

Traitement des lixiviats du Centre d'Enfouissement Technique de Hassi Bounif par l'utilisation de deux types d'adsorbants (*Bentonite et Zéolithe LTA*)

W.Khalfallah^{1;2}, M.Mehdi¹, Z.Lounis^{*1}, Z.Talbi¹

¹Laboratoire d'Ingénierie en Sécurité Industrielle et développement durable(LISIDD)
Institut de Maintenance et Sécurité Industrielle, Université d'Oran 2.

²Géoresources, Environnement & Risques Naturels(GEOREN, Université d'Oran 2.

*Corresponding author: lounis.amirahse@gmail.com; Tel: +213 558596127; Fax: +21300 00 00

ARTICLE INFO

Article History :

Received : 12/04/2019

Accepted : 10/12/2019

Key Words:

Leachate; bentonite; zeolite;
depollution; adsorption;
COD.

Mots clés:

Lixiviat; bentonite; zéolithe;
dépollution; adsorption;
DCO.

ABSTRACT/RESUME

Abstract: The purpose of this study is to evaluate the leachates generated by the Hassi Bounif technical landfill. A quantity of raw and untreated leachate was taken from the basin collector of the technical landfill site to perform some physico-chemical analyzes such as: pH, conductivity, temperature and COD. These analyzes were carried out at the Laboratory of Engineering in Industrial Safety and Sustainable Development at the Institute of Maintenance and Industrial Safety of the University of Oran 2. The treatment of the decontamination of leachates in our laboratory consists of the adsorption of pollutants on local Maghnia bentonites and on LTA type zeolites. To increase the performance of our adsorbents, we performed a cation exchange with Na^+ and Ca^{++} at different concentrations. This study shows that the treatment of leachates with bentonites exchanged with ($NaCl$ and $CaCl_2$) could be depicted as an effective method for reducing COD content, the reduction rate exceeding 88%.

Resumé: La présente étude a pour but de faire une évaluation sur les lixiviats générés par le centre d'enfouissement technique (C.E.T) de Hassi Bounif. Une quantité de lixiviat brute et non traitée a été prélevée dans le bassin collecteur du CET pour effectuer quelques analyses physico-chimiques telles que : le pH, la conductivité, la température et le DCO. Ces analyses ont été réalisées au niveau du laboratoire d'Ingénierie en Sécurité Industrielle et développement durable à l'Institut de Maintenance et Sécurité Industrielle de l'Université d'Oran 2. Le traitement de la dépollution des lixiviats au niveau de notre laboratoire consiste en l'adsorption des polluants sur des bentonites locales de Maghnia et sur des zéolithes de type LTA. Pour augmenter les performances de nos adsorbants, nous avons effectué un échange cationique avec Na^+ et Ca^{++} à différentes concentrations. Cette étude montre que le traitement des lixiviats avec les bentonites échangées avec ($NaCl$ et $CaCl_2$) pourrait être présenté comme un procédé efficace pour réduire les teneurs en DCO, soit un taux d'abattement qui dépasse 88% a été obtenu

I. Introduction

Les activités socio-économiques, l'accroissement de la population et le changement dans le mode de

consommation génèrent une quantité importante des déchets solides urbains.

Au niveau des décharges, le lixiviat provient de l'eau qui percole à travers les déchets en se chargeant

bactériologiquement et chimiquement en substances minérales et organiques dissoutes ou en suspension [1].

La genèse des lixiviats implique non seulement la caractérisation des déchets enfouis mais aussi l'étude des interactions entre l'eau et les déchets [2]

Ces derniers constituent la source majeure des pollutions des eaux et des sols et doivent impérativement subir un traitement adapté avant leur rejet dans le milieu naturel.

Le recours à l'osmose inverse par la wilaya d'Oran pour le traitement des lixiviats produits par le centre d'enfouissement technique de Hassi Bounif est probablement lié d'une part à ses excellentes performances dans l'épuration des eaux usées industrielles, et d'autre part du fait que les traitements biologiques ou physico-chimiques ne permettent qu'une élimination partielle de la pollution carbonée (20 à 50% maximum) pour les lixiviats [3].

Notre travail de recherche consiste à trouver des méthodes de traitements simples, faciles à réaliser, et à moindre coût de revient.

L'utilisation des adsorbants abondants dans la nature telle que la Bentonite « de Maghnia » et des adsorbants facile à synthétiser comme la (zéolithe 4A) vont être utilisés pour le traitement des lixiviats. Avant de procéder à l'élimination de la charge polluante du lixiviat par l'adsorption, nous avons procédé à certaines analyses physico-chimiques sur les lixiviats brutes à savoir : la Température (°C), la conductivité et pH ainsi que l'analyse chimique. Le choix porté sur ces deux cations est dû principalement à leur grande capacité d'adsorption et leur aptitude à capter les effluents des eaux usées.

En outre, les argiles ont la capacité de pouvoir retenir par échange d'ions les cations polluants contenus dans les fluides avec lesquels elles sont en contact. Cet échange sera favorable au maintien d'une bonne valeur de la perméabilité dans le cas où le cation échangé (Na, Li et certains cations organiques à courte chaîne) favorisera une micro-texture de type non granulaire que nous appellerons type "gel". Dans le cas contraire (cations Ca, Pb, Zn, Cd et certaines molécules organiques), l'échange sera non favorable car il provoquera une évolution de la micro-texture vers un milieu plus granulaire que nous appellerons type 'solide hydraté' [4].

Le paramètre de pollution mesuré dans cette étude après le traitement par la Bentonite et les zéolithes est la demande chimique en oxygène (DCO). Une comparaison d'efficacité des deux adsorbants a été évaluée sur la dégradation de la charge polluante du lixiviat traité.

II. Site d'étude

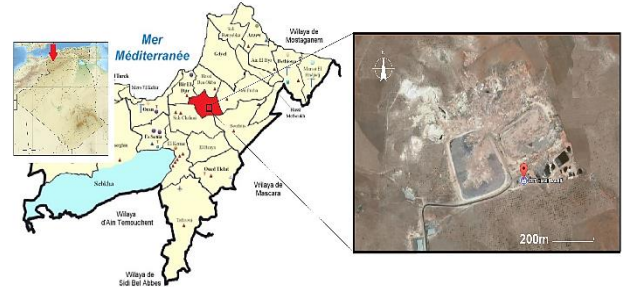


Figure 1. Localisation géographique du CET Hassi Bounif

Ce secteur est situé à environ 11 km à l'Est de la ville d'Oran (Tableau 1). Il longe la route nationale RN 11 Oran/Arzew. Il est limité:

- Au Nord et au Nord-Ouest, par l'agglomération de Hassi Ameur,
- A l'Est, par les agglomérations de Douar kharrouba.

