

THESE

n° 18924

présentée le 17 Mai 1994 pour obtenir le grade de

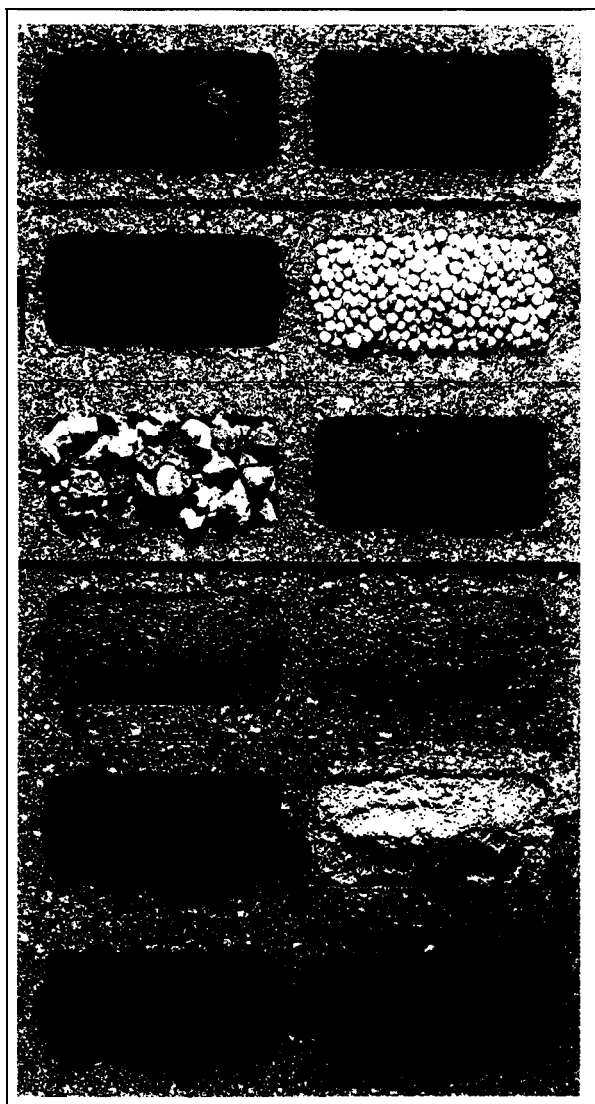
Docteur de l'Université de METZ

Mention : Toxicologie de l'Environnement

I'

3

**ETUDE DES RELATIONS MOBILITE-BIODISPONIBILITE-TOXICITE
DES MICROPOLLUANTS PRESENTS DANS LES DECHETS INDUSTRIELS.
APPLICATION A LA GESTION
DES CENTRES D'ENFOUISSEMENT TECHNIQUE DE CLASSE 1**



Lucie LAMBOLEZ

Maître de Séminaires

Membres du jury :

P. BEGASSAT, ADEME, Angers

H. BILLARD, France Déchets, Gargenville,

F. COPIGNEAUX, Ministère de l'Environnement, Paris

J.F. FERARD, Université de Metz

P. LEHR, URA CNRS 1293, Université de Nancy I

A. NAVARRO, INSA de Lyon (Rapporteur)

P. VASSEUR, Université de Metz (Directeur de thèse)

D. ZMIROU, Université de Grenoble (Rapporteur)

-SOMMAIRE-

AVANT PROPOS

INTRODUCTION GENERALE 1

ANALYSE BIBLIOGRAPHIQUE 3

CHAPITRE 1 : L'ELIMINATION DES DECHETS EN CENTRE D'ENFOUISSEMENT TECHNIQUE (C.E.T.)

1 Généralités	3
1.1 Quantités de déchets produits en France et en Europe	3
1.2 La gestion des déchets	4
1.2.1 Cadre législatif initial	4
1.2.2 Les filières d'élimination	4
1.2.3 La loi du 13 juillet 1992 (J.O. du 14 juillet 1992)	5
2 La mise en décharge	6
2.1 Le transfert des micropolluants	6
2.1.1 Les propriétés des micropolluants	7
2.1.2 Les caractéristiques de la phase liquide	7
a) Influence du pH	7
b) Influence du potentiel d'oxydo-réduction	8
c) Influence de la charge minérale du milieu	8
d) Influence de la charge organique du milieu	8
2.1.3 Les caractéristiques de la matrice	9
a) Influence de la porosité sur les capacités de rétenion de la matrice	9
- La perméabilité	
- Les capacités d'adsorption et d'échange	
b) Capacité de rétenion des sols	10
- Propriétés des argiles	
- Propriétés des oxydes et hydroxydes	
- Propriétés de la matière organique	
- Capacité d'échange d'un sol	

