

Etude de la diffusion et l'adsorption des contaminants dans les sols Algériens

Abdelillah. Bezzar*, Fouad Ghomari*

*Laboratoire Eau et Ouvrages dans Leur Environnement
Université Aboubekr belkaïd, Département de Génie Civil,
BP 230 Chetouane Tlemcen, Algérie 13000.



2011 Pan-Am CGS
Geotechnical Conference

ABSTRACT

This is a hydraulic and geochemical study on 2 materials: natural clay (AN) and a regenerated material made up of a sand-bentonite (SB) mixture. The hydraulic part allowed us to conclude that a 10% industrial bentonite content mixed with sand offers hydraulic properties that are similar to those of AN material and are lower than the required standards. The geochemical properties of both AN and SB matrixes are comparable with those of some of the synthetic leachates studied. Furthermore, the Langmuir model helped us to identify the adsorption capacities of both matrixes with the following selectivities: $Pb > Cu > Cd > Zn$. We develop in second technical aspects associated with electrical conductivity measurements within landfill liners. The conductivity measurements were used to quantify the pore fluid concentration and effective diffusion coefficient of (SB) liners. The material (SB) can be used as landfill liners because they have a permeability less than recommended and high adsorption capacity.

RÉSUMÉ

Il s'agit d'une étude hydraulique, géochimique et de diffusion sur deux matériaux : une argile naturelle (AN) et un matériau reconstitué composé d'un mélange sable bentonite (SB). La partie hydraulique nous a permis de conclure que la teneur de 10% de bentonite industrielle mélangé au sable, offre des propriétés hydrauliques comparables au matériau AN et sont inférieures aux normes requises. Les propriétés géochimiques des deux matrices (AN) et (SB) sont comparables vis-à-vis de quelques lixiviats synthétiques étudiés. Aussi, le modèle Langmuir nous a permis d'identifier les capacités d'adsorption des deux matrices avec les sélectivités suivantes : $Pb > Cu > Cd > Zn$. Nous développons, dans la dernière partie, une méthode non destructive permettant la mesure de la diffusion dans ces matériaux. La conductivité électrique est utilisée pour quantifier la concentration dans les pores et le coefficient de diffusion de la barrière (SB). Le matériau (SB) peut être utilisé comme barrière étanche puisqu'il offre une faible perméabilité et une capacité d'adsorption élevée.

Mots clef : Diffusion, Adsorption, Langmuir, Méthode non destructifs,

1 INTRODUCTION

Les solutions techniques de gestion des déchets ménagers solides sont diverses : le recyclage, l'incinération avec ou sans récupération d'énergie, l'enfouissement. Depuis 10 ans la solution développée en Algérie est l'enfouissement, avec une cinquantaine de centres d'enfouissement techniques (CET) réalisés sur la période.

Le principal risque environnemental lié à l'exploitation d'un CET est la contamination des nappes phréatiques du fait de l'infiltration des lixiviats chargés notamment de métaux lourds (Cd, Cu, Pb, Zn). Afin de prévenir ce risque, la réglementation algérienne requiert la mise en place sur le fond et les flancs des fosses d'enfouissement, d'une couche d'argile d'un mètre d'épaisseur dont la perméabilité à saturation doit être inférieure à 10^{-9} m/s^1 . Cette couche d'argile sert de barrière hydraulique et géochimique.

Dans le CET de Saf-SaF se situant dans la wilaya (région) de Tlemcen, la barrière argileuse a été réalisée avec une argile naturelle locale (notée AN). Les difficultés de compactage des argiles naturelles peuvent causer des

problèmes de fissures au sein de la barrière, puisque ces matériaux sont très sensibles à l'eau et par conséquent créent des chemins préférentiels d'infiltration des lixiviats.

