	9,45	2,46	-	-	262,60	94,97	48,37	-	14,66	-	-	-
20,7	429,55	78,97	0,60	-	0,50	83,90	361,87	307,71	-	0,63	3,02	1,66	-
22,6	179,06	56,60	-	8,13	0,46	147,66	302,05	237,14	-	32,96	5,61	3,31	-
23,7	107,80	12,98	-	2,71	-	52,93	105,64	165,03	-	27,01	-	1,38	-
24,7	460,06	107,84	1,51	82,34	0,98	89,55	391,55	452,62	-	39,46	5,88	79,06	0,04
25,7	153,33	73,40	-	1,41	1,06	67,30	447,15	383,04	-	9,68	3,53	0,12	-
26,6	89,48	30,94	-	5,19	-	175,30	91,36	214,57	-	1,07	-	-	-
27,5	201,95	188,00	2,85	6,05	-	127,94	237,79	356,30	2,34	1,09	-	4,23	-
28,8	162,08	24,41	-	3,53	1,79	134,24	102,14	212,79	-	1,06	-	0,68	-
29,7	250,60	78,63	0,73	5,87	0,32	95,83	404,00	571,36	-	24,17	0,41	32,43	-
30,8	263,35	94,91	1,07	-	1,00	248,76	375,71	578,71	-	8,20	0,58	-	-
31,8	137,69	43,88	-	-	5,26	41,18	291,36	231,63	-	6,72	-	-	-
33,1	188,28	57,91	2,49	-	-	0,68	127,33	294,60	-	13,05	-	-	-

- Non détecté

Tableau 71 : Evolution des concentrations de COV dans le biogaz du casier Bioréacteur

Durée					C	oncentrati	on en mg.Nm ⁻³	1					
d enfouissement (en mois)	Alcanes	Cycloalcanes	Alcènes	Alcools	Aldéhydes	Cétones	Aromatiques	Terpènes	Soufrés	Chlorés	Furanes	Acides	Esters
0,2	1372,65	24,12	-	3,32	-	-	371,31	7,80	100,06	132,49	-	-	-
1,6	2711,98	110,02	0,80	7,22	-	33,80	986,87	29,46	3,76	595,43	-	-	12,77
2,8	5074,19	98,84	0,66	-	-	8,10	268,91	13,03	-	1085,60	-	-	-
3,2	692,97	32,58	0,61	-	0,08	5,49	152,37	23,51	1,72	21,93	-	-	-
7,9	299,21	16,89	-	-	3,19	11,42	101,10	0,48	0,77	133,25	-	-	-
8,5	99,63	40,63	0,51	-	0,25	0,01	27,22	18,05	0,47	52,09	0,25	-	-
9,7	156,88	40,85	-	-	1,91	102,22	25,11	41,01	8,89	-	-	-	-
10,6	68,40	1,27	-	-	4,46	4,10	3,56	9,46	-	6,23	-	-	-
11,2	611,46	44,52	27,95	3,01	4,52	6,03	90,92	32,33	2,75	47,29	3,71	-	-
12,6	44,42	22,53	3,41	1,81	0,50	10,47	20,84	32,19	0,77	-	1,90	-	-
13,3	245,04	5,98	-	-	-	33,91	23,10	13,88	-	21,99	-	-	-
14,3	484,46	3,07	-	-	-	-	96,47	-	-	243,74	-	-	-
15,4	462,51	10,50	0,06	28,02	-	41,25	40,99	22,84	-	76,95	-	-	-
16,8	258,73	16,96	-	9,51	0,53	39,58	28,26	26,98	1,71	39,16	0,30	-	21,25
17,5	747,32	70,81	-	98,43	0,12	92,11	116,33	92,70	4,91	8,31	-	-	77,40
18,6	853,08	109,82	2,31	324,09	1,73	145,58	174,08	150,71	6,32	29,18	-	-	84,26
19,8	735,18	31,36	2,30	225,40	-	112,05	325,80	61,07	-	46,44	-	-	35,44
20,7	614,40	139,57	3,01	98,24	0,49	59,30	322,67	164,99	2,53	76,90	0,05	-	69,77
22,6	400,07	150,14	1,06	119,27	3,59	88,64	313,21	210,20	17,93	43,02	-	2,61	113,47
23,7	1865,13	167,24	1,86	205,68	0,56	173,60	600,99	248,47	3,35	937,88	-	-	200,09
24,7	494,83	128,23	1,33	119,58	1,25	68,57	340,73	296,34	9,64	23,59	-	-	258,01
25,7	390,53	105,09	1,44	148,13	0,76	39,60	351,62	301,49	4,41	11,30	-	2,19	256,49
26,6	371,37	126,57	5,27	168,25	-	51,76	223,39	211,75	6,23	4,73	-	-	384,18
27,5	293,29	96,37	8,74	111,19	14,35	46,38	188,11	180,84	2,85	6,22	12,54	-	117,93
28,8	121,95	35,41	-	19,71	-	17,54	69,78	85,77	-	2,65	-	-	13,76
29,7	385,16	106,64	3,45	85,61	0,68	35,52	366,68	284,28	-	56,33	0,65	-	48,92
30,8	334,61	148,69	-	34,46	0,21	52,87	394,51	343,50	-	4,04	2,14	-	55,99
31,8	304,85	116,02	0,22	78,14	1,33	30,69	351,65	291,47	1,87	5,76	-	-	58,82
33,1	119,69	27,02	0,99	32,71	0,31	19,61	147,34	123,46	-	3,58	-	-	8,28

