

**REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE**  
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique

**UNIVERSITE MENTOURI CONSTANTINE**  
Faculté des Sciences de l'Ingénieur  
Département de Génie Civil

N° Ordre : 106 / T.E / 2007  
N° Série : 03 / G.C / 2007

***THESE***

Présentée pour l'Obtention du diplôme de Doctorat d'Etat en Génie Civil  
Option : Géotechnique Environnementale

**ETUDE EXPERIMENTALE DES MELANGES SABLE BENTONITE**

- *Leurs Performances comme Barrières de Confinement dans les CET-*

Par  
**KOULOUGHLI SALIM**

Devant le jury

|  |                         |
|--|-------------------------|
| Président : <b>Pr. HOUARI H.</b>             | U. Mentouri Constantine |
| Rapporteur: <b>Pr. BENCHEIKH-LEHOCINE M.</b> | U. Mentouri Constantine |
| Examineurs : <b>Pr. HAMAMI M.</b>            | Université de Skikda    |
| <b>Dr. MOKRANI L. (M.C)</b>                  | Université de Sétif     |
| <b>Dr. HAMMOUD F. (M.C)</b>                  | Université de Batna     |

Soutenue le ...08. /...12.../ 2007

# TABLE DES MATIERES

|  |     |
|--|-----|
| REMERCIEMENTS.....   | i   |
| RESUMES.....   | vi  |
| PRESENTATION DE LA THESE.....  | xii |
| <b>CHAPITRE 1 : REVUE BIBLIOGRAPHIQUE SUR LES BARRIERES DE CONFINEMENT ET LES MATERIAUX ARGILEUX</b> |     |
| 1.1 Introduction .....   | 2   |
| 1.2 Barrières en mélange sable bentonite .....   | 3   |
| 1.3 Les matériaux argileux .....   | 8   |
| 1.4 Organisation structurelle .....  | 9   |
| 1.5 Classification des argiles .....   | 10  |
| 1.6 Les smectites .....  | 12  |
| 1.7 Microstructure de la bentonite .....   | 15  |
| 1.7.1 Le feuillet .....  | 16  |
| 1.7.2 La particule primaire .....  | 16  |
| 1.7.3 L'agrégat .....  | 18  |
| 1.8 Le système bentonite eau .....   | 20  |
| 1.8.1 Dispersion des feuillets .....   | 21  |
| 1.8.2 Rôle des cations compensateurs .....   | 24  |
| 1.9 Interactions dans une suspension aqueuse de bentonite .....                                      | 24  |
| 1.9.1 Double couche électrique .....   | 25  |
| 1.9.2 L'adsorption .....   | 29  |
| 1.9.2.1 Types d'adsorption .....   | 29  |
| 1.9.2.2 Les modèles d'adsorption .....   | 30  |
| 1.9.3 La théorie DLVO .....  | 33  |
| 1.9.4 Types d'associations des particules .....  | 37  |
| <b>CHAPITRE 2 : TECHIQUES MODERNES DE CONFINEMENT DES DECHETS SOLIDES</b>                            |     |
| 2.1 Introduction .....   | 44  |
| 2.2 Principes des centres de stockage de déchets ou CET .....  | 45  |
| 2.3 Cadre réglementaire .....  | 46  |
| 2.4 Etanchéité naturelle .....   | 48  |
| 2.5 Etanchéité artificielle .....  | 49  |
| 2.6 Etanchéité combinée .....  | 50  |

|  |    |
|--|----|
| 2.7 Les nouveaux sites d'enfouissement : les bioréacteurs .....          | 53 |
| 2.7.1 Les bioréacteurs aérobies .....                                    | 54 |
| 2.7.2 Les bioréacteurs anaérobies .....                                  | 55 |
| 2.8 Les matériaux composants de l'étanchéité du fond et des parois ..... | 57 |
| 2.8.1 Argile compactée .....   | 57 |
| 2.8.2 Matériaux géocomposites .....                                      | 58 |
| 2.8.3 Comparaison des GSB avec les couches d'argiles compactées .....    | 59 |
| 2.9 Lixiviats et Biogaz .....  | 61 |
| 2.9.1 Les lixiviats .....  | 61 |
| a - rappels généraux .....   | 61 |
| b - description d'un lixiviat .....                                      | 61 |
| c - conductivité .....   | 62 |
| d – carbone organique total .....  | 63 |
| e – composition .....  | 63 |
| f – risques environnementaux et sanitaires liés aux lixiviats .....      | 68 |
| 2.9.2 Biogaz .....   | 68 |