Tableau 1 . Coordonnées Lambert du CET Hassi BOUNIF

CET	Willaya	Daira	Longitude	Latitude
Hassi Bounif	Oran	Bir El Djir	0°26'47,8"W	35°40'45 ,4"N

Il est à noter que le CET de Hassi Bounif est considéré comme étant le plus grand à l'échelle national. Il est entré dans sa phase d'exploitation le 1er mai 2012. Etendu sur une superficie de 89 ha, il réceptionne quotidiennement une moyenne de 1.000 tonnes de déchets ménagers produits par 13 communes de la wilaya d'Oran (Figure 2).

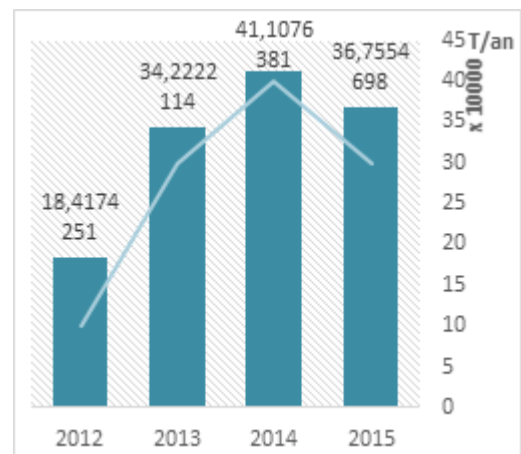


Figure 2. Les quantités annuelles des déchets enfouis au niveau de Hassi Bounif

Le CET de Hassi Bounif est constitué de six casiers dont le plus petit s'étend sur 5 ha et le plus grand sur 12 ha (Figure 3a), sont creusés dans le sol et étanchés par une géomembrane où sont déversés les déchets. Les casiers, une fois pleins, sont recouverts par un matériau étanche et un système de drainage des lixiviats (Figure 3b) et de captage du biogaz créé. Ce biogaz est éliminé par une torchère afin d'éviter le rejet du méthane dans l'air. La récupération du biogaz produit par les décharges est intéressante car le méthane libéré dans l'atmosphère est un gaz à effet de serre bien plus puissant que le dioxyde de carbone (CO₂) produit par sa combustion.



Figure 3 . CET Hassi Bounif, a) Casier de décharge et b) Bassin de collection de lixiviat

III. Adsorbants

III.1. Caractérisation des adsorbants

A. Bentonite de Maghnia 'ENOF'

L'argile utilisée comme adsorbant est de type bentonite. Elle fait partie de la terre décolorante provenant de l'ENOF (Entreprise nationale des

produits miniers non ferreux et des substances non utiles) de Maghnia située à l'ouest du pays. Cette argile a déjà subi un prétraitement à l'usine passant par les étapes suivantes:

1. Délitage
2. Activation à l'acide sulfurique
3. Lavage à l'eau
4. Filtration
5. Séchage
6. Broyage en fine poudre.

La bentonite de Maghnia appartient à la famille des montmorillonites. Le modèle structural de la montmorillonite le plus généralement acceptée est dû à Hoffman et ses collaborateurs

[5–7]. Dans ce modèle, la montmorillonite est formée de feuillets à structure de pyrophyllite, la formule chimique d'un feuillet est: $[Si_4Al_2O_{10}(OH)_2]_2 \cdot nH_2O$ [8].

Notre Bentonite a été caractérisée par la diffraction des rayons X en utilisant un diffractomètre PANalytical X'Pert PRO (XRD) au Laboratoire des Ressources Minérales et Environnement à la Faculté des Sciences de Tunis. Les différentes phases minérales sont déterminées en utilisant un programme X'pert HighScore plus.

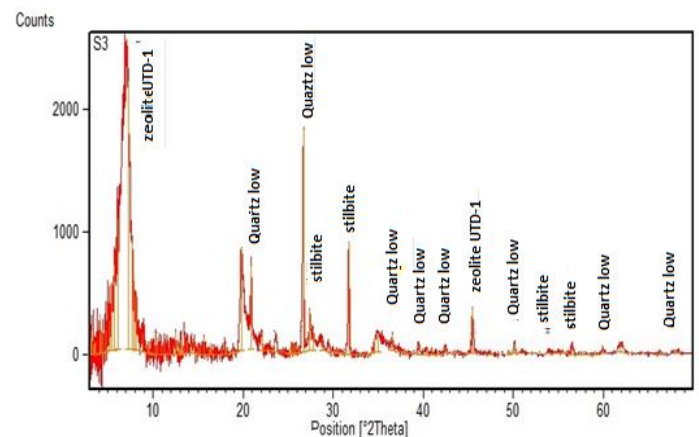


Figure 4 . Diffractogramme RX de la bentonite brute

Le diffractogramme RX (Figure 4) révèle l'existence des raies à $d=12,24; 4,48; 2,82$ à caractéristiques d'une argile de type montmorillonite [9]. Sur la même argile, nous avons relevé la présence de quartz, Feldspath et d'halite à des proportions importantes. Ceci est constaté respectivement sur les raies à $d=14,56; 4,48; 4,24; 3,33; 3,21; 2,82; 1,99$ Å. L'analyse chimique de l'argile brute est donnée par fluorescence des rayons X, la composition en % est illustrée dans la (Figure 5). L'analyse chimique indique que ces argiles renferment majoritairement trois oxydes à savoir la silice (SiO₂), l'alumine (Al₂O₃) et les oxydes de fer (Fe₂O₃), tandis que les autres oxydes sont présents à des faibles teneurs.

Le rapport Alumine/Silice, donne une approche concernant la perméabilité du matériau vis-à-vis l'humidité, plus ce rapport est grand plus la

perméabilité est importante [10]. Le rapport molaire de $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ est égal à 8,0.

En se référant au modèle de GRIM [11], la montmorillonite dont la structure est formée de feuillets à pyrophyllite, a par ailleurs une teneur en silice très importante (supérieure à 50%) [12].

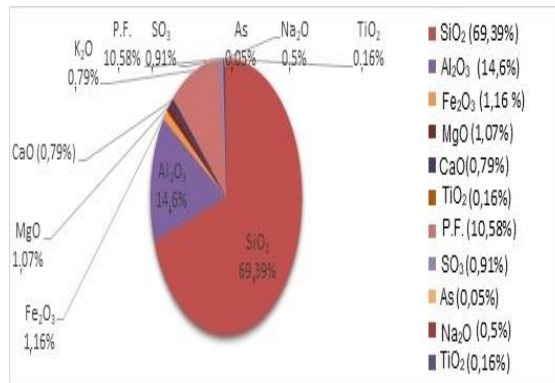


Figure 5. Composition chimique massique des minéraux argileux.