- Non détecté

Tableau 72 : Evolution des concentrations de COV dans le biogaz du casier Témoin

Durée d'enfouissement					C	oncentrati	on en mg.Nm ⁻³						
(en mois)	Alcanes	Cycloalcanes	Alcènes	Alcools	Aldéhydes	Cétones	Aromatiques	Terpènes	Soufrés	Chlorés	Furanes	Acides	Esters
0,5	1027,29	33,73	-	-	0,57	1,70	396,07	0,86	0,28	259,86	-	-	-
5,2	234,05	4,99	-	0,13	0,42	-	31,02	3,57	-	41,95	-	-	-
5,8	115,56	11,44	0,02	1,32	0,30	0,03	6,27	0,66	4,65	25,77	0,12	-	-
7,0	61,41	24,79	0,96	-	2,11	5,18	10,83	11,58	0,99		1,00	-	0,88
7,9	33,87	0,14	-	-	-	5,20	8,14	3,24	-	1,06	-	-	-
8,5	194,06	17,32	3,27	5,22	3,13	6,42	37,60	10,81	-	5,53	-	2,96	2,91
9,9	30,43	1,52	-	0,18	0,51	0,87	15,41	4,29	-		0,27	-	0,04
10,7	81,03	0,32	-	-	-	-	25,25	-	-	22,15	-	-	-
11,6	450,88	-	-	-	-	-	81,59	-	-	237,33	-	-	-
12,7	296,77	1,62	-	-	-	-	70,23	5,68	-	134,41	-	-	-
14,1	74,40	1,15	-	2,48	1,53	0,60	29,24	0,53	0,11	62,86	1,35	-	0,98
14,8	20,13	5,23	2,17	0,48	0,76	2,06	52,21	6,00	0,20	184,31	0,56	-	-
15,9	88,11	4,72	4,26	1,19	3,49	1,20	69,31	17,79	-	17,86	-	-	-
17,1	305,88	10,30	-	-	-	6,41	420,45	14,22	-	27,57	-	-	2,08
18,0	285,24	11,36	8,58	0,73	1,21	2,01	249,11	29,23	-	27,78	0,03	-	3,56
19,9	114,23	4,01	4,14	7,12	1,09	7,41	118,34	6,73	0,30	34,37	-	1,92	3,95
21,0	64,35	11,52	1,53	0,93	4,22	5,62	59,57	12,90	-	12,46	-	1,89	0,64
22,0	281,26	17,57	0,87	2,68	2,55	11,59	164,34	48,25	-	10,82	0,27	0,36	0,61
23,0	175,49	58,44	0,80	-	1,06	61,72	419,08	367,68	-	19,74	3,53	-	1,48
23,9	35,78	2,45	4,93	-	-	0,07	24,82	8,11	-	1,18	-	-	-
24,9	40,92	11,66	5,34	-	4,62	0,14	46,95	15,54	-	0,88	-	2,19	-
26,1	18,96	2,85	1,22	0,57	-	-	14,61	10,34	-	0,86	-	-	-
27,0	48,29	11,97	5,44	0,75	4,30	0,40	56,38	20,03	-	1,45	-	-	-
28,1	184,54	6,13	3,39	-	-	0,15	22,19	13,09	-	2,77	-	-	-
29,1	39,68	18,21	4,46	-	3,82	-	40,26	17,42	-	2,59	-	1,34	1,64
30,4	16,68	3,71	1,40	-	-	-	10,22	4,94	-	1,87	-	-	-

