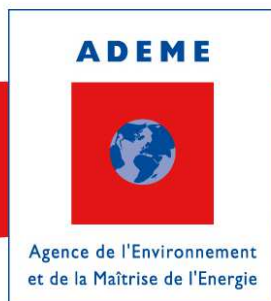


PROJET METHALIX

ETUDE ET EVALUATION DES SYSTEMES RUSTIQUES D'OXYDATION
DE METHANE ET DE TRAITEMENT DE LIXIVIATS

STUDY AND ASSESSMENT OF ALTERNATIVE METHANE OXIDATION SYSTEMS
AND LEACHATE TREATMENT FROM LANDFILLS

Synthèse / Summary



REMERCIEMENTS/ACKNOWLEDGEMENTS

Le projet de recherche « METHALIX » a été réalisé pour l'Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Énergie (ADEME) par SUEZ Environnement et l'INERIS (soutenu par le Ministère de l'Écologie, du Développement Durable et de l'Énergie- MEDDE).

Ce travail est le fruit d'une collaboration entre diverses sociétés ou organismes.

Les personnes mentionnées ci dessous ont participé notablement à la conduite et à la réalisation de ce projet

The research project "METHALIX" was realized for the French Environment and Energy Management Agency (ADEME) by SUEZ Environnement and INERIS (with the support of the French Ministry of Ecology, Sustainable Development and Energy – MEDDE)

This work is the result of a collaboration between several companies or research laboratories

The persons mentioned below have participated to the management and the implementation of this project

Personne	Société ou organisme
Alain HUYARD	SUEZ Environnement/CIRSEE
Anna ÅKERMAN	SITA France
Marion CREST	SUEZ Environnement/CIRSEE
Olivier BOUR	INERIS
Françoise BOURGEOIS	SITA Nord
Delphine PERROT	SITA Centre
Christelle GUEDON	SITA Centre

Rédaction	Vérification	Validation
Alain HUYARD (SE)/ Olivier BOUR (INERIS)	Marion CREST (SE) Rodolphe GAUCHER (INERIS)	Anna ÅKERMAN (SITA France)

En français :

Toute représentation ou reproduction intégrale ou partielle faite sans le consentement de l'auteur ou de ses ayants droit ou ayants cause est illicite selon le Code de la propriété intellectuelle (art. L 122-4) et constitue une contrefaçon réprimée par le Code pénal. Seules sont autorisées (art. 122-5) les copies ou reproductions strictement réservées à l'usage privé de copiste et non destinées à une utilisation collective, ainsi que les analyses et courtes citations justifiées par la caractère critique, pédagogique ou d'information de l'œuvre à laquelle elles sont incorporées, sous réserve, toutefois, du respect des dispositions des articles L 122-10 à L 122-12 du même Code, relatives à la reproduction par reprographie.

En anglais:

Any representation or reproduction of the contents herein, in whole or in part, without the consent of the author(s) or their assignees or successors, is illicit under the French Intellectual Property Code (article L 122-4) and constitutes an infringement of copyright subject to penal sanctions. Authorised copying (article 122-5) is restricted to copies or reproductions for private use by the copier alone, excluding collective or group use, and to short citations and analyses integrated into works of a critical, pedagogical or informational nature, subject to compliance with the stipulations of articles L 122-10 – L 122-12 incl. of the Intellectual Property Code as regards reproduction by reprographic means.

Résumé

La directive européenne du 26 avril 1999 sur la mise en décharge notifie "qu'après la désaffectation définitive d'une décharge, son exploitant est responsable de l'entretien, de la surveillance et du contrôle de la décharge pour toute la durée que l'autorité compétente aura jugée nécessaire compte tenu de la période pendant laquelle la décharge peut présenter des risques. Aussi longtemps que l'autorité compétente estime qu'une décharge est susceptible d'entraîner un danger pour l'environnement,..., l'exploitant du site est responsable de la surveillance, de l'analyse des gaz de décharge et des lixiviats du site ainsi que des nappes d'eau souterraines situées à proximité, conformément à l'annexe III."