Afin de palier à ces problèmes, un sable marin local d'utilisation courante en génie civil dans la région de Tlemcen pourrait être associé à une bentonite industrielle produite localement à Maghnia pour composer un mélange (noté SB) plus facile à mettre en œuvre. Les proportions de ce mélange ont été recherchées dans le cadre de cette étude afin d'atteindre la perméabilité réglementaire requise.

Ensuite, afin de comparer l'efficacité géochimique de AN et SB, une solution synthétique représentative des concentrations observées dans les lixiviats de CET au niveau international, a été constituée et mise en contact avec ces deux matrices à divers rapports de dilution. Les résultats de ces essais de sorption ont servi à ajuster les modèles d'isothermes d'adsorption de Freundlich et de Langmuir. Les paramètres des modèles ajustés ont été comparés à ceux de la littérature, permettant de calculer la capacité maximale théorique de fixation des métaux lourds par AN et SB. Enfin, le bilan des concentrations en solution dans les différents essais permet d'observer l'effet des deux matrices sur les lixiviats.

Ces sols argileux compactés présentent néanmoins un inconvénient, ils réduisent le transfert des

¹ Norme algérienne, 2002. Avant projet d'arrêté ministériel fixant les prescriptions techniques relatives au centre d'enfouissement techniques. Algérie.

contaminants sous gradient hydraulique ; en revanche, le mécanisme de transfert des polluants par diffusion moléculaire sous gradient de concentration devient important.

Un état de l'art sur les différents essais utilisés pour caractériser la diffusion dans les sols nous a permis de choisir l'essai le plus approprié pour simuler correctement le phénomène de diffusion à travers les barrières argileuses des CET. A cet effet, nous avons opté pour les essais de diffusion type colonnes où l'évolution du profil de concentration du polluant étudié par rapport à la profondeur est obtenue par des méthodes non destructives (suivie de la conductivité électrique) , L'ajustement de ces derniers par les modèles analytique et numérique nous a permis d'évaluer les coefficients de diffusion des échantillons testés qui reste comparable aux résultats obtenus dans la littérature par des méthodes destructives.

2 CARACTERISTIQUES DES MATERIAUX UTILISES

2.1 Caractéristiques physiques

Les principales caractéristiques géotechniques et physico-chimiques de l'argile naturelle et de la bentonite industrielle sont présentées dans le Tableau 1.

La bentonite constitue une barrière géochimique plus efficace que l'AN. Sa surface spécifique et sa capacité d'échange cationique (CEC) sont respectivement 5 fois et 3,7 fois supérieures à celles de l'AN.

L'Argile Naturelle (AN) représente respectivement des limites de liquidité, de plasticité et un indice de plasticité environ 6 fois, 2.5 fois et 15 fois inférieures à celles de la Bentonite. En revanche, ces paramètres sont de 1.08 fois, 1.15 fois et 1 fois supérieures à SB. Selon Daniel and Koerner (1995), Matrecon (1980) les sols les plus indiqués pour la construction de barrières d'étanchéité doivent présenter une limite de liquidité comprise entre 35 et 60%, une limite de plasticité comprise entre 15 et 30 % et des indices de plasticité compris entre 7 et 40 %.

Tableau. 1 Caractéristiques des argiles (Bezzar et al. 2010)

	(AN)	Bentonite
Limite de liquidité (%)	40	230,72
Limite de plasticité (%)	22	51,51
Indice de plasticité (%)	12	179,21
Surface spécifique (m ² /g)	116	579,76
CEC (meq/100g)	19,5	73

2.2 Caractéristiques hydrauliques

La perméabilité à saturation du matériau AN a été contrôlée. Elle est de $8,5 \times 10^{-11}$ m/s, conforme aux exigences réglementaires. La composition du mélange SB avec 10% bentonite offre une perméabilité $6,9 \times 10^{-11}$ m/s (Bezzar et al. 2010). Ce mélange a été utilisé pour l'ensemble de l'étude.