- Non détecté

Tableau 73 : Evolution des concentrations de COV dans le biogaz du casier PTB1

Durée d'enfouissement					C	oncentrati	on en mg.Nm ⁻³						
(en mois)	Alcanes	Cycloalcanes	Alcènes	Alcools	Aldéhydes	Cétones	Aromatiques	Terpènes	Soufrés	Chlorés	Furanes	Acides	Esters
2,2	163,17	1,67	-	0,01	0,60	-	16,75	0,93	-	14,53	-		0,41
2,8	70,96	0,75	0,35	6,87	0,54	0,93	8,37	0,76	0,08	13,10	-	-	-
4,0	53,69	5,08	2,61	1,97	1,92	-	4,77	3,49	1,62	0,83	-	-	-
4,8	35,95	-	-	-	-	-	0,96	2,49	-	3,33	-	-	-
5,5	399,58	20,38	2,16	1,47	3,13	5,67	61,54	11,48	1,41	95,75	-	1,79	-
6,9	6,89	0,61	0,40	0,68	0,41	0,40	0,96	1,58	-		-	-	-
7,6	89,21		-	-	-	-	12,88	-	-	22,17	-	-	-
8,6	304,95		-	-	-	-	64,41	-	-	228,30	-	-	-
9,7	323,65	0,66	-	-	-	-	73,44	-	-	134,14	-	-	-
11,0	57,76	0,32	0,26	1,38	0,51	0,41	21,95	1,01	0,17	79,21	0,59	0,13	0,29
11,8	10,90	0,75	8,37	0,41	0,19	2,11	17,52	1,79	0,29	4,45	0,65	1,18	-
12,9	103,60	1,67	6,63	11,71	0,79	33,61	65,22	13,04	-	23,34	-	-	0,05
14,0	268,65	7,84	-	3,78	-	9,83	347,91	11,58	-	-	-	-	1,57
15,0	326,80	6,03	4,96	-	1,28	3,85	236,24	13,29	-	41,73	0,43	-	4,88
16,8	5,13	1,09	-	8,42	1,25	-	11,26	3,22	-	2,77	-	0,23	-
18,0	38,23	5,21	12,71	3,06	0,36	6,97	33,34	6,71	-	15,07	-	1,05	0,73
18,9	28,40	1,59	3,76	0,73	1,84	3,03	33,53	4,45	-	12,30	-	-	0,88
20,0	41,01	8,99	1,27	50,24	2,28	15,80	758,10	4,10	-	16,19	-	-	1,40
20,9	16,82	3,12	6,52	-	1,85	0,88	10,14	2,13	-	1,03	-	1,02	-
21,8	18,35	5,11	5,41	-	3,08	4,99	22,72	6,32	-	1,39	-	-	-
23,0	5,10	0,33	0,99	0,40	-	-	2,23	3,73	-	0,73	-	-	-
24,0	19,11	2,45	4,27	0,10	0,58	0,31	16,90	8,47	-	1,68	0,24	-	-
25,1	52,92	7,94	9,93	-	4,99	4,99	17,95	4,99	-	2,46	-	-	0,04
26,0	27,64	4,49	5,70	-	1,62	2,66	14,81	8,04	-	3,89	1,15	-	-
27,4	15,79	0,51	2,18	-	-	-	5,38	3,46	-	2,35	-	-	-

- Non détecté

Tableau 74 : Evolution des concentrations de COV dans le biogaz du casier PTB2

Annexe 3 : Casier Bioréacteur

A3.1 : Evolution de la qualité du lixiviat recirculé

Les analyses de lixiviats dans la cuve de stockage ont été effectuées mensuellement à partir du 14ème mois de stockage. La dilution opérée au mois 12,6 n'est donc pas mise en évidence. Les mesures ayant servi au calcul des bilans de flux de pollution à la fin de chaque période de recirculation (calcul du Δ cuve, cf. Tableau 76) sont indiquées par un astérisque dans le Tableau 75. La dilution effectuée au début de la seconde période de recirculation (mois 17,5) est mise en évidence par une diminution de toutes les concentrations.