La collecte et le traitement de faibles productions résiduelles de biogaz constituent une des problématiques spécifiques de la post-exploitation, en particulier après une période de plus de 15 ans après l'arrêt de l'exploitation quand les émissions de méthane (CH₄) deviennent trop faibles ou trop difficiles à capter pour être brûlées en torchère ou valorisées. Lorsque la concentration en méthane diminue (en dessous de 20 – 25% de méthane) et que le débit chute, les traitements thermiques alternatifs à la destruction en torchère deviennent plus coûteux et complexes à mettre en œuvre.

Quant au traitement des lixiviats, les méthodes conventionnelles sont constituées de chaînes de traitement élaborées, généralement issues de traitements d'effluents urbains et/ou industriels, nécessitant des compétences techniques et un entretien fréquent et sont en générale très consommateur d'énergie et parfois aussi de réactifs. Ces chaînes de traitement existantes sur les sites en exploitation ne sont pas adaptées à la problématique du traitement des lixiviats en phase post-exploitation, lorsqu'il n'y a plus de personnel permanent présent sur le site.

Il convient donc de trouver des solutions plus passives de traitement pour le biogaz et les lixiviats pendant la phase post-exploitation. METHALIX a étudié les méthodes « rustiques » (définies dans ce projet comme des méthodes performantes nécessitant peu d'intervention humaine) de traitement du biogaz et des lixiviats par atténuation naturelle pouvant être adapté au contexte d'une installation de stockage de déchets non-dangereux (ISDND) en phase post-exploitation.

Les **objectifs** du projet **METHALIX** sont les suivants :

- ☞ Étudier l'**atténuation naturelle du méthane** par oxydation bactérienne au sein de **couvertures et fenêtres oxydantes** sur des installations de stockage de déchets (ISDND).
- ☞ Étudier la faisabilité du traitement et la capacité épuratoire d'une **méthode « rustique » de traitement de lixiviats** des ISDND.

Le travail a été divisé en deux parties A et B, la première traitant de l'oxydation des émissions résiduelles de méthane et la seconde portant sur le traitement rustique des lixiviats par lit bactérien.

Partie A : Oxydation des émissions résiduelles de méthane

Une première étape bibliographique a permis de sélectionner le type de dispositif (fenêtre oxydante) et la méthode d'évaluation de l'oxydation (par bilan de masse). Cette méthode fournit une évaluation de l'oxydation qui est corrélée à celle obtenue par mesure isotopique (la méthode de référence), tout en ne nécessitant pas de mesures coûteuses. On doit néanmoins vérifier que le CO₂ mesuré a comme provenance principale le biogaz introduit dans le système.

Une phase de sélection de sites, comportant la réalisation de plusieurs campagnes de mesure de flux de méthane lors d'arrêts de captage, dans les périodes favorables à la mesure, a permis de préciser le dispositif oxydant le méthane à utiliser. Le constat de la prééminence des flux résiduels à proximité immédiate des puits a permis de faire évoluer la fenêtre oxydante vers une conception d'anneau oxydant, permettant de réduire les flux résiduels les plus difficiles à traiter, à savoir ceux liés aux discontinuités que représentent les puits de dégazage au sein de la couverture et à leur proximité immédiate.

Suite au choix de cette conception, des fenêtres oxydantes ont été réalisées sur deux sites notés A et D, dont un site en phase de suivi post exploitation (site A). Une phase de sélection de matériaux locaux a été

réalisée pour élaborer les dispositifs qui comprennent un niveau de diffusion en matériau granulaire et un niveau de traitement bicouche, plus perméable en profondeur pour permettre une évacuation plus rapide des eaux météoritiques et une diffusion facilitée du biogaz.

Outre la réalisation des dispositifs, une instrumentation des dispositifs de traitement comportant notamment 24 cannes de mesure par anneau et des tubes pour mesure d'humidité volumique par sonde TDR a été mise en place. Une période de latence variant entre 2 mois (site A, été 2012) et 4 mois (site D, hiver, 2012/2013) a été appliquée avant le suivi des flux sur en moyenne 4 campagnes de mesure, pour permettre une meilleure adaptation des bactéries méthanotrophes avant le démarrage du suivi.