2.3 Caractéristiques géochimiques

Le lixiviat représente toutes eaux ayant percolé à travers les déchets stockés en décharge, il se charge ; ainsi d'éléments chimiques de différente nature. Les types des déchets stockés dans une décharge varient d'une décharge à une autre et d'un pays à un autre. Alors, les lixiviats produits ne peuvent être que différents. Nous avons préparé un lixiviat au laboratoire ayant les caractéristiques proches à ceux des décharges concernant le mode de préparation de ces lixiviats voire (Bezzar et al. 2010).

Tableau 2. Caractéristiques des lixiviats

Constituant			Concentration
Chlorure	Cl ⁻	mg/l	2624,5
Sulfate	SO ₄ ²⁻	mg/l	631
Nitrate	NO ₃ ²⁻	mg/l	345,2
Sodium	Na ⁺	mg/l	600
Potassium	K ⁺	mg/l	661
Magnésium	Mg ²⁺	mg/l	412,55
Calcium	Ca ²⁺	mg/l	1000,77
Cuivre	Cu ²⁺	mg/l	100
Zinc	Zn ²⁺	mg/l	100
Cadmium	Cd ²⁺	mg/l	100
Plomb	Pb ²⁺	mg/l	81,32

C. E. conductivité électrique

Ces lixiviats ont été mis en contact avec les deux sol avec un rapport liquide solide (L/S = 50 L.kg⁻¹) pendant 24 heures. Le taux d'adsorption donné dans l'équation 1 T a été calculé et représenté dans la figure 1.

$$T(\%) = \frac{C_i - C_f}{C_i} \quad [1]$$

C_i : Concentration initiale de l'élément,
C_f : Concentration finale de l'élément,

Sur la figure 1, nous pouvons constater que les deux matériaux semblent se comporter de la même façon, ce qui confirme que la bentonite industrielle à faible dose joue un rôle semblable à celui du deuxième matériau argileux avec une selectivité Pb>Cd>Cu>Zn (Vega et al., 2006) Nous remarquons aussi une fixation du Potassium pour les deux matériaux ce qui est conforme avec les résultats de (Christensen, 1992).

Dans ce cas, le potassium est normalement retenu dans une position non échangeable, ce qui explique les valeurs positives pour le Magnésium, Calcium et Sodium qui ont été certainement était remplacé par les métaux lourds. Nous remarquons aussi des valeurs positives des taux d'adsorption du Sodium qui a été remplacé principalement par les métaux lourds, le potassium, Calcium et le Magnésium.

En ce qui concerne les chlorures et les nitrates nous remarquons pour les deux matériaux ont des valeurs positives, sachant que ces ceux éléments ont une très forte mobilité dans le sol (Bagchi, 1994) il ne peut y avoir d'interaction avec ces matériaux, l'apport de ces éléments est surtout dû à la dilution d'éléments présents dans les matériaux étudiés.

Le comportement des matériaux vis-à-vis des différents éléments présents dans les solutions est relativement

identique et révèle des taux d'adsorption proches. Nous avons pris pour la suite des essais, le sol (SB) pour des raisons purement géotechnique lors de la réalisation, la mesure de la diffusion va se faire sur des solution contenant Na⁺ et Cl⁻ sachant que ces deux éléments n'ont pas réagis avec les deux sol déjà testé.