Durée enfouissement	рН	Cond.	AGV*	сот	СІТ	DCO	N _{total}	NO3 ⁻	${\rm NH_4}^+$	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Fe	P _{total}	\$04 ²⁻	CI.
Mois		µS.cm⁻¹	mg.L ⁻¹	mg (C.L ⁻¹	mg O₂.L ⁻¹	n	ng N .L	-1		mg.L ⁻¹		mg P.L ⁻¹	mg	.L ⁻¹
14,2	6,00	36 700	38 073	31 960	4 000	79 382	3 971	20	-	4 503	422	392	32	1 572	4 400
15,2	5,98	36 800	38 080	30 943	2 952	76 858	4 773	20	5354	4 300	391	780	29	1 846	6 584
17,5°†	6,09	37 300	6 753	13 523	824	41 500	1 910	5	650	2 220	230	200	12	920	1 540
21†	6,24	36 500	29 800	24 504	2 932	77 092	4 525	20	3218	4 597	473	120	7	1 962	1 558
21,9	6,62	36 100	8 400	19 530	884	61 443	4 181	17	3645	2 849	406	170	11	902	1 059
23,8	8,14	23 400	-	3 504	-	11 023	2 301	11	2427	198	409	39	16	768	1 119
24,7	8,74	27 200	-	1 946	-	7 092	3 313	13	3010	2	185	289	22	640	-
26,1	8,92	26 800	1 000	1 128	1 678	5 690	3 971	12	2875	80	160	24	16	568	2 476
27,0 [†]	9,06	28 200	800	1 074	1 676	5 417	3 189	13	2760	113	138	21	13	490	2 614
28,0	8,38	26 100	1 200	1 130	1 446	5 699	2 683	15	2198	64	114	21	19	545	2 287
29,1	8,21	29 800	1 000	1 351	1 636	6 810	3 609	20	2927	78	123	25	29	779	2 814
30,1	8,49	29 700	1 200	1 293	1 658	6 522	4 124	20	2885	35	116	28	21	6 224	2 819
31,2 [†]	8, <i>4</i> 8	30 400	800	773	1 700	6 323	3 322	22	3093	23	89	17	18	483	2 952
32,4	8,35	21 000	600	561	1 140	4 590	2 348	17	1614	34	56	13	23	364	1 939
33,1	8,39	23 400	1 000	607	1 284	4 964	2 501	21	2271	32	53	12	27	430	2 190
34,1	8, <i>4</i> 8	27 200	-	769	1 576	6 292	3 418	30	2937	30	52	15	36	562	2 742

* éq acide acétique 🔹 analyse après ajout d'eau (dilution) [†] analyses utilisées pour le bilan des phases de recirculation

A3.2 : Détails des flux de polluants émis durant les différentes périodes de recirculation

Les flux de polluants correspondant au lixiviats évacués du système ainsi que les bilans pour chaque phase de recirculation sont présentés dans le Tableau 76.

Le bilan total qui a été présenté dans le manuscrit dans le chapitre III.2.5.1 de la partie 3 a été établi en additionnant les flux de polluants évacués et la pollution contenue dans la cuve de stockage des lixiviats à la fin de la 4^{ème} période de recirculation.

Tableau 75 : Evolution de la qualité du lixiviat dans la cuve de stockage des lixiviats