La surface spécifique de l'argile brute a été déterminée par adsorption d'azote à 77 K sur l'appareil micromeritics ASAP 2020 au niveau du laboratoire LCMO de l'université d'Oran1. La valeur de la surface BET mesurée est de 126 m^2/g .

B. Zéolithe LTA

Les zéolithes, ou encore les tamis moléculaires, sont des composés chimiques largement utilisés dans l'industrie comme adsorbants, notamment pour le séchage des gaz ou des liquides. C'est des composés à base d'alumino-silicates, cristallins et poreux qui possèdent une structure cristalline tridimensionnelle (Figure 6) constituée par un assemblage de tétraèdres de SiO_4 et AlO_4 reliés entre eux grâce à la mise en commun d'un ou plusieurs atomes d'oxygène. Ces composés forment ainsi des réseaux cristallins contenant des micropores. [13]

En général, les zéolithes LTA (Linde type A) sont obtenues sous forme de poudre à l'issue d'un processus de nucléation et de cristallisation de gels d'alumino-silicates. La zéolithe A a une fraction volumique de vide de 0,47, avec un rapport Si/Al de 1,0. Elle se décompose thermiquement à 700°C [14].

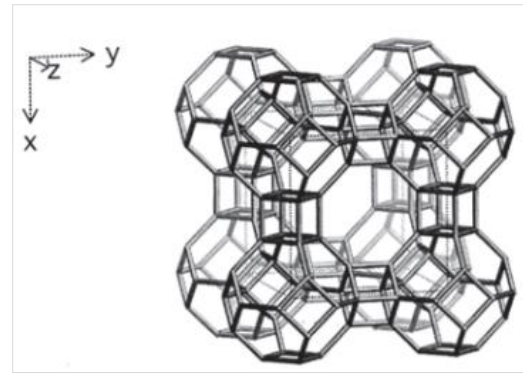


Figure 6. Structure cristalline de la zéolithe Type-LTA [15]

La zéolithe utilisée dans le cadre de la présente recherche provient de la société 'CECA', sous le nom commercial « Siliporite NK 10 ». Type 4A, avec un diamètre de pores de 4Å, elle est normalement synthétisée sous la forme sodique [15].

III.2. Préparation des adsorbants par échange cationique

A. Bentonite de Maghnia

L'argile bentonitique a subi un prétraitement chimique qui consiste en la saturation des espaces inter foliaires des feuillets par un échange cationique en milieu aqueux avec deux types de cations alcalins (Na^+ et Ca^{++}) selon le protocole suivant :

-5g d'argile brute hydratée dans 100 ml d'eau désionisée a été mise en contact avec 5,844g de sel de chlorure de sodium 1M et 2M à une température de 35°C sous agitation magnétique continue pendant 6h.

-5g d'argile brute hydratée dans 100 ml d'eau désionisée a été mise en contact avec 11,099g de sel de chlorure de calcium 1M et 2M à une température de 35°C sous agitation magnétique continue pendant 6h.

Les produits finaux sont récupérés par filtration sous vide, lavés plusieurs fois à l'eau désionisée, et séchés dans une étuve à 100°C pendant une nuit. La bentonite échangée est broyée en fine poudre avant son utilisation.

L'étude texturale de l'argile échangée a été étudiée par adsorption d'azote à 77 K sur l'appareil micromeritics ASAP 2020 au niveau du laboratoire LCMO de l'université d'Oran1. Les valeurs de la surface BET sont respectivement: 142; 158; 156; 180 m^2/g pour la 1M NaCl-Mt; 2M NaCl-Mt; 1M CaCl-Mt; 2M CaCl-Mt.

B. Zéolithe 4A

La zéolithe 4A est essentiellement sodique, car le seul cation présent dans les pores est le sodium, de ce fait on n'aura pas besoin de faire l'échange par le cation de Na⁺. L'échange cationique aura lieu qu'avec le calcium selon le protocole suivant:

-5g de zéolithe 4A a été mise en suspension dans 100 ml d'eau désionisée avec 11,099 g de chlorure de calcium à 2M à une température de 35°C sous agitation magnétique pendant 6h.

La zéolithe échangée est filtrée sous vide et lavée à plusieurs reprises avec de l'eau déminéralisée, le produit récupéré est séché pendant une nuit à 100°C dans une étuve.

La surface spécifique de la zéolithe a été déterminée par adsorption d'azote à 77 K sur l'appareil micromeritics ASAP 2020 au niveau du laboratoire LCMO de l'université d'Oran1. La valeur de la surface BET mesurée de la 4A est de 500 m²/g, et celle de la zéolithe échangée est de 590 m²/g.

VI. Caractérisation des lixiviats

Deux points de prélèvements du lixiviat brut et non traité ont été effectués successivement aux mois de Mai et Octobre 2017. Le premier prélèvement P2 a été extrait directement de la cuve d'homogénéisation et le deuxième échantillon P1 a été collecté au niveau du bassin de stockage principal du centre d'enfouissement technique de Hassi Bounif.

L'échantillon P1 est analysé au niveau du laboratoire d'ingénierie en sécurité industrielle et développement durable « LISIDD » de l'université d'Oran 2 ; tandis que L'échantillon P2 est caractérisé in situ au niveau du Laboratoire du Centre d'Enfouissement Technique de Hassi Bounif.

Avant de procéder à l'élimination de la charge polluante des lixiviats par adsorption, nous avons procédé à certaines analyses physico-chimiques sur les lixiviats brutes (Tableau 2) après que ce dernier est conservé au réfrigérateur à 2°C pour limiter toute évolution biologique.

Pour l'échantillon P2, un Spectrophotomètre de type Hach-Lange DR3900 est utilisé pour déterminer la demande chimique en Oxygène (DCO), l'Azote total (NT), l'ammonium (NH₄⁺), les phosphates (PO₄³⁻) et les nitrates (NO₃⁻) ainsi que l'utilisation d'un pH mètre de type W-T-W 3210 qui nous a permis d'effectuer les mesures in situ.

Pour l'échantillon P1, nous avons utilisé un pH mètre de marque OHAUS Starter 2100, un Conductimètre HANNA HI2315 et un Thermomètre IKA ETS DS.

La DCO (la demande chimique en oxygène) est déterminée analytiquement par le dosage de l'excès de dichromate titré avec du sulfate de fer et d'ammonium (Sel de Mohr) [16].

Exprimée en mg d'O₂/L, la DCO est donnée par la formule (1).

$$DCO = \frac{8000 \times C \times (V_1 - V_2)}{V_0} \quad (1)$$

Avec ; C : 0,12 mol/l concentration de sel de Mohr

V₀ : Volume de la prise d'essai (ml)

V₁ : Volume du blanc (ml)

V₂ : Volume de l'essai (ml)

8000 : Masse molaire (mg/l) de 1/2 O₂

Tableau 2 .Caractéristiques physico-chimiques des lixiviats mesurées au niveau du CET de Hassi Bounif à Oran.