### **CHAPITRE 3 : CONTEXTE GEOLOGIQUE DU GISEMENT DE BENTONITE DE MAGHNIA**

|   |    |
|---|----|
| 3.1 Introduction .....                          | 71 |
| 3.2 Contexte géologique .....                   | 71 |
| 3.3 Géologie de la région .....                 | 73 |
| 3.4 Géologie du gisement de bentonite .....     | 73 |
| 3.5 Occurrence de la bentonite en Algérie ..... | 76 |

### **CHAPITRE 4 : CARACTERISATION PHYSICO-CHIMIQUE ET CARACTERISATION MECANIQUE DES MELANGES SABLE BENTONITE**

|   |    |
|---|----|
| 4.1 Introduction .....  | 78 |
| 4.2 Caractérisation des matériaux utilisés .....                        | 79 |
| 4.2.1 Sable jaune .....   | 79 |
| 4.2.2 Bentonite de Maghnia .....  | 79 |
| 4.3 Caractérisation physico-chimique des mélanges sable bentonite ..... | 80 |
| 4.3.1 Caractéristiques physico-chimiques .....                          | 80 |
| 4.3.2 Evaluation des caractéristiques des mélanges .....                | 80 |
| 4.4 Perméabilité des mélanges sable bentonite .....                     | 83 |
| 4.5 Compactibilité des mélanges sable bentonite .....                   | 86 |
| 4.5.1 Introduction .....  | 86 |
| 4.5.2 Compactage dynamique .....  | 86 |

|  |     |
|--|-----|
| 4.6 Résultats obtenus .....  | 88  |
| 4.7 Analyse et interprétation des résultats de compactage .....        | 93  |
| 4.7.1 Influence de la fraction argileuse .....                         | 94  |
| 4.7.2 Optimisation de la compacité d'un mélange sable bentonite .....  | 96  |
| 4.7.3 Conclusions .....  | 99  |
| 4.8 Caractérisation mécanique par cisaillement direct à la boîte ..... | 101 |
| 4.8.1 Préparation du matériau .....                                    | 101 |
| 4.8.2 Description et mode opératoire .....                             | 101 |
| 4.9 Résultats obtenus .....  | 102 |
| 4.10 Discussion et interprétation .....                                | 106 |
| 4.11 Conclusions .....   | 107 |

## CHAPITRE 5 : MATERIELS ET METHODES

|   |     |
|---|-----|
| 5.1 Introduction .....  | 109 |
| 5.2 Le matériel .....   | 111 |
| 5.2.1 La bentonite et le sable .....  | 111 |
| 5.2.2 Les métaux lourds .....   | 111 |
| 5.2.3 Le lixiviat .....   | 114 |
| 5.3 La caractérisation .....  | 115 |
| 5.3.1 La composition minéralogique .....  | 115 |
| 5.3.2 La surface spécifique .....   | 116 |
| 5.3.3 Absorption d'eau sur plaque (P.W.A) .....   | 116 |
| 5.3.4 pH .....  | 116 |
| 5.3.5 les limites d'Atterberg .....   | 117 |
| 5.4 Les méthodes expérimentales .....   | 117 |
| 5.4.1 Gonflement libre de la bentonite en fonction du milieu aqueux .....   | 117 |
| 5.4.2 Essais de diffraction aux rayons X sur des échantillons de bentonite contaminés .....                       | 117 |
| 5.4.3 Essais de lixiviation en colonnes sur les couches sable bentonite .....                                     | 119 |
| 5.4.4 Essais de conductivité hydraulique sur perméamètre à charge variable sur les mélanges sable bentonite ..... | 121 |
| 5.4.5 Essais de caractérisation mécanique à la boîte sur les mélanges sable bentonite .....                       | 121 |
| 5.4.6 Essais chimiques sur la rétention du cuivre par la bentonite .....  | 121 |
| 5.4.6.1 Les supports .....  | 122 |
| 5.4.6.2 Les solutions métalliques .....   | 122 |