Queve 548 1008 67 3371 155 0 53 180 19 16 1 51.66^{-1} 91.66^{-1} </th <th>LR* LP*</th> <th>LE* EA*</th> <th></th> <th>NOLT</th> <th>AGV</th> <th>СОТ</th> <th>СТ</th> <th>DCO</th> <th>N_{total}</th> <th>NO³</th> <th>NH₄⁺</th> <th>Ca²⁺</th> <th>Mg²⁺</th> <th>Fe</th> <th>P_{total}</th> <th>SO4²⁻</th> <th>Ċ</th>	LR* LP*	LE* EA*		NOLT	AGV	СОТ	СТ	DCO	N _{total}	NO ³	NH₄ ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Fe	P _{total}	SO4 ²⁻	Ċ
Actuve 548 1098 67 3371 155 00 53 180 19 16 17 75 125Actuve 548 1098 67 3371 155 103758 196 17152 202 24121775 125TOTAL PHASE 191 2845 210 7129 2845 210 7129 351 1101010101029TOTAL PHASE 2191 2845 213 713 1378 713103 713 71205 382 43232 72238 732629TOTAL PHASE 2191 2845 213 713 713113 71205 382 732323232929Actuve 158 156 15117 490 26071242424232920Actuve 218 158 150 151117 490 26010102424232920Actuve 218 158 150 230 230 230 230 230 230 230 230 230 23	-1 S				g.t _{MS} ⁻¹	g C.t	-1 -MS	g O ₂ t _{MS} ⁻¹		g N.t _{MS} ⁻¹			g.t _{MS} ⁻¹		g P.t _{MS} ⁻¹	g.t _v	-1 S
$\Delta cuve$ 548109867337115505316015161775125 $T0TAL FHASCE$ 143375819611522022412148617 $T0TAL FHASCE$ 143375819611205351142053511617297 $T0TAL FHASCE$ 28452107129371712053521017297129 $\Delta cuve$ 5643131397107967171712936 $\Delta cuve$ 1581561740240240079771717172 $\Delta cuve$ 2141425302401721362021717371 $\Delta cuve$ 2141425302401121362021717271 $\Delta cuve$ 2141425302401721362021237171 $\Delta cuve$ 2141425302401121362021232371 $\Delta cuve$ 214142530240112136202123<		100 million (100 m				PHA	SE 1										
Lix. Evacue164317471433758196115220224121686172TOTAL PHASE210128452107129351120538243282161297Acuve564313193977107951014414396796797Acuve564317490260792311777Acuve1581561749026017243320107Acuve1581611051707243321213139Acuve214142143530240137221122Acuve214142142530240137221223Acuve21414253024013722222333Acuve2141421425302401372222333Acuve2141421425302401322222333Acuve214142142142142142121212223 <td>55,8 195,6</td> <td>Ψ.</td> <td>סכו</td> <td>лче</td> <td>548</td> <td>1098</td> <td>67</td> <td>3371</td> <td>155</td> <td>0</td> <td>53</td> <td>180</td> <td>19</td> <td>16</td> <td>1</td> <td>75</td> <td>125</td>	55,8 195,6	Ψ.	סכו	лче	548	1098	67	3371	155	0	53	180	19	16	1	75	125
TOTAL PHASE219128452107129351120538243282161297Acuve5-643-13-1939-7107-95-10-14-1-38-96Lix. Évacué1581561734902660026071071-122329Acuve158-13-139-7107295-10-14959696TOTAL PHASE158156174902660026071171728-38ToTAL PHASE16361105913502402402432437221171728151Acuve214142142142143143143143143143143143143143143143141143133151133151133151133151133151133151133151133153153153153153153153153153153153153153153153153 <th< td=""><td>2 -</td><td></td><td>Lix. É</td><td>vacué</td><td>1643</td><td>1747</td><td>143</td><td>3758</td><td>196</td><td>1</td><td>152</td><td>202</td><td>24</td><td>12</td><td>1</td><td>86</td><td>172</td></th<>	2 -		Lix. É	vacué	1643	1747	143	3758	196	1	152	202	24	12	1	86	172
PHARE 2 C	57,8 195,6	9	TOTAL	PHASE	2191	2845	210	7129	351	1	205	382	43	28	2	161	297
A cuve 5 -643 -13 1930 771 0 7 -95 -10 -14 -1 -38 -96 Lix. Évacué 158 156 17 490 26 0 19 24 3 2 0 10 7 771 -187 -487 490 26 0 19 24 3 2 0 10 7 771 -487 -487 -4149 -45 0 26 0 76 -72 0 10 72 A cuve -498 -381 61 -1059 135 1 120 -78 1 -71 -71 213 215 A cuve 214 142 142 530 240 1 213 66 20 3 1 3 151 $TOTAL PHASE$ 214 142 142 520 240 1 213 66 20 3 3 1 3 $TOTAL PHASE214142233223233223233223223293323TOTAL PHASE244233513212026112012021123212TOTAL PHASE143133112120120211120120212212212212212212212212212212212$						PHA	SE 2										
Lix. Fvacue15815617490260192432010107TOTAL PHASE163-4874-1449-45026717724242839TOTAL PHASE	2,5 28,5	Б	Φci	лче	5	-643	-13	-1939	-71	0	7	-95	-10	-14	<u>-</u>	-38	-96