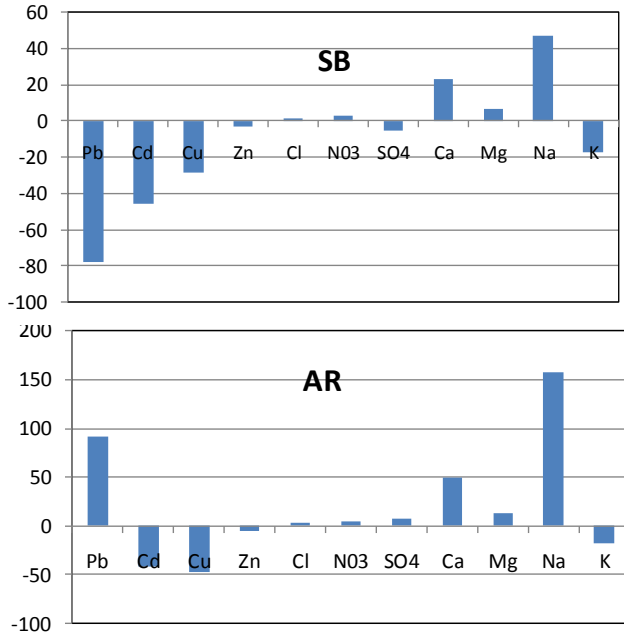


Figure 1 . Taux d'adsorption de (SB) et (AN)

3 ESSAI DE DIFFUSION PAR DES METHODES ELECTRIQUES :

3.1 Diffusion dans le sol

Pour un milieu semi-infinie, isotrope, la diffusion uniaxiale d'une solution non-réactive, est donné par la seconde lois de Fick's comme suit :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D^* \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \quad [2]$$

Avec : D^* le coefficient de diffusion effective, C la concentration de l'ion dans cette étude, t temps et x profondeur. (Crank 1979),

Le coefficient de diffusion d'un soil, D^* , est en fonction coefficient de diffusion, D_0 , dans le sol (Shackelford and Daniel, 1991;) et le facteur de tortuosité, τ ,

$$D^* = D_0 \tau \quad [3]$$

3.2 Mesure de la conductivité électrique :

Les cellules de diffusion (figure 2) utilisées sont à réservoir simple, en régime transitoire, avec concentration constante de (NaCl) dans le réservoir d'alimentation, à gradient hydraulique et vitesse de percolation nul en utilisant une méthode de mesure non destructive. Nos cellules ont été munies de paires d'électrodes afin de mesurer la conductivité électrique par un impédance-mètre type HP 4800 qui est proportionnelle à la concentration en polluants (voire figure 2).

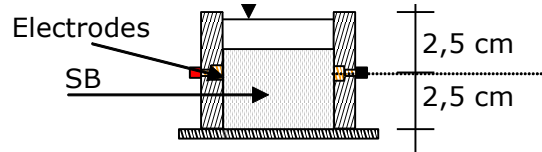


Figure 2 . Dispositif de mesure de la concentration par des méthodes électriques.

Les échantillons préparés sont compactés aux caractéristiques de l'optimum Proctor +3 % (densité sèche maximale et teneur en eau optimale). L'eau utilisée pour le compactage avait des concentrations allant de 0 à 117 g/l de NaCl. La mesure a été faite à des fréquences du courant de 5 Hz jusqu'à 550 KHz. La figure 5.4 montre la variation de la conductivité électrique du mélange en fonction de la fréquence pour différentes concentrations.

Une expression qui relie la concentration à la conductivité électrique de la phase liquide a été obtenue par régression polynômiale du 3ème degré pour des concentrations allant de (0 à 117 g/l de NaCl) avec une fréquence de 10 KHz. En connaissant la conductivité électrique, la concentration peut être estimée par l'expression suivante (Bezzar and Ghomari 2009) :

$$C \text{ (g/l)} = 2,4CE^3 + 0,38CE^2 + 17,75CE \quad [3]$$

CE. Conductivité électrique mesuré

3.3 Calibration de la cellule :

La calibration des cellules de diffusion a été effectuée par la mesure de la conductivité électrique d'une solution saline (NaCl) avec un conductivimètre type TetraCon325/C, les mêmes resultats ont été obtenus avec la cellule de diffusion en utilisant impédance-mètre type HP4800.