Paramètres		pH	T (°C)	CE (mS/cm)	DCO (mg O ₂ /L)
P1	Moyenne	8,01	26,7	31,4	4752
	±Ecart-type	±0,04	±0,26	±0,44	±552,3
P2	Moyenne	8,14	26,1	33,5	8869,5
	±Ecart-type	±0,06	±1,66	±0,5	±888,5
Normes	[17]	-	25-30	20,5-36,1	1500-21700
	[18]	6,5-8,5	-	-	-

La qualité physico-chimique des lixiviats est non seulement très diverse mais variable dans le temps (pour un même site) et dans l'espace (d'un site à un autre). Elle dépend de plusieurs facteurs tels que le mode d'exploitation de la décharge, les conditions climatiques et essentiellement la nature des déchets et l'âge de la décharge [19].

La composition physico-chimique des lixiviats connaît une importante évolution au cours du temps. La charge organique des lixiviats diminue d'une manière considérable au cours du temps de vie d'une décharge, ce qui se reflète directement sur les valeurs de la DBO₅ et la DCO [20-21]

Selon (Tableau 2), la caractérisation du lixiviat brut a montré une pollution organique moyenne. La concentration moyenne de la DCO varie de 8869,5 mg/l à 4752 mg/l.

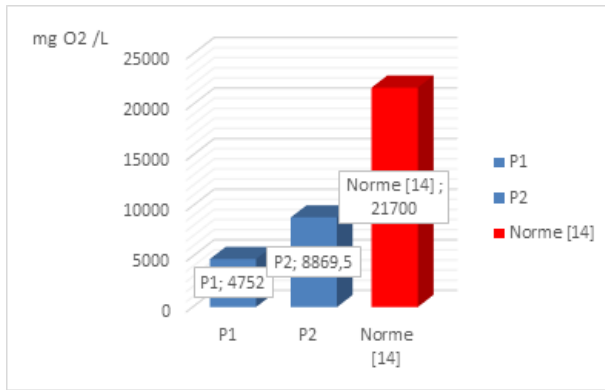


Figure 7. Teneurs en DCO des lixiviats prélevés

La DCO représente la quantité d'oxygène nécessaire pour oxyder toute la matière organique ou minérale présente dans le lixiviat. La (Figure 7) montre une diminution de la DCO du lixiviat de l'échantillon P1 par rapport à l'échantillon P2, qui passe d'une teneur de 8869,5 mg/l à une teneur de 4752mg/l dont l'humidité et la précipitation jouent un rôle important sur cette diminution car ils agissent sur la vitesse de décomposition des déchets [22]. Il s'avère que les déchets enterrés dans les régions arides se décomposent moins lentement par rapport aux déchets enfouis dans un sol qui reçoit beaucoup de précipitations [23]. Cette différence de la DCO pourrait être liée à l'âge, la nature et la quantité des déchets ainsi que les différents facteurs climatiques tels que la pluviométrie, l'humidité de l'air et la température. En effet, différents facteurs sont à la base de la variabilité des charges polluantes [24]. Le Lixiviat issue de CET Hassi Bounif appartient au 'lixiviats intermédiaires car il se caractérise par un haut poids moléculaire et une charge organique moyenne dont la moyenne de la DCO se situe entre 5 et 10 g/L⁻¹ [25]. De ce fait, le pH avoisine la neutralité et la charge en métaux devient négligeable.

Tableau 3. Teneurs en NT, NH₄⁺, PO₄³⁻ et NO₃⁻ des lixiviats mesurées pour P2.

Paramètres		NT (mg/L)	NH ₄ ⁺ (mg/L)	PO ₄ ³⁻ (mg/L)	NO ₃ ⁻ (mg/L)
P2	Moyenne	4150	3812,5	16,4	30,65
	±Ecart-type	±1055	±65,5	-	±1,85
Normes	[17]	-	350-10250	-	-
	[18]	30	-	10	-

Selon le tableau 3, les concentrations en azote total (NT), ammonium (NH₄⁺), phosphates (PO₄³⁻) et

nitrate (NO₃⁻) mesurés pour P2 varient entre 4150 ; 3812,5mg/l ;16,4mg/l et 30mg/l respectivement. Ces lixiviats correspondent globalement à la phase méthanogène stable [26].

Les lixiviats provenant du CET Hassi Bounif présentent généralement une bonne conductivité électrique (±32 mS/cm) liée à une forte concentration des ions Cl⁻ et NH₄⁺ [27]. Et ceci est dû essentiellement à la transformation acidogène ou les acides gras volatiles produits, donnent un caractère agressif acide aux lixiviats impliquant ainsi une augmentation de la conductivité par dissolution acide des complexes ioniques dans le milieu. Ce même phénomène affecte également le pH des lixiviats. Le pH des lixiviats jeunes sera plus acide que celui des lixiviats matures ou intermédiaire [28]. Contrairement aux autres paramètres, la concentration de l'azote total (NT) et ammoniacal (N-NH₄⁺) (Figure 8) ne diminuent pas au cours du temps, même pour les lixiviats matures. les teneurs en NH₄⁺ restent importantes [29] dues en partie au processus de l'ammonification des substances azotées tels que les protéines et les acides aminés [30] et le milieu anaérobique de la décharge qui ne favorise pas les réactions de nitrification.

Les nitrates constituent le stade final de l'oxydation de l'azote, et représentent la forme d'azote au degré d'oxydation le plus élevé présent dans l'eau. La teneur enregistrée est de l'ordre de 30,65 mg/L. Cette valeur est largement inférieure à la concentration maximale admise par l'OMS qui est de 50 mg/L. Les valeurs limites de référence se situent entre 2 et 845 mg/l [31].

Selon la figure 11, l'analyse des résultats des ortho phosphates (PO₄³⁻), montre que sa concentration dans le lixiviat de Hassi Bounif en P2, dépasse 15 mg/. Les valeurs limites de référence se situent entre 0,16 et 145 mg/l [32].