TOTAL PHASE 163 -487 4 1-149 -45 0 26 71 7 12 12 28 89 Acuve -498 381 61 1059 135 1 213 57 1 -1 1 -1 28 18 19 Acuve -498 381 61 1059 135 1 213 65 20 33 17 33 139 Lix. Évacué 214 142 530 240 1 213 65 203 33 139 139 VOTAL PHASE -284 -233 203 5329 375 2 343 72 2 1 33 139 139 VOTAL PHASE -284 -333 251 203 353 234 235 236 239 239 230 230 230 230 231 235 23 23 23 23 23 <	4,3 -		Lix. É	vacué	158	156	17	490	26	0	19	24	з	2	0	10	7
PHASE 3 Acuve -498 -381 61 1059 135 1 130 778 1 1 1 3 151 Lix. Evacue 214 142 530 240 1 213 6 20 3 139 139 TOTAL PHASE -284 -132 530 240 1 213 6 20 3 139 139 TOTAL PHASE -284 -239 230 240 1 213 6 20 3 139 139 TOTAL PHASE -284 -33 529 375 2 343 -72 21 2 36 290 Acuve -22 -42 -112 -82 0 -62 -7 6 -1 2 36 290 Lix. Évacué 36 45 53 107 2 4 1 1 2 3 105 TOTAL PHASE 14	6,8 28,5	5	TOTAL	PHASE	163	-487	4	-1449	-45	0	26	-71	<i>L</i> -	-12	-1	-28	-89
Δ cuve -498 -381 61 -1059 135 1 130 -78 1 1 1 3 151 Lix. Évacué 214 142 142 530 240 1 213 6 20 3 1 3 <td< td=""><td></td><td></td><td></td><td></td><td></td><td>PHA</td><td>SE 3</td><td></td><td></td><td></td><td></td><td></td><td></td><td></td><td></td><td></td><td></td></td<>						PHA	SE 3										
Lix. Évacué 214 142 142 530 240 1 213 6 20 3 1 39 139 139 $TOTAL PHASE$ $\cdot 284$ $\cdot 239$ 529 375 2 343 $\cdot 72$ 2 2 3 3 <	1,5 65,5	5	₽CI	лче	-498	-381	61	-1059	135	1	130	-78	1	-1	1	-3	151
TOTAL PHASE -234 -239 520 375 2 343 -72 2 2 3 3 -72 2 2 3 3 2 2 2 3 3 2 3 3 3 3 -72 2 2 3	64,3 -		Lix. É	vacué	214	142	142	530	240	1	213	9	20	3	1	39	139
Acuve -22 -45 -112 -82 0 -66 -1 0 -14 -58 Lix. Évacué 36 45 63 251 120 1 107 2 4 1 1 123 105 IX. Évacué 36 45 53 251 120 1 107 2 4 1 1 23 105 IX. Évacué 36 18 139 38 1 45 -5 -2 0 1 23 105 47 SILA. APRES 18 139 38 1 45 -5 -2 0 1 9 47 Lix. Évacué 33 32 70 261 137 1 128 1 20 122 Lix. Évacué 2051 2050 582 3 491 234 51 18 3	65,8 65,5	2	TOTAL	PHASE	-284	-239	203	-529	375	2	343	-72	21	2	2	36	290
Acuve -22 -42 -45 -112 -82 0 -62 -7 -6 -1 0 -14 -58 Lix. Évacue 36 45 63 251 120 1 107 2 4 1 1 1 23 105 OTAL PHASE 14 33 251 120 1 45 -5 2 4 1 1 23 105 OTAL PHASE 14 33 38 1 45 -5 -2 0 1 9 47 BILAN APRES 4 PHASES DE RECIRCULATION 38 1 45 -5 -2 0 1 9 47 Jixiviat cuve 33 32 70 261 137 1 128 1 14 10 12 12 12 12 12 12 12 12 12 12 12 12 12 12 12 12 1						PHA	SE 4										
Lix. Évacué 36 45 63 251 120 1 107 2 4 1 1 23 105 TOTAL PHASE 14 3 18 139 38 1 45 -5 -2 0 1 9 47 TOTAL PHASE 14 3 18 139 38 1 45 -5 -2 0 1 9 47 ALMARE 1 3 32 70 261 137 1 128 1 4 1 1 1 20 122 Lixiviat cuve 33 32 70 261 137 1 128 1 4 1 1 20 122 Lixiviat cuve 2051 200 365 5029 582 3 491 234 51 18 403 3 158 423	16,8 23,7	7	Act	лче	-22	-42	-45	-112	-82	0	-62	-7	-6	-	0	-14	-58
TOTAL PHASE 14 3 18 139 38 1 45 -5 -2 0 1 9 47 BILAN APRES 4 PHASES DE RECIRCULATION Lixiviat cuve 33 32 70 261 137 1 128 1 41 1 1 1 20 122 Lixiviat cuve 33 32 70 261 137 1 128 1 4 1 1 20 122 Lixiviat cuve 2051 2502 582 3 491 234 51 18 30 128 423	20,7 -		Lix. É	vacué	36	45	63	251	120	1	107	2	4	1	1	23	105
BILAN APRES 4 PHASES DE RECIRCULATION Lixiviat cuve 33 32 70 261 137 1 128 1 4 1 1 20 122 Lix. Évacué 2051 2090 365 5029 582 3 491 234 51 18 423 423	37,5 23,7	~	TOTAL	PHASE	14	З	18	139	38	1	45	-5	-2	0	1	6	47
Lixiviat cuve 33 32 70 261 137 1 128 1 4 1 1 20 122 122 Lix.Évacué 2051 2090 365 5029 582 3 491 234 51 18 3 158 423				BILAN /	APRES 4	4 PHASE	S DE RE	CIRCULA	TION								
Lix. Évacué 2051 2090 365 5029 582 3 491 234 51 18 3 158 423	167 8 313 3	2	Lixivia	it cuve	33	32	70	261	137	1	128	1	4	1	1	20	122
	0,010 0,101	ŗ	Lix. É	vacué	2051	2090	365	5029	582	m	491	234	51	18	с	158	423