## CHAPITRE 6 : RESULTATS ET DISCUSSIONS

|  |            |
|--|------------|
| 6.1 La caractérisation des matériaux .....   | 124        |
| a- la composition minéralogique .....  | 124        |
| b- la granulométrie .....  | 125        |
| c- La surface spécifique .....   | 127        |
| 6.2 Interprétation des spectres de diffraction aux rayons X sur la bentonite .....   | 127        |
| 6.3 Analyse de l'action des lixiviats et des métaux lourds sur la composition chimique de la bentonite .....                   | 130        |
| 6.4 Effet des métaux lourds sur le pH de la bentonite .....  | 131        |
| 6.5 Effets des lixiviats sur le pH de la bentonite .....   | 132        |
| 6.6 Action des métaux lourds sur les limites d'Atterberg de la bentonite .....   | 132        |
| 6.7 Effet des lixiviats sur les limites d'Atterberg de la bentonite .....  | 134        |
| 6.8 Effet des métaux lourds sur l'absorption d'eau sur plaque (P.W.A) .....  | 134        |
| 6.9 Effet des lixiviats sur l'absorption d'eau sur plaque (P.W.A) .....  | 135        |
| 6.10 Effet des métaux lourds sur le gonflement de la bentonite .....   | 136        |
| 6.11 Effet des lixiviats sur le gonflement de la bentonite .....   | 138        |
| 6.12 Les essais de lixiviation en colonnes .....   | 139        |
| 6.13 Courbes de percée des métaux lourds à l'intérieur des mélanges sable bentonite .....                                      | 143        |
| 6.14 Résultats des essais de conductivité hydraulique sur perméamètre à charge variable sur les mélanges sable bentonite ..... | 147        |
| a- effets des métaux lourds .....  | 147        |
| b - effets des lixiviats .....   | 149        |
| 6.15 Résultats des essais de caractérisation mécanique à la boîte de cisaillement .....  | 150        |
| a- Résultats pour les spécimens contaminés par métaux lourds .....   | 150        |
| b- Résultats pour les spécimens contaminés par lixiviats .....   | 152        |
| 6.16 Interprétations des résultats des essais chimiques .....  | 153        |
| 6.16.1 Interprétations des résultats des essais sur les lixiviats .....  | 155        |
| 6.16.2 Interprétations des résultats des essais de rétention du cuivre par la bentonite .....                                  | 156        |
| a- Effet du temps de contact .....   | 156        |
| b- Effet du rapport solide /liquide .....  | 157        |
| c- Effet de la température .....   | 158        |
| d- Effet du pH .....   | 159        |
| e- Les isothermes d'adsorption .....   | 159        |
| <b>CHAPITRE 7 : CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES .....</b>  | <b>162</b> |
| <b>ANNEXE A : PROCEDURES EXPERIMENTALES .....</b>  | <b>169</b> |
| <b>ANNEXE B : LEXIQUE.....</b>   | <b>175</b> |
| <b>REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES .....</b>   | <b>180</b> |