Le suivi a démontré l'établissement rapide d'une oxydation sur les deux anneaux du site A.

Dans le cas de l'anneau présentant la charge en méthane la plus importante (anneau C6 de 12 m de diamètre, charge totale variant entre 0,1 et 1,5 m³ de méthane/h), une efficacité d'environ 75% a été atteinte pour une charge surfacique d'environ 2 l de méthane/m²/h. Cette efficacité confirme celle précédemment obtenue par l'INERIS pour une charge analogue et un concept de traitement comparable (site de Launay-Lantic).

Au-delà de cette charge, on observe sur cet anneau une chute rapide de l'efficacité de l'oxydation à un taux d'environ 30%, taux qui semble se maintenir jusqu'à la charge d'environ 10 l de méthane/m²/h (mesuré sur une campagne).

L'anneau le moins chargé en méthane (charge totale variant entre 0,07 et 0,5 m³/h de méthane) dispose d'une surface de traitement deux fois plus faible. On n'a pas observé de limite au potentiel d'oxydation sur cet anneau, le pourcentage d'oxydation restant dans l'intervalle 70% - 90% sur l'ensemble de la gamme des charges surfaciques de méthane explorées par les mesures (1,5 – 10 l/m²/h). On a également observé sur la périphérie de l'anneau une efficacité de 75% de l'oxydation pour une charge surfacique comprise entre 0,9 et 3 l de méthane/m²/h.

L'action principale de ces dispositifs mis en place est donc de maintenir une efficacité de l'oxydation pour une charge relativement élevée en méthane, et initialement mal répartie (essentiellement convective, due aux « hot spots »).

Dans le cas du site D, la conjonction d'une faible charge en biogaz et d'une activité résiduelle de maturation détectée sur le plot témoin de ce site n'a pas permis d'évaluer l'oxydation. Un démarrage de l'oxydation semble néanmoins se produire sur l'anneau oxydant de ce site. La poursuite de l'activité de dégazage à proximité des zones de drainage et de traitement passif semble réduire fortement les débits de biogaz susceptibles d'être traités dans ces dispositifs passifs.

La confirmation de la gamme du potentiel de traitement par oxydation (75% d'efficacité pour une charge d'environ 50 l de méthane/m²/jour) ainsi qu'une amélioration locale de l'oxydation en périphérie des dispositifs mis en place permet d'envisager ce type de traitement pour les zones sans captage actif présentant des faibles charges résiduelles en biogaz. Dans le cas de zones soumises au drainage actif du biogaz, le fonctionnement de ces systèmes passifs est fortement influencé par le rayon de captage des puits proches et semble plus difficile à mettre en évidence.

L'oxydation des flux de méthane localisée dans les niveaux superficiels des anneaux a également pu être observée par caméra infrarouge sur les anneaux du site A. L'absence de végétation sur ces anneaux a permis d'observer des contours très proches entre l'anomalie thermique principale de l'anneau de 12 m de diamètre et le résultat des mesures de flux de méthane oxydés interpolées sur l'anneau. Dans les cas des flux plus faibles de méthane oxydés, la localisation plus en profondeur de l'oxydation explique les différences entre les flux mesurés composant deux zones d'isocontours plus élevés et la seule anomalie thermique détectée par caméra infrarouge.

Partie B : Traitement des lixiviats par lit bactérien

L'étape bibliographique a permis de recenser différents types de traitements rustiques permettant de traiter les lixiviats émis lors de la phase de post exploitation d'ISDND. Ces traitements peuvent être classés en 2 catégories selon leur emprise au sol :

- ☞ extensifs comme la zone humide artificielle, le lagunage, l'irrigation sur taillis de courte rotation (TTCR)
- ☞ intensifs comme le lit planté de roseaux et le lit bactérien.