3.4 Mesure de la tortuosité :

Une relation linéaire théorique établie par (Rhoades et Oster 1986) a été utilisée afin de relier la mesure de la conductivité électrique apparente, CE_{app} à la conductivité électrique de l'eau du sol, CE_{eau} et d'estimer par conséquent la tortuosité du milieu.

$$CE = \tau \cdot \theta_w \cdot CE_{pore} + CE_{sol} \quad [4]$$

CE_{pore} . Conductivité électrique de l'eau interstitielle
 CE_{sol} . Conductivité électrique des sol

Le sol a été compacté, à différentes concentrations de NaCl, à l'optimum Proctor dans la cellule cubique. La conductivité électrique apparente, du sol est estimée après la mesure de l'impédance du milieu par un impédance-mètre type HP4800. La conductivité électrique de l'eau interstitielle à différentes concentrations utilisées pour le compactage a été mesurée par un conductivimètre type TetraCon325/C.

La conductivité électrique de l'eau interstitielle est représentée en fonction de la conductivité électrique apparente du sol sur la figure 5.7. Comme le montre cette figure, la relation entre ces deux paramètres est linéaire de type $y = a x + b$. (voir figure 3)

La tortuosité du mélange compacté à l'optimum Proctor obtenue est de l'ordre de 0,51.

(Gillham et al 1984) ont montré que la tortuosité du mélange sable-bentonite saturé varie dans la fourchette de valeur de (0,33-0,7).

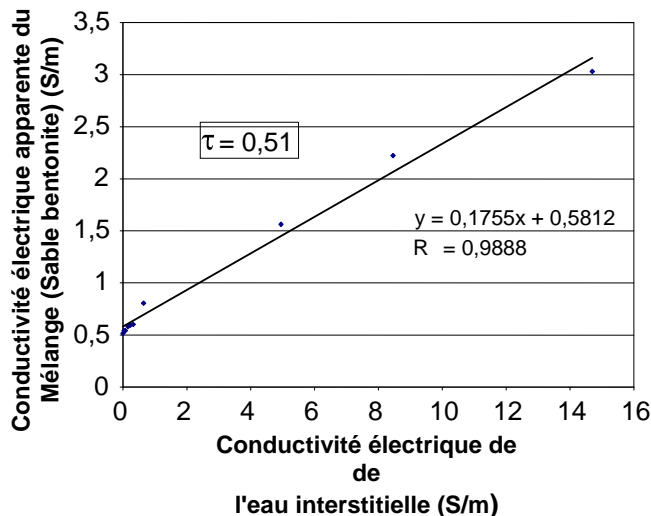


Figure 3. Variation de la conductivité électrique apparente du Mélange en fonction de la conductivité électrique de l'eau interstitielle

3.5 Mesure du coefficient de diffusion par des méthodes électriques :

Le but de cet essai est d'estimer la valeur du coefficient de diffusion de mélange (SB) vis-à-vis d'une solution saline (NaCl) en utilisant une méthode non destructive. La conductivité électrique du milieu mesuré et par la suite traduite en concentration en (NaCl) par l'équation [3].

Trois dimensions de cellules de diffusion ont été testé (5, 20, 40 cm).

Les figures 4 et 5 montrent l'évolution de la concentration du NaCl obtenus pendant 2 mois de mesures. Les données expérimentales sont ajustées par un modèle numérique par le biais du code Cast3m², les

² Code élément finis (open source) CEA France

conditions aux limites préconisent : une concentration constante dans la partie supérieure est un flux nul à la base.

Tableau 3: comparaison entre D_{th}^* obtenu par l'équation (2) and D_{exp}^* obtenu expérimentalement.

h de cellule	τ	$D_0 \times 10^{-10}$ (m^2/s) ^a	$D_{th}^* \times 10^{-10}$ (m^2/s)	$D_{exp}^* \times 10^{-10}$ (m^2/s)
5 cm	0.51	1.47	7.5	4.0
20 cm	0.51	1.51	7.6	5.5
40 cm	0.51	1.51	7.6	7.5

^a (Robinson et Stokes 1959)