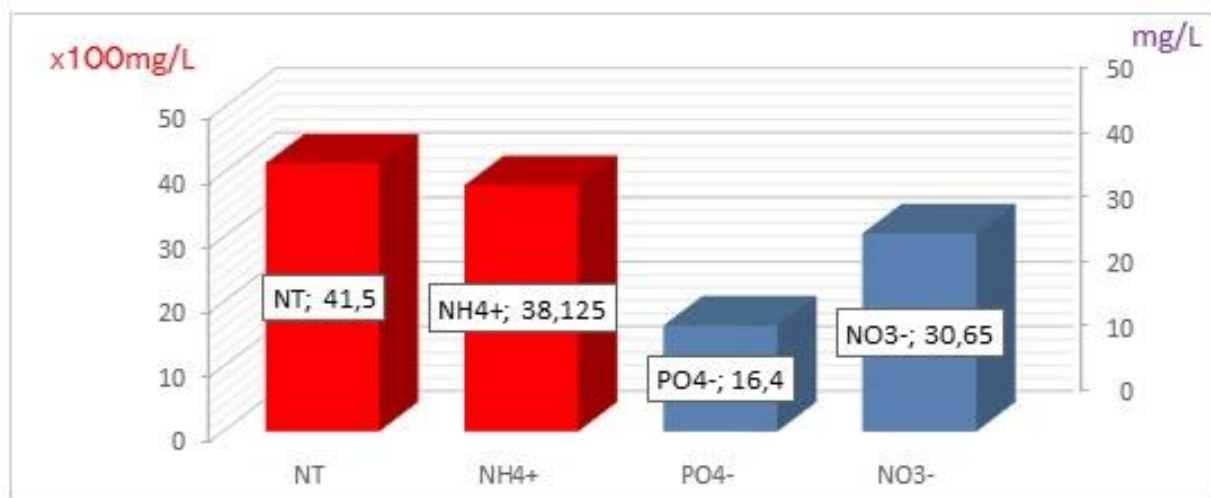


Figure 8. Teneurs en Azote total (NT), Ammonium (NH₄⁺), Phosphates (PO₄³⁻) et Nitrate (NO₃⁻) de P2

V. Traitement des lixiviats

V.1. Par des argiles échangées

L'échantillon de lixiviat (P1) a été prélevé dans une bouteille en polyéthylène de capacité 1L, préalablement lavée avec l'eau distillée. L'échantillon de lixiviat a été conservé dans une glacière pendant le transport au laboratoire (+ 4°C), sous agitation magnétique. 20 ml du lixiviat brut

(P1) ont été mélangé avec la Bentonite échangée à différentes concentrations

1M, 2M NaCl et 1M, 2M CaCl₂ pendant 4 heures sous différentes températures T°C (voir Tableau 4). Les essais sont répétés deux fois pour la même masse d'argile échangée.

Tableau 4: Teneurs d'abattement des paramètres des lixiviats avec de la bentonite échangée

Paramètres	Bentonite-1M NaCl				Bentonite-1M CaCl ₂				Bentonite-2M NaCl				Bentonite-2M CaCl ₂				
	0,5	1	0,5	1	0,5	1	0,5	1	0,5	1	0,5	1	0,5	1	0,5	1	
Masse (g)	0,5	1	0,5	1	0,5	1	0,5	1	0,5	1	0,5	1	0,5	1	0,5	1	
pH	Initial	7,96	8,09	7,99	8,2	8,1	7,7	8,02	7,3	8,2	8,1	8,3	8,1	6,8	7,1	8,2	7,2
	2h	7,9	8,86	8,97	9,2	8,33	7,63	7,6	6,9	9	8,4	9,65	9,75	7,1	6,69	9,65	6,7
	4h	8,1	9,2	9,6	9,76	8,9	7,4	7,5	6,8	9,1	8,6	10	10	7,3	6,6	10,4	6,4
T (°C)	30	36	58	55	25	40	61	60	29	30	52	55	37	40	61	59	
CE (mS/cm)	24,6	29,1	29,9	30,1	16,8	19,2	17,8	18,3	31,2	32,3	33,4	35,4	25,1	26	33,3	24,6	
Eh (mv)	-65	-108	-150	-152	-103	-27	-36	5	-117	-93	-165	-168	-21	14	-187	25	
DCO	39,6	23,49	28,24	38,01	20,58	11,04	24	11,76	7,128	6,6	4,224	5,016	21,912	21,12	11,088	8,448	

La (Figure 9) montre une conductivité assez élevée du lixiviat traité à cause de la présence des ions inorganiques tels que les sulfates et les chlorures. On note que la conductivité atteint sa valeur maximale à 35,4 mS/cm pour la bentonite échangée avec 2M de chlorure de sodium qui comporte des ions majeurs responsables à l'augmentation naturelle de la charge minérale. L'évolution des concentrations en chlorures semble influencer la conductivité électrique qui est déterminée principalement par ces ions. Cette relation entre les teneurs en chlorures et la conductivité a été largement étudiée [33].

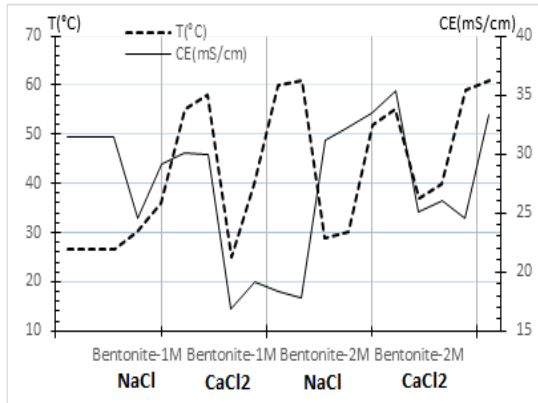


Figure 9. Evolution de la température $T(^{\circ}C)$ et la conductivité $CE (mS/cm)$ du lixiviat traité en fonction des Bentonites échangées.

Au cours du processus d'adsorption, nous avons constaté que le lixiviat a subi un virement de couleur et qui évolue en fonction de la teneur des cations alcalins dans l'argile. La couleur du lixiviat passe initialement d'une couleur noire à une couleur brun clair avec l'argile échangée avec NaCl et au jaune clair avec l'argile échangée à 1M de CaCl₂ et pour une couleur plus blanchâtre avec l'argile échangée à 2M de CaCl₂.

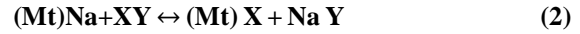
Cet éclaircissement de la solution de lixiviat, montre qu'il y a eu un phénomène d'interchange entre les ions présents dans le lixiviat et ceux présents dans l'espace interfoliaires des argiles échangées.

Le processus [34] qui régit l'échange de cations dans les argiles est très complexe. Selon la littérature, il repose sur cinq étapes fondamentales [35-36]:

1. Le transfert de cations de la solution entrante à la surface de l'argile,
2. la distribution de ces cations dans le matériau argileux,
3. L'échange de ces cations avec ceux déjà incorporés dans les couches d'argile,
4. La diffusion des cations en sortie des couches à la surface de l'argile,
5. Le transport de ces cations existants vers la solution.