Afin de suivre les performances épuratoires d'un lit bactérien sur la réduction des teneurs en Demande chimique en oxygène (DCO) et en azote ammoniacale (N-NH₄) dans le lixiviat d'une ISDND, un pilote de 16 m³ a été installé sur le site A etensemencé avec une boue de station d'épuration.

Les données de traitement de lixiviat à l'échelle de pilote semi-industriel ou de réalisation industriel étant peu abondantes, le dimensionnement du pilote s'est basé sur les paramètres de fonctionnement habituel pour un effluent de type eau résiduaire.

Les essais menés au cours des années 2012 et 2013 sur ce pilote ont souligné la difficulté de mettre en route ce procédé pour du lixiviat. En conséquence, avec les conditions de fonctionnement utilisées, seulement une partie de la DCO soluble a pu être éliminée et un début de nitrification du lixiviat a été obtenu au cours du dernier mois d'essais.

En effet, la mise en contact du lixiviat avec une flore microbienne décarbonante et nitrifiante en condition aérobie a fait intervenir différentes réactions chimiques, conduisant à des variations de pH : l'initiation de l'élimination de la DCO s'accompagne d'une augmentation de pH (pH > 9,5) et une perte de TAC. A ce niveau de pH, une partie du NH₄ est éliminée par phénomène de stripping sous forme de NH₃. Le pH résultant limite les abattements de la DCO et du N-NH₄, respectivement de 12,5 et 35 %. Ces valeurs sont faibles comparées à celles obtenus lors de test en laboratoire (soit 46,8 et 100 % respectivement). L'abattement maximal est donc loin d'être atteint.

La mise en place d'une régulation pH et la diminution de la charge appliquée ont permis de réduire le stripping et de constater le démarrage d'une nitrification biologique. La poursuite de ces essais durant 2 mois en fin d'été 2013, initiée par un réensemencement avec la boue biologique de la station de traitement des lixiviats d'une ISDND voisine ont permis d'atteindre une élimination de la DCO soluble de 29 % et du N-NH₄ de 83 % sur ce pilote lit bactérien. Ces résultats prometteurs demandent à être confirmé par l'atteinte de régime stationnaire.

Ces éléments concourent à montrer que les essais ont été démarrés avec une charge trop importante en lixiviat en alimentation du réacteur.

Pour traiter la DCO et le NH₄ contenus dans les lixiviats d'ISDND en post exploitation, le lit bactérien, par sa rusticité, semblait un procédé de traitement prometteur. Les essais ont montré que le pilote, contrôlé à distance par une télégestion, nécessitait peu de main d'œuvre (2 passages de contrôle par semaine). Bien que la pleine potentialité de ce procédé n'ait pas pu être évaluée dans ce projet, il a été mis en lumière des préconisations opérationnelles essentielles à son démarrage :

- réalisation de tests préliminaires de biodégradation de la DCO soluble et du NH₄ du lixiviat considéré, avec suivi du pH et évaluation de la quantité de réactifs nécessaire à la stabilisation d'un pH favorable au développement de la flore nitrifiante
- dimensionnement basé sur les résultats de ce test
- mise en place d'une régulation pH si besoin
- ensemencement avec une boue biologique traitant des lixiviats similaires
- démarrage à faible charge, avec augmentation progressive
- précautions similaires lors de la reprise de fonctionnement après la période hivernale. Un réensemencement peut être nécessaire.

Resume

The European Landfill Directive of 26 April 1999 notifies that “after a landfill has been definitely closed, the operator shall be responsible for its maintenance, monitoring and control in the after-care phase for as long as may be required by the competent authority, taking into account the time during which the landfill could present hazards. For as long as the competent authority considers that a landfill is likely to cause a hazard to the environment, ..., the operator of the site shall be responsible for monitoring and analysing landfill gas and leachate from the site and the groundwater regime in the vicinity of the site...”.

The collection and treatment of residual landfill gas (LFG) are one of the specific issues of the landfill aftercare management, especially after a period of more than 15 years after discontinuation of operation, when methane production becomes too low or too difficult to capture in order to be flared or recovered to energy. When the methane concentration decreases (below 20-25% of methane) and LFG flow falls, thermal treatments other than flaring become more expensive and complex to implement.