- Atténuation de la charge polluante des lixiviats par les sols argileux	
2.2 La qualité des percolats de décharge	13
3 Conception et aménagement des centres d'enfouissement technique de classe 1	14
3.1 Le choix du site	15
3.2 Les aménagemen ts	15
4 La qualité des déchets enfouis	16
4.1 Les déchets acceptés en centre d'enfouissement technique de classe I ...	16
4.2 La solidification/stabilisation des résidus ultimes	17
4.3 Procédures d'acceptation et de contrôle des déchets	18
4.4 La lixiviation au laboratoire	19
4.4.1 Les différentes procédures de lixiviation	19
4.4.2 La norme française (X31.210)	20
4.4.3 Influence de la procédure de lixiviation	21
4.4.4 Conclusion	22

CHAPITRE II : ANALYSES TOXICOLOGIQUES ET PERCOLATS

1 Evaluation de la toxicité	23
1.1 Généralités	23
1.2 Principe de l' évaluation de l' écotoxicité	24
1.2.1 Tests mono-espèce et pluri-espèces	25
1.2.2 Critères de toxicité	25
a) Effets globaux	26
b) Effets spécifiques	26
1.2.3 Organismes testes	28
1.3 Expression de la toxicité	29
1.3.1 Détermination de la CE50	30
1.3.2 Limites de la CE50	31
1.3.3 NOEC, LOEC	31
i.3.4 Les unités toxiques ou équitox/m³	31
2 Evaluation de la toxicité des effluents industriels	32
2.1 Complémentarité de l'approche physico-chimique et toxicologique	32

2.2 Evaluation toxicologique et réglementation	33
3 La toxicité des percolats et lixiviats	33
3.1 Toxicité des percolats de décharge	34
3.2.1 Tests mis en oeuvre	34
3.1.2 Bilan des études	35
3.2 Toxicité des lixiviats de déchets	36
3.2.1 Etude de l'IRH	36
3.2.2 Influence de la procédure de lixiviation sur la toxicité	37
3.2.3 Conclusion	37
<u>RESULTATS EXPERIMENTAUX</u>	38
 CHAPITRE III : PRESENTATION DE L'ETUDE ET METHODOLOGIE	
1 Le site	38
1.1 Géologie du site	38
1.2 Aménagements	38
2 Echantillons testés	40
2.1 Les déchets	40
2.1.1 Déchets non stabilisés	40
a) Origine des déchets	40
b) Préparation des lixiviats	40
2.1.2 Déchets solidifiés/stabilisés	41
a) Origine	41
b) Préparation des lixiviats	41
2.2 Les percolats de décharge	41
2.3 Les eaux de surface	42
3 Analyses toxicologiques	42
3.1 Présentation de la batterie de tests	42
3.2 Test Microtox	43
a) Principe	43
b) Intérêts et limites	43
c) Méthodologie	44

3.3 Test algue	45
a) Principe	45
b) Intérêts	45
c) Méthodologie	45
d) Avantages et limites du test algue réalisé en microplaque	46
3.4 Tests daphnie	47
a) Principe	47
b) Intérêts et limites	47
c) Méthodologie	48
3.5 Test de mutagénicité selon Ames	50
a) Principe	50
b) Intérêts et limites	51
c) Méthodologie	52
3.6 Expression des résultats	54
a) Test Microtox, test d'immobilisation de Daphnia magna , test algue	54
b) Test de reproduction de Daphnia magna	54
c) Test d'Ames	55
 4 Analyses chimiques	55
 5 Conservation des échantillons	56
5.1 Généralités	56
5.2 Conservation des lixiviats et des percolats	56
 6 Analyse multivariée des données	57
6.1 L'analyse en Composantes Principales (ACP)	57
6.2 L'Analyse Factorielle des Correspondances Multiples (AFCM)	58

CHAPITRE IV : TOXICITE DES LIXIVIATS DE DECHETS ET DES PERCOLATS DE DECHARGE. QUALITE DES EAUX DE SURFACE.