Tableau 76 : Flux de polluants émis par voie liquide durant les différentes phases de recirculation

Annexe 4 : Emissions de N_2O pour les casiers PTB 1 et PTB 2



L'évolution des concentrations de N_2O dans le biogaz des casiers PTB1 et PTB2 ainsi que les flux émissifs associés sont présentés dans les Graphique 36 et Graphique 37.

Graphique 36 : Evolution de la teneur en N₂0 du biogaz du casier PTB1 et flux émissif associé



Graphique 37 : Evolution de la teneur en N₂0 du biogaz du casier PTB2 et flux émissif associé

Annexe 5 : Evolution des paramètres majoritaires des lixiviats des casiers de stockage

A5.1 : Casier Témoin



Graphique 38 : Evolution de la DCO, des AGV, des NH₄⁺ et du pH dans les lixiviats du casier Témoin



A5.2 : Casier Bioréacteur

Graphique 39 : Evolution de la DCO, des AGV, des NH_4^+ et du pH dans les lixiviats du casier Bioréacteur

A5.3 : Casier PTB1



Graphique 40 : Evolution de la DCO, des AGV, des NH_4^+ et du pH dans les lixiviats du casier PTB1

A5.4 : Casier PTB2



Graphique 41 : Evolution de la DCO, des AGV, des NH_4^+ et du pH dans les lixiviats du casier PTB2

Annexe 6 : Méthodes d'analyse statistique utilisées pour les émissions de COV des casiers de stockage

A6.1 : Analyse en Composantes Principales (ACP)

La représentation de l'ACP réalisées sur les 13 familles chimiques est donnée dans le Graphique 42 .



Graphique 42 : Représentation des vecteurs propres dans les 3 plans factoriels et visualisation de l'espace 3D

A6.2 : Régression Linéaire multiple

La régression linéaire multiple (RLM) est une extension de la régression linéaire simple qui permet de prendre en compte plusieurs variables indépendantes plutôt qu'une seule. Cette technique est adaptée au présent problème puisqu'elle permet de rechercher l'effet de plusieurs variables qualitatives liées aux conditions expérimentales sur les émissions des différents groupes de composés. Pour chaque groupe de composés, le principe est de construire un modèle qui permette d'estimer la concentration du groupe considéré en fonction des variables qualitatives choisies (conditions expérimentales).

Si le système suivant est posé :

où Y_i est la i^{ème} observation de la variable dépendante (concentration du groupe de composé) et où x_{ji} est la i^{ème} observation de la j^{ème} variable indépendante (conditions expérimentales). Alors, le modèle de régression linéaire multiple est donné par :

$$Y_{i} = \beta_{0} + \beta_{1} x_{1i} + \beta_{2} x_{2i} + \dots + \beta_{p'} x_{p'i} + \varepsilon_{i}$$

Dans ce modèle, β_0 est la valeur moyenne de Y_i lorsque les $x_{1i},...,x_{p'i}$ prennent toutes simultanément la valeur 0, elle est nommée référence ou constante. Chaque coefficient β_j représente la variation dans la moyenne de Y_i lorsque le facteur x_j augmente d'une unité et que la valeur de toutes les autres variables indépendantes reste constante. Les β_j caractérisent donc l'influence des facteurs x_j sur la variation des Y_i par rapport à la référence β_0 .

La régression se développe en trois parties :

• La première a pour objectif de construire le modèle en vérifiant les différents postulats qui permettent l'utilisation du modèle linéaire. Cette validation permet de juger de la pertinence de la régression et de savoir s'il est utile d'avancer dans l'exploitation des résultats. Cette étape est fondamentale dans le sens où c'est le fondement de l'analyse de données qui donne de la robustesse aux éventuelles hypothèses et conclusions émanant de l'analyse.

• Les n valeurs observées, Y_1, \ldots, Y_n , de la variable dépendante ne sont pas toutes égales et présentent une certaine variabilité. La seconde étape consiste à évaluer à quel point le modèle construit permet d'expliquer la variabilité de la série de données et au contraire quelle part est due à la fluctuation aléatoire, le but étant que le modèle permette d'expliquer la plus grande part de la variabilité à partir des variables indépendantes. Il existe différentes méthodes pour estimer l'importance de la régression dans l'explication de la variabilité : par exemple le cœfficient de régression linéaire entre les valeurs prédites (calculées par le modèle) et les valeurs observées (valeurs expérimentales), ou encore, la somme des carrés de la régression et des résidus qui traduisent directement la variabilité expliquée et la fluctuation aléatoire.