Donc, nous pouvons conclure que les cations Na^+ ou Ca^{++} entrent en solution; ils ont été remplacés par les ions présents en solution de lixiviats. Si nous considérons que ces ions sont présents sous formes de complexes XY

Par conséquent, nous pouvons écrire la réaction suivante:



Nous pouvons voir que les réactions d'échange d'ions sont réversibles et que la loi de l'action de masse de Guldberg et Waage [37] leur est applicable.

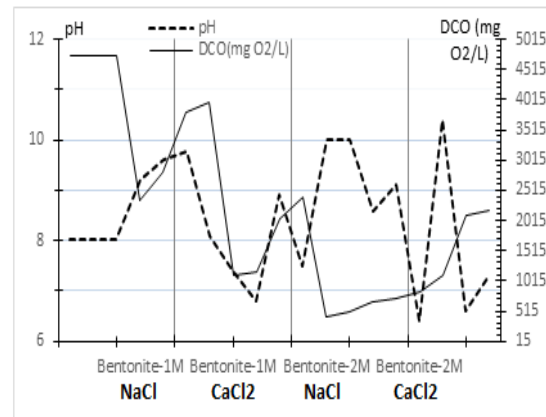


Figure 10. Evolution du pH et la DCO ($mg O_2/L$) du lixiviat traité en fonction des Bentonites échangées.

Sur la (Figure 10), nous voyons que le pH est très alcalin et dépasse dans certains cas les valeurs de 9, ceci est dû à une forte teneur en sels d'alcalins et alcalino-terreux qui ont migrés de l'argile et ont été inter-échangés avec les ions acidiques du lixiviat [38].

La comparaison des données des lixiviats traités par les deux adsorbants (NaMt ou CaMt) montre que les chlorures de sodium réduisent d'avantage la teneur en DCO. La valeur d'abattement de la DCO est exponentielle selon la molarité, et cela est bien démontré surtout dans la phase échangée à 2M NaCl atteignant ainsi 422,4 $mg O_2/L$, soit un taux d'abattement de 88%.

Vu que la DCO représente quant à elle quasiment tout ce qui est susceptible de consommer de l'oxygène dans l'eau, exemple les sels minéraux et les composés organiques. Donc sa baisse dans la solution de lixiviats s'explique par le fait que les molécules organiques et les sels minéraux ont migré vers la structure lamellaire de l'argile par inter échange avec les cations Na^+ et Ca^{++} .



Figure 11. Lixiviats traités avec Bentonite échangée 'Ech 16: Bentonite-2M CaCl₂'

De plus, les bentonites contiennent une importante teneur en silice, ce qui leur acquiert une forte polarité électrique. La présence des éléments

minéraux en particulier les ions ferreux (Fe³⁺) dans les argiles contribuent à la neutralisation des charges négatives des matières organiques contenues dans les lixiviats.

(La Figure 10) montre que La DCO de lixiviats diminue avec l'augmentation de la molarité des deux cations. Cet effet a été également observé par plusieurs auteurs travaillant sur le traitement des eaux de lixiviation [39]. Cette réduction de 4750mg O₂/L à 422,4 mg O₂/L est acceptable mais reste faible et un traitement secondaire est nécessaire.

V.2. Par des zéolithes de type (4A)

Sous agitation magnétique, On a mélangé 20 ml du lixiviat brut (P1) avec les zéolithes 4A et celle échangée pendant 4 heures sous différentes températures T°C (voir tableau 5).

La masse de la zéolithe 4 A utilisée varie de 0,02 à 0,5 g ; et celle de la zéolithe échangée varie de 0,3 à 0,5 g. Les essais sont répétés deux fois avec la même masse de zéolithe.

Les masses des zéolithes utilisées pour le traitement du lixiviat sont plus petite par rapport à celles des argiles, ceci est dû au fait que la surface spécifique de la zéolithe est presque 4 fois plus grande que celle de l'argile.

Tableau 5. Teneurs d'abattement des paramètres du lixiviats traités avec zéolithe 4A.

Paramètres	4A								4A -2M CaCl ₂				
	0,02	0,02	0,06	0,06	0,2	0,2	0,5	0,5	0,3	0,3	0,5	0,5	
Masse (g)	0,02	0,02	0,06	0,06	0,2	0,2	0,5	0,5	0,3	0,3	0,5	0,5	
pH	Initial	7,9	7,9	8	7,99	8,1	8,04	8	8	7,95	8	8,1	8,1
	2h	8,69	9,9	9,3	10	9,8	10	9,7	9,3	8,2	8,9	8,4	9,1
	4h	9,5	10,28	9,79	10,20	10,07	10,16	10	9,8	8,7	9,2	8,6	9,3
T (°C)	32	55	28	59	60	58	61	61	35	58	27	57	
CE (mS/cm)	30	26	13	15	14,2	16	15,9	15	18,1	15	18,2	19,5	
Eh (mv)	-146	-180	-154	-173	-170	-175	-166	-160	-106	-127	-99	-132	
DCO	39,88	39,336	26,136	38,544	32,73	29,56	35,64	32,73	41,44	36,96	33,52	19,8	

La Basicité des lixiviats (pH ±8,01) au niveau du CET de Hassi Bounif définie un milieu basique certes et ceci est dû essentiellement à la nature du sol traversé (Tuf basique) par les lixiviats au moment de la migration du casier de décharge vers le bassin tampon.

L'évolution du pH (Figure 12) en fonction de la température (°C), est exponentielle; au fur et à mesure que l'adsorption avec les zéolithes 4A s'effectue, le lixiviat s'appauvrit en composés organiques volatiles. Ceci va alors entraîner une montée du pH à 9 ou plus [40].

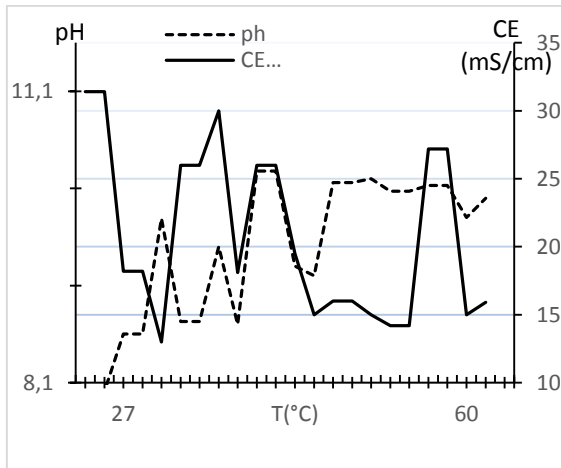


Figure 12. Evolution de pH et la Conductivité (mS/cm) du lixiviat traité en fonction de la Température T(°C)

Les valeurs faibles du potentiel redox (Eh) comprises entre -180 et -199 mV montrent que ces effluents liquides se trouvent dans les conditions réductrices (baisse de l'oxygène). D'après le tableau 5, le traitement des lixiviat avec les zéolites 4A, montre une réduction de la.

la conductivité (Ms/cm) plus significative que ceux traités avec des bentonite. Une diminution allant jusqu'à 13 mS/cm. Ceci est lié au fait que la capacité d'adsorption des zéolites 4A dont les sites cationiques échangeables sont occupés par des cations sodium Na^+ a affaibli la charge minérale et donc réduit la conductivité électrique.