1 Toxicité des lixiviats de déchets	60
1.1 Déchets non stabilisés	60
1.1.1 Résidus de la dépollution de l'eau	60
a) Analyses toxicologiques	60

b) Analyses chimiques	61
1.1.2 Résidus de peinture	62
a) Analyses toxicologiques	62
b) Analyses chimiques	63
1.1.3 Résidus de la métallurgie	64
a) Analyses toxicologiques	64
b) Analyses chimiques	64
1.1.4 Résidus d'incinération	65
a) Analyses toxicologiques	65
b) Analyses chimiques	65
1.1.5 Matériaux contaminés (terres souillées par des PCBs)	66
a) Analyses toxicologiques	66
b) Analyses chimiques	66
1.1.6 Variation de la qualité des lixiviats en fonction des arrivages ..	66
1.1.7 Conclusion sur la toxicité des déchets non stabilisés	67
1.2 Déchets solidifiés/stabilisés	68
1.2.1 Analyses toxicologiques	68
1.2.2 Analyses chimiques	68
1.2.3 Conclusion	69
2 Toxicité des percoiats de décharge	70
2.1 Analyses toxicologiques	70
2.2 Analyses chimiques	71
2.3 Conclusion	72
3 Qualité des eaux de surface	73
3.1 Analyses toxicologiques	73
3.2 Analyses chimiques	75
3.3 Conclusion	75
<u>DISCUSSION</u>	77
1 Bilan des, études. Relations entre les analyses toxicologiques et physico-chimiques	77

2 Mise en oeuvre et interprétation des analyses toxicologiques	81
3 Application du contrôle toxicologique à la gestion des déchets	84
<u>CONCLUSION GENERALE</u>	87
<u>REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES</u>	91
<u>ANNEXES</u>	

- AVANT-PROPOS -

Dans cette étude, la toxicité des micropolluants **présents** dans les **déchets** industriels n'a **été** testée que vis **à** vis d'organismes aquatiques. L'utilisation du terme "**TOXIQUE**" ne s'adresse par conséquent qu'aux espèces aquatiques bien définies de cette étude -et non **à** l'homme-.

Le terme "**ÉCOTOXIQUE**" qualifie tout élément capable de perturber l'équilibre d'un **Écosystème** donné. A la différence de la toxicologie qui ne s'intéresse qu'à une seule **espèce**, l'écotoxicologie cherche **à évaluer** les impacts sur l'ensemble des populations et prend en compte, pour un **écosystème** donné, les nombreuses interactions susceptibles de se produire entre ses **différents** composants. Dans le cadre de cette **étude**, le terme "écotoxique" s'adresse au seul environnement aquatique.

INTRODUCTION GENERALE

L'**élimination** des **déchets ménagers**, industriels, hospitaliers, nucléaires, constitue un enjeu majeur des pays **développés** en matière de protection de l'environnement. C'est une préoccupation au niveau du grand public mais également au niveau des instances nationales et communautaires. Il s'agit de mettre en place **et** d'harmoniser des programmes **d'élimination** conduisant à une gestion plus rationnelle et efficace de l'ensemble des déchets, qui soit de nature **à préserver** l'environnement.

Ces **différentes catégories** de déchets, qui **présentent** des spécificités quant à leur nocivité, leur **complexité** et leur **quantité**, devront suivre des **procédures** d'élimination particulières parmi lesquelles figurent : le recyclage, la valorisation, **l'incinération**, les traitements physico-chimiques **et/ou** biologiques et la mise en décharge. Cette Ctude concerne les problèmes de mise en décharge des **déchets** et plus particulièrement ceux liés au stockage des déchets industriels dits spéciaux dans les Centres **d'Enfouissement Technique** (C.E.T.) de classe 1.

Le principal risque de contamination de l'environnement **lié à** la mise en décharge des **déchets** provient de la formation de lixiviats. Ces lixiviats résultent essentiellement du passage des eaux **météoriques**, au travers des résidus. Ces lixiviats seront chargés des micropolluants, organiques ou minéraux, présents dans les déchets et extractibles ; la **dissémination** de ces **contaminants** pourra conduire à une pollution des eaux de surface **et/ou** des eaux souterraines aux environs du centre d'enfouissement. Ceci justifie le choix de sites de stockage **imperméables** et la mise en place d'aménagements tels que les membranes **d'étanchéité** ou la couverture des déchets. La réduction de la toxicité de la fraction lixiviable des déchets enfouis participera également **à** la protection de l'environnement.