• La troisième étape d'exploitation des informations délivrées par la régression linéaire multiple prend alors tout son sens si les deux premières étapes ont été validées. Seule cette partie est présentée dans la partie Résultats (chapitre IV).

Préparation des données

Les variables dépendantes ont été obtenues en additionnant simplement les données brutes constituées par les concentrations des différents groupes de composants définis par les deux ACP (groupes 1, 2, 3).

Les variables indépendantes ont été présentées dans le Tableau

La régression linéaire multiple étant un calcul matriciel, les facteurs qualitatifs ont dû être codés. Cela n'a pas posé de problème pour le facteur « recirculation » car il prend deux niveaux, « non » et « oui », qui ont été respectivement codés 0 et 1. En revanche, les facteurs « température », « Biologie » et « prétraitement » comportent respectivement 4, 6 et 3 niveaux et ont subi une transformation. Il n'est en effet pas possible d'attribuer pour chaque niveau une valeur numérique car ceci revient à transformer une donnée qualitative en une donnée quantitative.

Ces facteurs ont été éclatés en autant de facteurs qu'ils comportent de niveaux moins 1. Par exemple, le facteur « température » a été éclaté en 3 facteurs correspondant respectivement au niveau 2, 3 et 4 du facteur initial, le premier niveau (T < 20 °C), qui participera à la définition de la référence, correspond au cas où les trois nouveaux facteurs prennent la valeur 0. Pour illustrer cette transformation de facteur, le codage du premier point de mesure du casier Témoin ainsi que les derniers des casiers Bioréacteur et PTB2 sont présentés dans le Tableau 77. La régression linéaire multiple est basée sur 111 observations qui chacune comporte 3 valeurs dépendantes correspondant aux concentrations des 3 groupes et 11 variables indépendantes présentées dans le Tableau 77.

Facteurs Observations	T = 20 - 30 °C	^T = 30 - 40 °C	7 > 40 °C	^{CQ2} > 0; CH4 = 0	0 < CH4/CO2 < 1	CH4/CO2 > 1	CH4/CO2 > 1 + EA	CH4/CO2 < 1 + EA	Prét. _I	Prét. I+M	Recirculation
1er point Témoin	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
Dernier point BR	0	0	1	0	0	1	0	0	0	0	1
Dernier point PTB2	0	0	1	0	0	0	0	1	0	1	0

Tableau 77 : Matrice codée pour la régression linéaire multiple

Annexe 7 : Tests de lixiviation effectués sur les déchets stabilisés

A6.1 Déchets stabilisés avant et après incubation (Morais et al., 2005, 2006)

Les tests de lixiviation présentés ci-dessous ont été réalisés par le LAEPSI dans le cadre d'une collaboration avec le CRP. Les déchets prétraités ont été fournis par le CRP au LAEPSI pour la conduite d'une caractérisation bio-physico-chimique et de tests d'incubation en conditions anaérobies dans des réacteurs de simulation de stockage d'environ 70 L. Des tests de lixiviation, décrit dans la partie 2, chapitre V.2.5, ont été menés sur les déchets prétraités PTB1 et PTB2 avant et après l'incubation. L'incubation, qui a duré 382 jours, a permis la production du potentiel de biogaz résiduel des déchets prétraités. Les déchets ont subi pendant cette période une simulation de pluie équivalente à celle appliquée sur les casiers PTB1 et PTB2. Les tests de lixiviation après incubation correspondent donc au potentiel de relargage des déchets après la phase active de méthanogénèse. Les résultats sont présentés dans le Tableau 78.

Dáchat	PT	B1	РТ	B2
Dechet	Avant incubation	Après incubation	Avant incubation	Après incubation
рН	8,1 ± 0,1	8,6 ± 0,1	8,3 ± 0,1	8,5 ± 0,1
Cond. (µS.cm ⁻¹)	2350	1620	2140	1560
COT(mg.L ⁻¹)	634	244	366	302
DCO (mg $O_2.L^{-1}$)	1900	970	1100	1160
$DBO_5 \ (mg\ O_2.L^{-1})$	322	181	151	120
DBO ₅ /DCO	0,17	0,19	0,14	0,10
NTK (mg.L ⁻¹)	124	112	146	140
NH_4^+ (mg.L ⁻¹)	80	56	48	28
SO ₄ ²⁻ (mg.L ⁻¹)	404	209	481	223

Tableau 78 : Résultats des tests de lixiviation pratiqués sur les déchets PTB1 et 2 avant et après incubation