As for the treatment of leachate, conventional methods consist of developed treatment chains, generally from urban or industrial effluent treatments, requiring technical skills and frequent maintenance and are usually very energy-intensive and sometimes also reagents consuming. These existing processing chains used on landfill sites in operation are not suitable for the issue of the treatment of leachate in the aftercare phase, when there is no longer permanent staff present on site.

Hence there exists a need to find more simple and passive treatment solutions for LFG and leachate during the aftercare phase. The METHALIX project has studied the “rustic” processes (defined here as efficient processes that require low maintenance and thus man power) to treat LFG and leachate by natural attenuation that can be adapted to the context of a landfill site in the aftercare period.

The **objectives** of the research project **METHALIX** are to:

- Assess the **natural attenuation of methane** by bacterial **oxidation** in **biocovers and biowindows** on non hazardous waste landfills.
- Assess the treatment feasibility and efficiency of a “**rustic**” **landfill leachate treatment** method.

The project has been divided into two parts A and B, the first dealing with the oxidation of residual emissions of methane (CH₄) and the second with the simple biological treatment of leachate by trickling filter.

Part A: Oxidation of residual methane emissions

A first bibliographical phase enabled selecting the type of oxidation system (biowindow) and the method of evaluation of oxidation (by mass balance). This method provides an evaluation of the oxidation that is correlated to that obtained by isotope measurement (reference method), while requiring no expensive measures. It is important to check that the CO₂ measured comes mainly from the LFG fed into the system.

A site selection phase, including several methane flux measurement campaigns in absence of active collection of the LFG, allowed to specify the methane-oxidizing system to use. The observation of the rule of residual flows in the immediate vicinity of the wells has helped evolving the first choice of biowindow (oxidation window) to an oxidation ring design. This enabled addressing residual flows that are more difficult to treat, namely those immediately closed to and further around the LFG wells.

Following the choice of this oxidation system design, oxidizing windows were constructed on two landfill sites named A and D, one of which was closed and in the aftercare phase (site A). Locally found materials were selected to be used to build the system, that consisted of a level of diffusion in granular material and a standard treatment bilayer more permeable in depth to enable a faster drainage of meteoritic water and a facilitated diffusion of the LFG.

In addition to the construction of the oxidation ring systems, instrumentation of the systems with particular measurements including 24 soil air probes per system and tubes for volumetric humidity TDR measurements were implemented. A latency period ranging from 2 months (site A, summer 2012) and 4

months (site D, winter 2012/2013) was applied before the monitoring of flows on average 4 measurement campaigns, to allow a better adaptation of the methanotrophs before monitoring starts.

The monitoring showed the rapid establishment of oxidation on the two oxidation rings on site A. As for the oxidation ring with the largest methane load (ring C6 of 12 m diameter, total load varying between 0.1 and 1.5 m³ of methane/h), about 75% efficiency has been reached for a surface load of about 2 l of methane/m²/h. This performance confirms that previously obtained by the INERIS for a similar charge and a comparable treatment concept (site of Launay-Lantic). Beyond this load, a rapid drop in efficiency of oxidation at a rate of about 30 % was observed on this ring, which seems to be continued until the load of approximately 10 l of methane/m²/h (measured on a campaign).

The lowest methane loaded oxidation ring (total load varying between 0.07 and 0.5 m³/h of methane) has a lower surface of treatment (divided by 2). No limit to the potential of oxidation on this ring was found, the percentage of oxidation remaining in the range 70-90% on the entire range of surface load of methane explored by the measures (1.5-10 l/m²/h). An efficiency of 75 % of oxidation for a surface load between 0.9 and 3 l of methane /m²/h was also observed on the outskirts of the ring.

The main action of these oxidation systems is therefore to maintain efficiency of oxidation for a relatively high load in methane, and initially poorly distributed (mostly convective, due to the 'hot spots').