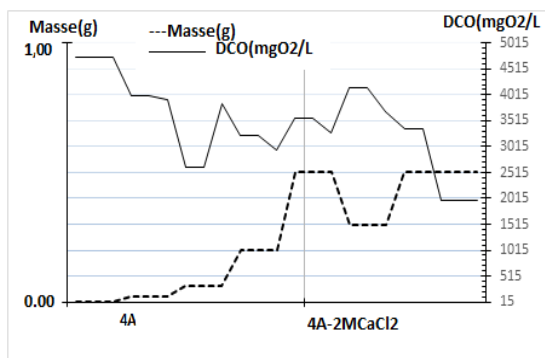


Figure 13. Evolution de la masse (g) et la DCO (mg O₂/L) du lixiviat traité en fonction des Zéolithe 4A.

D'après la (Figure 13), la quantité de Zéolithe 4A ajoutée au lixiviat agit sur la teneur de la DCO mesuré. Le taux d'abattement de la DCO par traitement de Zéolithe 4A est de 50%, beaucoup moins faible par rapport 88% pour la bentonite échangée avec 2M NaCl.



Figure 14. Lixiviats traités avec des zéolites 4A

La teneur en DCO de 1930 mg O₂/L obtenue pour la zéolithe 4A échangée avec 2M de CaCl₂, montre l'importance de l'échange cationique des zéolites sodalites avec les sels de chlorure de calcium dans l'abattement de la DCO, comparé à d'autres traitements chimiques des lixiviat utilisant la chaux. D'où la teneur en DCO enregistrée pour ces derniers est comprise entre 6000-8200 mg O₂/L et l'abattement de la DCO ne dépassait pas les 42% [41].

VI. Conclusions :

L'utilisation des adsorbants solides tels que les argiles et les zéolites de type sodalites (4A) donnent de bons résultats dans le traitement des eaux usées et plus particulièrement les lixiviat.

Les principaux résultats obtenus dans ce travail de recherche, montrent que les abattements de la DCO de 88% enregistrés pour la bentonite et de 50% pour les zéolites sont très encourageants comparés à d'autres traitements chimiques utilisés dans la littérature [41].

Le recours aux argiles et aux zéolites dans les procédés de traitements des polluants dans les liquides, s'avère très efficace du point de vue économique et environnemental, car ces solides sont recyclables et génèrent moins de déchets comparés aux autres procédés chimiques utilisés.

Dans notre étude, nous avons utilisé deux adsorbants : la bentonite de Maghnia et la zéolithe 4A. L'échange de la bentonite de Maghnia aux cations alcalins tels que Na^+ et Ca^{++} a permis de renforcer sa capacité d'adsorption. Nous pouvons attribuer à la montmorillonite une capacité de gonflement lui permettant de fixer au moins 10 fois son poids de lixiviat [42] et une capacité de fixation et d'échange des bases supérieures à celle de tous les échangeurs d'ions naturels.

Les argiles à montmorillonite possèdent une capacité totale d'échange des bases supérieure à celle des autres argiles et des zéolites.

Les meilleurs résultats sont obtenus pour la bentonite échangée au cation Na^+ comparée à celle échangée au Ca^{++} , ceci est dû au rayon ionique plus grand de Na^+ qui permet un plus grand espacement de la distance inter-foliaire des feuillets d'argile pour recevoir plus de molécules polluantes présentes dans le lixiviat. Une valeur de 422,4 mg O_2/L , soit un taux d'abattement de 88% a été enregistré pour la phase échangée à 2M NaCl.

L'utilisation de zéolithe de type 4A dans les procédés d'adsorption et de dépollution, est dû au fait que cette dernière est facile à synthétiser et sa surface spécifique est 4 fois plus grande que celle de la bentonite. Cependant cette dernière possède dans sa structure des pores de taille moyenne d'où la pénétration de certaines molécules organiques ou minérales volumineuses présentes dans le lixiviat est difficile suite à l'encombrement stérique. Contrairement à l'argile qui possède une structure lamellaire.

L'étude d'un traitement d'appoint tel que l'oxydation avancée ou encore une ozonation pourrait compléter l'opération comme traitement de finition pour rendre nos lixiviats satisfaisant aux normes d'admission dans un milieu récepteur.