Cette Ctude a Cte réalisée en Ctroite collaboration avec la **Société FRANCE DECHETS** dont la principale **activité** est la gestion des C.E.T. de classe 1. L'objectif **était** d'évaluer le potentiel toxique, pour le milieu aquatique, représenté par les déchets industriels **destinés à** l'enfouissement.

Des **critères** biologiques ont été intégrés aux **critères** physico-chimiques requis habituellement pour le **contrôle** de la **qualité** des **déchets** entrant sur le site. **L'évaluation** de la **toxicité** de la **fraction** lixiviable de différents déchets admissibles en C.E.T. de classe 1 constitue la **première** phase de notre travail. 12 **déchets** appartenant aux principales **catégories** des déchets admis en C.E.T. de classe 1 ont Cte **échantillonnés**. **L'efficacité** des traitements de **solidification/stabilisation** des poussières **d'incinération**, qui **seront** exigés prochainement par la législation, a **également été contrôlée**.

Nous nous sommes, dans un second temps, intéressés à la **toxicité** des percolats de **décharge** afin de suivre le transfert des micropolluants au niveau du site.

Pour **vérifier** le confinement des déchets et l'absence de rejets contaminés susceptibles de nuire à l'environnement, un contrôle de la qualité des eaux de surface aux alentours du site a **été** entrepris.

L'ensemble des échantillons **a été prélevé** sur un C.E.T. de classe **I** préalablement **sélectionné** pour cette étude pilote.

La stratégie **développée** pour l'**étude** des risques pour l'environnement aquatique **intègre** l'évaluation des **différentes** formes de **toxicité** - à court terme et à long terme en incluant la génotoxicité- et l'utilisation d'organismes aquatiques représentatifs de divers taxons : bactéries, animaux, végétaux.

Une batterie de cinq tests **complémentaires** est proposée pour dresser un profil toxicologique aussi complet que possible de chacun des échantillons. La toxicité aiguë ou à court terme a **été** évaluée sur une bactérie *Photobacterium phosphoreum* (test Microtox) et sur un microcrustacé d'eau douce (test d'immobilisation de *Daphnia magna*). Les effets toxiques vis-à-vis des végétaux ont **été** mis en **Evidence** à l'aide du test d'inhibition de la croissance de l'algue *Raphidocelis subcapitata*. Les effets à plus long terme liés au **caractère** bioaccumulable **et/ou** génotoxique des polluants **extractibles présents** ont **été** testés à l'aide du test de reproduction de *Daphnia magna* et du test de **génotoxicité d'Ames**.

Dans le premier chapitre est **présentée** la **législation** en vigueur concernant la mise en décharge des déchets spéciaux. Une partie est **consacrée** aux mécanismes qui, au sein de la décharge et dans le sol, vont **régir** le transfert des micropolluants dans la phase aqueuse.

Le second chapitre est **réservé** à l'évaluation écotoxicologique. **L'intérêt** et les limites des tests de toxicité en laboratoire seront **détaillés**. Une **brève** revue des études de **toxicité** des lixiviats de déchets ou des percolats de **décharge** déjà **réalisés** est **proposée**.

Nous aborderons ensuite la partie expérimentale. Après une **présentation** de l'étude et de l'ensemble **des méthodes utilisées** (chapitre III), les résultats des analyses toxicologiques seront donnés (chapitre IV).

Avant de conclure, nous discuterons des différents résultats obtenus et de l'intérêt de **l'outil** écotoxicologique dans la gestion des **déchets**. Les limites de l'analyse chimique dans la **prévision** des risques **écotoxicologiques** seront **examinées**.

CONCLUSION GENERALE

Les centres d'enfouissement technique constituent le "maillon" final dans la grande chaîne de l'élimination des **déchets** industriels et urbains et sont de ce fait indispensables. Cependant, comme le soulignaient CASAGRANDE et LAURET en 1990 (France Déchets), il y a, compte tenu des quantités mises en jeu chaque année, un important pari écologique à gagner.