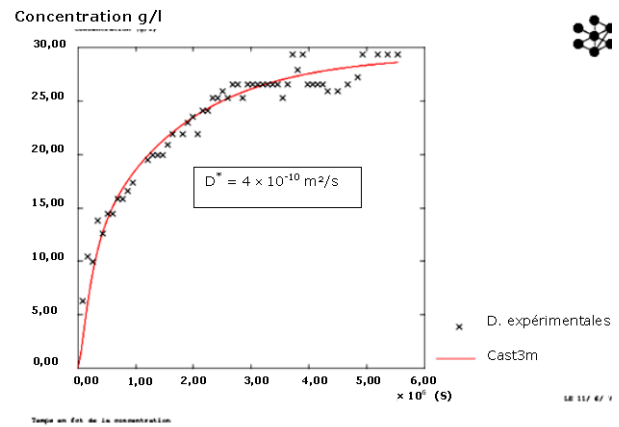


Figure 4. Cellule de 5 cm de hauteur avec une paire d'électrode à 2.5 cm de profondeur.

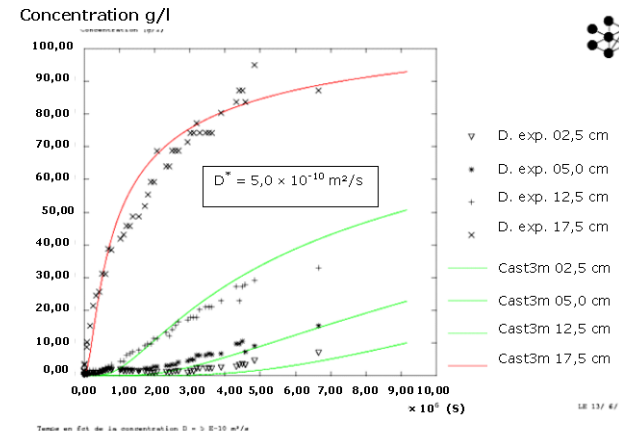


Figure 5. Cellule de 20 cm de hauteur avec 4 paires d'électrodes situé à 2.5, 7.5, 12.5 et 17.5 de profondeur

Les cellules testées ont des hauteurs variables : allant de 5, 20 et 40 cm et les concentrations 117 g/l. Si nous comparons les résultats, à concentration égale à 29,25 g/l obtenues par la première cellule cubique (5 cm de

hauteur) le coefficient de diffusion obtenu est de l'ordre de 4×10^{-10} m²/s, pour la cellule de 25 cm le coefficient de diffusion est de $5,5 \times 10^{-10}$ m²/s plus le coefficient de diffusion est grand plus la vitesse de transfert des ions est grande, à notre avis cette différence ne peut être que l'effet des conditions aux limites ou une fois que les ions atteignent la vitesse de transfert des ions par diffusion sera modifiée. Le même phénomène nous l'avons constaté à concentration égale 117 g/l avec les deux cellules 25 cm et 45 cm les coefficients de diffusion respectifs sont de l'ordre de 5×10^{-10} m²/s et $7,5 \times 10^{-10}$ m²/s

Si nous comparons la même configuration des cellules hauteur égale mais deux concentrations différentes 29,25 et 117 g/l, les coefficients de diffusion obtenus sont respectivement de l'ordre $5,5 \times 10^{-10}$ m²/s et de $5,0 \times 10^{-10}$ m²/s. La concentration n'influence pas beaucoup ce paramètre.

Nous avons montré dans l'équation 3 que le coefficient de diffusion dans un sol est égal au même coefficient dans la solution que multiplie la tortuosité du milieu.

Les valeurs du coefficient D_i du NaCl à 25°C dans l'eau sont égales à $1,474 \times 10^{-9}$ m²/s et $1,516 \times 10^{-9}$ m²/s pour les concentrations respectives 0,5 M (29,25 g/l) et 2M (114 g/l). Le facteur de tortuosité τ du sol calculé est de l'ordre 0,51

Les coefficients de diffusion effective D^* seront de l'ordre de $7,5 \times 10^{-10}$ m²/s pour des solutions 0,5 M et $7,6 \times 10^{-10}$ m²/s pour des concentrations 2M. Nous voyons que le coefficient de diffusion obtenue par la grande cellule 45 cm est de l'ordre $7,5 \times 10^{-10}$ m²/s.