In the case of site D, the combination of a low LFG load and a residual activity of maturation detected on the witness plot (system with only filter material and no LFG flow) did not allowed to assess oxidation. Starting of oxidation nevertheless appears to occur on the oxidizing ring of this site. Continued activity of active LFG collection near the zones of passive drainage and treatment appears to reduce strongly LFG flow likely to be treated in these passive devices.

Confirmation of the range of the potential of treatment by oxidation (75% efficiency for a load of about 50 l of methane/m²/day) as well as a local improvement of the oxidation on the outskirts of the devices allows to consider this type of treatment for areas without active drainage and with low residual LFG loads. In the case of the active LFG drainage areas, the operation of these passive systems is strongly influenced by the radius of capture of the nearby wells and seems more difficult to demonstrate.

The oxidation of methane flows in surface levels of the rings has also been observed by infrared camera on the rings of the site. The absence of vegetation on these rings allowed observing very close contours between the main thermal anomaly of the ring of 12 m diameter and the result of the oxidized methane flux measurements interpolated on the ring. In the case of weaker flow of oxidized methane, the oxidation localization more in depth explains differences between two higher measured flows isocontours areas and the only thermal anomaly detected by infrared camera.

Part B: Treatment of leachate by trickling filter

A first bibliographical phase has enabled identifying different types of rustic treatments of leachate produced during the landfill aftercare phase. These treatments can be classified into 2 categories according to their grip on the ground:

- ☞ extensive as the artificial wetland, lagoon, irrigation on short rotation energy forestry
- ☞ intensive as the planted bed of reeds and the trickling filter.

To monitor the treatment performance of a trickling filter as for the reduction of the levels of Chemical Oxygen Demand (COD) and ammonia (N-NH₄) in a landfill leachate, a pilot of 16 m³ was installed on site A and inoculated with a sludge of sewage.

Data treatment of leachate in industrial or semi-industrial pilot scales being scarce, the design of the pilot was based on the usual parameters for a domestic waste water effluent.

Trials over the years 2012 and 2013 on this pilot pointed out the difficulty of implementing this treatment for leachate. Accordingly, with the operating conditions used, only a part of the soluble COD could be eliminated and a beginning of nitrification of landfill leachate has been obtained during the last month of testing.

Indeed, the bringing into contact of the leachate with carbon removing and nitrifying microbial flora in aerobic condition has led to different chemical reactions, involving changes in pH: beginning of the COD removal is accompanied by an increase in pH ($\text{pH} > 9.5$) and a loss of alcalimetric title. At this pH level, a part of NH_4 is eliminated by phenomenon of stripping as NH_3 . The resulting pH limits reductions of COD and N-NH_4 , respectively 12.5 and 35%. These values are low compared to those obtained in laboratory testing (both 47 and 100%, respectively). The maximum reduction is therefore far from being achieved.

Setting up a pH regulation and the reduction of the applied load helped to reduce stripping and observe the start-up of biological nitrification. The continuation of these tests during 2 months late summer 2013, initiated by a reseedling (inoculation with biological sludge from a nearby landfill leachate treatment plant) enabled to achieve elimination of the soluble COD 29% and N-NH_4 83% on this trickling filter. . These promising results require to be confirmed by the achievement of a steady state.

These elements together show that the tests have been started with a too high load in leachate in the reactor.

To treat the COD and NH_4 contained in the landfill leachate, the trickling filter, by its rusticity, seems a promising treatment process. Tests showed that the pilot, controlled by a remote management device, required low manpower (2 control rounds per week). Although the full potential of this process could not be assessed in this project, following recommendations need to be taken into account when implementing the treatment process:

- realization of preliminary tests of biodegradation potential for soluble COD and NH_4 , with pH monitoring and assessment of the amount of reagents needed for stabilization of a pH favorable to the development of the nitrifying flora
- sizing of the process by using the results of the previous testing
- implementation of a pH-control if necessary
- inoculation of the biotrickling filter with a biological sludge treating similar leachate
- start-up at low loads, with progressive increase
- similar precautions when starting up again after the winter period. A reseedling may be necessary.