Le principal risque pour l'environnement est **lié à** l'entraînement potentiel par l'eau des polluants **présents** dans les résidus stockés. Leur dissémination dans le milieu naturel est susceptible de conduire à une altération de la santé des **écosystèmes** et de l'homme.

Dans ce travail, nous nous sommes focalisés sur l'étude de la **mobilité** et de la toxicité des micropolluants **présents** dans les **déchets** industriels admis en C.E.T. de classe 1 et plus spécifiquement de leur impact sur les organismes aquatiques.

Une batterie de cinq tests de toxicité a **été** utilisée :

- le test d'inhibition de la luminescence de la **bactérie** *Photobacterium phosphoreum* (test Microtox),
- les tests d'immobilisation (test 24 h) et de reproduction (test 28 j) du microcrustacé *Daphnia magna*,
- le test d'inhibition de la croissance de l'algue *Raphidocelis subcapitata*,
- le test de **mutagénèse** sur *Salmonella typhimurium* his⁺ (test **d'Ames**).

Ces tests ont **été** choisis pour leur **complémentarité**. Ils permettent d'évaluer toutes les formes de **toxicité** des échantillons : à court et à plus long terme ainsi que la **génotoxicité**, et de tester des organismes représentatifs des principaux niveaux trophiques des systèmes hydriques. Ces essais sont de plus assez faciles à **réaliser** et leur **coût** est raisonnable.

Les analyses physico-chimiques **exigées** par la réglementation pour le **contrôle** de la gestion des déchets ont **été réalisées en parallèle**.

La **toxicité** de la fraction lixiviable de 12 déchets de diverses origines a **été testée**. Parmi ces déchets figuraient 3 boues d'hydroxydes **métalliques**, 4 résidus de **l'incinération**, 2 résidus de peinture, 2 résidus de la **métallurgie**, 1 échantillon de terres contaminées par **des PCBs**. Les résultats ont montré que :

- **une** fraction toxique non négligeable pouvait être **élue** de certains **déchets**,
- la toxicité pouvait s'exprimer aussi bien à court terme qu'à long terme. 2 boues d'hydroxydes métalliques, une boue de peinture et un des **résidus** de la **métallurgie** renfermaient notamment des substances génotoxiques,

- la toxicité **n'était** pas **prédictible** des résultats de l'analyse 'physico-chimique réalisée conformément **à la réglementation**.

Récemment, d'importants travaux de recherche ont **été** réalisés afin de **réduire** la charge polluante de la fraction lixiviable des déchets enfouis, et par là même, de faciliter la gestion des risques environnementaux. Nous nous sommes intéressés dans cette étude, **à** l'efficacité des **procédés de solidification/stabilisation à base de ciment**, **à** limiter le relargage des **métaux présents** en quantités importantes dans les **résidus** issus de l'épuration des **fumées** d'incinération des ordures **ménagères**. Deux résidus **d'incinération** ont **été** testés, avant et après inertage. Il apparaît, **après solidification/stabilisation**, une nette **réduction** de la **toxicité** des lixiviats produits. **L'efficacité** de ce processus d'inertage est **confirmée** par les résultats de l'analyse physico-chimique qui montre une **réduction** importante des concentrations en sels et en métaux relargués. Ces processus d'inertage des résidus **d'incinération** devraient être mis en place **à l'échelle** industrielle très prochainement.

Nous avons, dans un second temps, **évalué** la toxicité des percolats de la décharge. Dans ces eaux se trouve l'ensemble des polluants extraits des résidus enfouis. Comme on pouvait s'y attendre, ces eaux se montrent très **chargées** en micropolluants organiques et minéraux et sont excessivement toxiques vis **à vis** des organismes testés. Une génotoxicité est également mise en évidence. Si la toxicité de ces percolats n'atteint pas les niveaux de toxicité observés avec certains résidus, le soin qui sera apporté **à** leur confinement et **à** leur traitement est tout **à fait** justifié.

Nous avons, dans la **dernière** partie de cette **étude**, contrôlé la **qualité** des eaux de surface aux alentours du site d'enfouissement. Si aucune **toxicité**, **à court** comme **à long** terme n'a été **détectée** dans les eaux des deux étangs construits en amont et en aval du site, les eaux de ruissellement, transitant **à travers** le site, se sont **révélées** potentiellement toxiques, **à long** terme, vis **à vis** de la flore et de la faune du milieu aquatique. Ces eaux présentaient un **caractère** génotoxique. Des hydrocarbures en quantités relativement importantes ont **été** détectés et pourraient en partie expliquer la **(géo)toxicité** de ces eaux.