Les barrières d'étanchéité dans les centres d'enfouissement technique ont généralement des épaisseurs de l'ordre de un mètre. Des essais effectués avec des cellules ayant de petites dimensions peut sous estimer le phénomène de diffusion étudié ; plus la dimension s'approche de celle de notre barrière plus l'erreur est faible.

CONCLUSION :

Le comportement des deux matériaux vis-à-vis des différents éléments présents dans les lixiviats est relativement identique avec des taux d'adsorption proches. Le mélange sable bentonite offre une fraction argileuse de 10 %, les métaux lourds ont été fixés par les deux matériaux. Nous avons pris dans nos essais de diffusion le mélange sable bentonite car ce matériau présente un comportement électrique pas très complexe vu sa faible teneur en argile par rapport au deuxième matériau.

La perméabilité est mesurée en utilisant plusieurs configurations qui prennent en considération les différents scénarios dans un centre d'enfouissement technique, variation du gradient hydraulique (obturation des drains), et augmentation de la pression de confinement (par le poids des déchets). Les résultats obtenus nous montre que la perméabilité du milieu reste inférieure à 10^{-9} m/s.

Nous avons utilisé la mesure électrique pour définir une relation entre la concentration et la conductivité

électrique du sol. Cette relation nous a permis de suivre la concentration dans différentes configurations de cellules. Plusieurs hauteurs ont été testées, nous remarquons que plus la hauteur est grande plus le résultat s'approche de la réalité.

REFERENCES

- Bagchi, A. Design, construction, and monitoring of landfills. 2nd edition. New York: John Wiley & Sons, 1994. 361 p.
- Bezzar, A., François D., Ghomari, F., Geochemical study of clays used as barriers in landfills, C. R. Geoscience 342 (2010) 695–700.
- Bezzar, A., Ghomari, F., Nondestructive test to track pollutant transport into landfill liners, Environmental Geology (2009) 57 : 285-290,
- Christensen, T.H., Attenuation of leachate pollutants in groundwater. In Landfilling of waste: leachate. Edited by Thomas H. Christensen, Raffaello Cossu and Rainer Stegmann, Essex: Elsevier Science Publishers, 1992, p. 441-483.
- Crank J. (1975), The mathematics of diffusion, 2nd ed. Oxford Univ. Press, Oxford. 424 pp., ISBN 0-19-853411-6.
- Daniel, D.E., Koerner, R.M., 1995. In: Waste containment facilities: guidance for construction, quality assurance and quality control of liner and cover system. ASCE, p. 354.
- Gillham, R.W., Robin, M.L.J., Dytynshyn, D.J. et al., Diffusion of nonreactive and reactive solutes through fine-grained barrier materials. Canadian Geotechnical Journal, 1984, vol. 21, p. 541-550.
- Matrecon Inc, 1980. Lining of waste impoundment and Disposal Facilities. Cincinnati, U.S. Environmental Protection Agency, pp. 385.
- Rhoades, J.D. ET Oster, J.D., Solute Content. In: A. Klute (Editor), Methods of Soil Analysis, Part1. Physical and Mineralogical Methods. Am. Soc. of Agronomy, Madison, WI, 1986., pp. 985-1006
- Robinson, R.A., Stokes, R.H. Electrolyte Solutions. 2nd edition. London: Butterworths Scientific Publications, 1959. 559 p.
- Shackelford, C.D., Daniel, D.E., (1991). Diffusion in saturated soil: II. Results for compacted clay. ASCE, J. Geotech. Div., 117 (3), 485– 506.
- Vega, F.A., Covelo, E.F., Andrade, M.L., 2006. Competitive sorption and desorption of heavy metals in mine soils: Influence of mine soil characteristics. J. Colloid. Interface Sci 298, 582–592.