VII. References

- Amokrane, A. Epuration des lixiviats de décharge : prétraitement par coagulation-floculation ; traitement par osmose inverse, post-traitement par incinération. *Thèse. Doc. Chimie Univ, INSA. Lyon.France.* 286. (1994).
- Poulain, R.S. ; Ganaire, J. ; Moulin, P. Lixiviat de centre de stockage : déchet généré par des déchets : J. *l'eau, l'industrie, les nuisances* 310 (2007) 37-43.
- Ozanne, F. Les lixiviats de décharge, le point des connaissances. *Techniques, Sciences et Méthodes - L'Eau* 06 (1990)289-312.
- Paumier, S.; Gailhanou, H.; Pantet, A.; Martineau, D.; Touze-foltz, N.; Flehoc, C.; Guyonnet, D.; Pothier, C.; Didier, G.; Gaucher, E.; Blanc, P.; Norotte, V. Projet LIXAR2 - Indicateurs de performance pour les géosynthétiques bentonitiques. *Rapport final. BRGM/RP-56356-FR* (2008) 166.
- Hoffman, U.; Endell, K.; Blike, W.; Die Quellung, V. Bentonit und Seine Technische Anwendung. *Z.Electronchem.* 41(1935) 469.
- Hoffman, U.; Endell, K.; Blike, W. Kristall struktur und quellung von montmorillonite. *Z.Krist* 86(1933)340.
- Hoffman, U.; Hausdrof, A. Kristallstruktur und nnd erkrystalline quellung des montmorillonits. *Z.Krist* 104(1942) 265.
- Bloch, J.M. Fixation des halogénures d'argent sur la montmorillonite. *CR. du Gr. . fr .des argiles* 2(1950).36-41.
- Brown, G. X-Ray identification and crystal structures of clay mineral. *Mineralogical Society London* (1961)132.
- Jarraya, I.; Fourmentin, S.; Benzina, M. J. Preparation of Adsorbent Material from Moroccan Oil Shele of Timahdit: Optimization of Parameters Processes and Adsorption Tests. *Soc. Chim. Tun* 12(2010) 139.
- Grim, R.E. Modern concepts of clay materials, *J.Geologie* 50(1942)225.
- Azzouz, F. Z. Contribution à l'étude de la stabilisation chimique de quelques argiles gonflantes de la région de Tlemcen. *Mémoire de magister, Université Abou Bekr Belkaid, Tlemcen-Algérie* (2006).
- John, E.; Litz, C.; Williams, S. Arsenic removal from aqueous media using chemically treated zeolite materials. *J. of clays* 10 (2002).
- Subhash, B. Zeolite Catalysis: Principles and Applications, CRC Press, Inc., Boca Raton, Florida (1990).
- Arkema siliporite. Brochure-gti-siliporite, MOLECULAR SIEVES General technical information 4 (2015).
- Bouyer, M. Demande chimique en oxygène. *Fiche DCO*, Version 1, (2008)1-3.
- Journal Officiel de la République Algérienne*, N°36; 21 juin (2009) 8.
- Journal Officiel de la République Algérienne*, N°26 ; Décret exécutif n° 06-141 du 20 Rabie El Aouel 1427 correspondant au 19 avril 2006 définissant les valeurs limites des rejets d'effluents liquides.
- Dessachy, C. Les déchets. *T.S.M-l'Eau* n° 11(1994).
- Reitzel, A. The temporal characterization of municipal solid waste leachate. Waterloo, Ontario, Univ. Waterloo. *Masters of applied Science Thesis* (1990) 144.
- Rivett, M.O.; Lerner, D.N.; Liyod J.W. Chlorinated solvents in UK Aquifers. *Journal of Water and Management* 4(1990)242-250.
- Wreford, K.; Atwater, J.M.; Lavkulich, L.M. The effects of moisture inputs on landfill gas production and composition and leachate characteristics at the Vancouver Landfill Site at Burns Bog. *Waste Manage. Res.*, 18(2000)386-392.
- Kjeldsen, P.; Barlaz, M.A.; Rooker, A.P.; Baun, A.; Ledin, A.; Christensen, T.H. Present and long-term composition of MSW landfill leachate. *A review. Crit. Rev. Env. Sci. Tec.* 32(2002) 297-336.
- Christensen, T.H.; Kjeldsen, P.; Bjerg, P.L.; Jensen, D.L.; Christensen, J.B.; Baum, A.; Albrechtsen, H.J.; Heron, G. Biogéochimie de landfill leachate plumes. *Appl. Geochem.* 16(2001)659-718.
- Institut de Veille Sanitaire, Stockage des Déchets et santé publique. Synthèse et recommandation. *Rapport rédigé à la demande des ministères respectivement chargés de l'environnement et de la santé Françaises*(2004).
- Trabelsi, S. Etudes de traitement des lixiviats des déchets urbains par les procédés d'oxydation avancées photochimiques et électrochimiques : application aux lixiviats de la décharge tunisienne "Jebel Chakir"(2012).

27. Vadillo, I.; Carrasco, F.; Andreo, B.; García de Torres, A.; Bosch, C. Chemical composition of landfill leachate in a karst area (Marbella, southern Spain). *Mediterranean climate* (1998).
28. Kjeldsen, P.; Barlaz, M.A.; Rooker, A.P.; Baun, A.; Ledin, A.; Christensen, T.H. Present and Long-Term Composition of MSW Landfill Leachate. *A Review. Crit. Rev. Environ. Sci. Technol.* 32(4) (2002)297-336.
29. Amokrane, A.; Comel, C.; Veron, J. Landfill leachates pretreatment by coagulation/flocculation. *Water Res* 31(11) (1997) 2775-2782.
30. Burton, S.A.; Watson-Craik, I.A. Ammonia and nitrogen fluxes in landfill sites: applicability to sustainable landfilling. *Waste Manage. Res.* 16(1) (1998) 41-53.
31. Mehdi, M.; Larbi, D. Caractéristiques de la décharge publique de la ville de Tiaret et son impact sur la qualité des eaux souterraines. *Courrier du savoir, n°8 : 93-99.OMS Nitrates, Nitrites et composés N-nitroso, Genève. (1980)112.*
32. Mejraoua, Z. Caractérisation Physico-Chimique Du Lixiviat De La Decharge Sauvage De Meknes(2017).
33. Khattabi, H. ; Lotfi, A. ; Mania, J. Evaluation de l'impact des lixiviate d'une décharge d'ordures ménagères sur la qualité physico-chimique et bactériologique des eaux d'un ruisseau de Franche Compté. *Déchets-Sciences et techniques* 24(2002) 1-4.
34. Lounis, Z.; Saddouki, S.; Djafri, F. Removal of Pb²⁺ ions in aqueous phase by a sodic Montmorillonite. *Journal of Analytical Science & Technology* 3 (1) (2012). 104-112.
35. Asthon, A. G.; Barri, B. A. I.; Weyer, J. D. Proceed Siofok meeting on Zeolite Catalysis. *Acta Phys. Chem.Szegedensis* 25(1985).
36. Chen, N.Y., Degnan, T.F. Impact of catalyst acid/metal balance in hydroisomerization of normal paraffins. *Chem. Eng. Prog.* 32. (1988).
37. Harrison, I. D.; Leach, H. F.; Whan, D. A. *Some sorptive and catalytic properties of zeolite Nu10.* 7, 28(1987).
38. Mackenze, R.C. Clay minerals group of mineralogical, *Soc.G. B. annual meeting*, 8 avril (1949).
39. Degremont. *Mémento technique de l'eau, Ed. Degremont, Paris(1989).*
40. Zalaghi, A. ; Lamchouri, F. ; Toufik, H. ; Merzouki, M. Valorisation des matériaux naturels poreux dans le traitement des Lixiviate de la décharge publique non contrôlée de la ville de Taza(2014).
41. Papadopoulos, A.; Fatta, D.; Loizidou, M. Treatment of stabilised landfill leachate by physico-chemical and bio-oxidation processes. *Journal of Environmental Science and Health*, Vol.33, No. 4,(1998)651-670.
42. Boutaric, A.; Fabry, S. Etude physico-chimiques des solutions colloïdales de gluten. *Bull.Soc.Chim.Biol.*,27(1945)621.

Please cite this Article as:

Khalfallah W ., Mehdi M., Lounis Z., Talbi Z., Traitement des lixiviate du Centre d'Enfouissement Technique de Hassi Bounif par l'utilisation de deux types d'adsorbants (*Bentonite et Zéolithe LTA* **Algerian J. Env. Sc., Technology**, 5:4 (2019) 1185-1196