La construction d'un bassin de **rétenion** de ces eaux est envisagée afin d'éviter leur **rejet** dans l'environnement. Ces eaux seront **utilisées**, avec les percolats du site, pour le conditionnement des cendres d'incinération.

Cette étude permet de mieux **préciser l'intérêt** respectif du **contrôle** analytique et du contrôle toxicologique pour juger de la **qualité** des milieux hydriques.

Une charge en polluants importante, **dépassant** notamment les normes réglementaires concernant les rejets environnementaux, sera synonyme de **toxicité** aiguë et chronique. Le **contrôle** toxicologique, dans le cas **d'échantillons** très **contaminés**, peut être **considéré** comme superflu.

Par contre, lorsque les niveaux de contamination **détectés** apparaissent peu **élevés**, le **contrôle** toxicologique est impératif pour juger de l'impact toxique potentiel de **l'échantillon** à court et à long terme ; les essais de **toxicité à long terme** s'imposeront d'autant plus que la teneur des **contaminants** est faible. Il est **également** important de souligner à nouveau l'incapacité des essais de toxicité aiguë à prédire des effets de toxicité à long terme : résumer un contrôle toxicologique à la réalisation d'essais de **toxicité** aiguë est susceptible de conduire à une erreur de jugement pouvant compromettre la qualité de l'environnement.

Dans tous les cas, il est **très** difficile de prédire **l'intensité** et la nature des effets toxiques des différents échantillons testés à partir des bilans analytiques. Cette absence de corrélation entre les analyses physico-chimiques et les résultats des analyses toxicologiques peut s'expliquer par le fait que l'analyse physico-chimique, telle qu'elle est **réalisée**, n'est ni exhaustive, ni fine, ni spécifique. D'autre part, elle ne révèle pas les multiples interactions entre les **différents** polluants modifiant la toxicité **intrinsèque** de chacun des éléments pris séparément.

La difficulté d'évaluer un risque toxique à partir d'une simple analyse **physico-chimique** remet en cause la proposition **européenne** pour la mise en décharge des **déchets** (1991) qui base le choix du site d'enfouissement pour déchets dangereux et non-dangereux sur une analyse chimique de la fraction lixiviable.

Les résultats de cette **étude** remettent également en cause le choix des seuils fixant les concentrations maximales autorisées pour le rejet des lixiviats dans l'environnement. En effet, il apparaît qu'à ces niveaux de concentrations, une **(géo)toxicité** non négligeable pouvait être mise en évidence.

La **protection** de l'environnement suite à l'enfouissement des déchets passe par l'amélioration des technologies au niveau :

des centres d'enfouissement avec notamment l'utilisation des complexes **géosynthétiques** d'étanchéité-drainage,

- du traitement des **déchets** afin de réduire leur charge polluante extractible,
- du contrôle de la qualité des déchets stockés comme de la qualité des eaux de surface et souterraines aux alentours du site de stockage.

L'association de ~~critères~~ critères biologiques aux critères analytiques sera à même :

- (1) d'apporter une meilleure connaissance du potentiel toxique réel représenté par chacun des déchets et d'adapter leur gestion,
- (2) de choisir pour un déchet donné entre plusieurs ~~procédés~~ procédés de traitement, celui qui permet pour un moindre ~~coût~~, de réduire au maximum la ~~toxicité~~ toxicité de la fraction lixiviable,
- (3) de s'assurer de l'absence de toute pollution hydrique susceptible de compromettre l'équilibre des écosystèmes aux alentours du site.

Ces essais de toxicité constitueront la seule garantie Cvidente de l'efficacité des systèmes de prévention de la pollution mis en oeuvre. Ils pourront contribuer à rassurer l'opinion publique et ~~améliorer~~ améliorer le climat de méfiance quelquefois passionnel qui entoure la question des ~~déchets~~.

La stratégie ~~d'évaluation~~ du risque toxique proposée dans cette étude est applicable à diverses situations, qu'elles concernent la gestion des déchets, le contrôle de la pollution liée à des friches industrielles et à des sols contaminés ou la gestion des rejets environnementaux en général.