## Glossaire et Abréviation

**CET** : Centre d'enfouissement Technique.

**MATE** : Ministère de l'Aménagement du Territoire et de l'Environnement.

**V<sub>B</sub>** : Valeur au bleu.

**β** : Ratio de gonflement [%].

**K** : Coefficient de perméabilité, conductivité hydraulique [cm/s].

**e<sub>-</sub>** : Macro vide ratio.

**OCR** : Overconsolidation ratio.

**σ** : Contrainte normale [kPa /cm<sup>2</sup>].

**τ** : Contrainte de cisaillement [kPa /cm<sup>2</sup>].

**φ** : Angle de frottement interne [°].

**c** : Cohésion [kPa].

**GSB** : géosynthétique bentonitique.

**G<sub>s</sub>** : Gravité spécifique .

**PEHD** : polyéthylène haute densité.

**DCO** : Demande Chimique en Oxygène.

**DBO** : Demande Biologique en Oxygène.

**S-B** : Sable –Bentonite.

**ρ** : Densité [g/cm<sup>3</sup>].

**α** : Pourcentage d'ajout de bentonite.

**W** : teneur en eau.

**q** : Absorbant



## 1. Préambule

L'intérêt porté à l'environnement s'est considérablement développé, et la protection de l'environnement est à présent inscrite dans l'action continue des administrations et des industriels. La prise de conscience de la gravité des problèmes posés par les déchets solides sur l'environnement en général et sur les ressources en eau en particulier est une réalité. En effet l'essor industriel et l'accroissement de la production ainsi que la densité de la population dans les villes font qu'aujourd'hui le volume des déchets urbains a beaucoup augmenté et on constate une prolifération des décharges publiques sauvages. Ces dernières constituent une réelle et permanente menace à la qualité de la vie.

Dans le langage courant, les ordures ménagères n'évoquent que les déchets de la vie domestiques. Les nécessités de la vie urbaine ont conduit à élargir cette notion et à admettre sous ce vocable, les résidus trouvés sur la voie publique et les déchets provenant des bureaux, du commerce et des petites industries. Les groupes industriels importants, au contraire, sont censés éliminer leurs déchets à leurs frais. On notera à ce niveau que les ordures ménagères sont des produits de natures extrêmement diverses. La connaissance de la composition et de la qualité d'ordures ménagères, produites par une agglomération, a une importance sans cesse croissante, notamment pour la détermination de l'impact des décharges publiques sur l'environnement et sur la qualité des ressources en eau de la région.

Par ailleurs, la quantité d'ordures ménagères produites par les collectivités est variable et fonction de plusieurs éléments. Elle dépend essentiellement, du niveau de vie, du mode de vie de la population, de la saison, du mouvement des populations selon les périodes de vacances (fêtes, les fins de semaines) et des nouvelles méthodes de conditionnement et d'emballage des marchandises. En Algérie, la quantité d'ordures ménagères produite, en milieu urbain, par habitant a été estimée en 2006 d'après le ministère de l'environnement à 1.2 kg/hab./jour soit une production annuelle de déchets ménagers urbains de 13 Millions de tonnes.

Pour ce qui est de la nocivité des déchets urbains et compte tenu de leur composition, ils ne constituent pas par eux-mêmes un moyen de propagation des maladies contagieuses. Cependant, les ordures ménagères contiennent inévitablement, en petites quantités, des linges souillés, des déjections canines ou félines et des poussières contaminées. Par conséquent, la présence de germes pathogènes n'est pas exclue et une certaine prudence s'impose. Il n'en reste pas moins que les ordures ménagères sont susceptibles d'apporter certaines nuisances. Leur nocivité porte sur les points suivants, l'aspect inesthétique; l'envol des poussières et des éléments légers; les émissions d'odeurs; les incendies; la pollution des eaux; la prolifération des rongeurs et des insectes, qui eux sont des agents propagateurs de maladies contagieuses.

Actuellement, la société Algérienne est à l'étude d'un projet de règlement régissant la mise en décharge de ses déchets. Ceci représente un exemple des actions posées par une société pour un développement durable dans l'ordre d'idées où le développement constitue l'amélioration



des conditions de vie, la protection des individus et la protection de l'environnement nécessaire pour le développement.

Afin de répondre aux critères fondamentaux mentionnés plus haut, l'aménagement de la décharge doit maintenant être envisagé à l'instar des grands travaux d'infrastructure tels les barrages par exemple. Cette réalité justifie l'appellation de "centre d'enfouissement technique". Le principe des centres d'enfouissement technique (C.E.T) est le confinement des matières polluantes et donc la préservation de l'environnement. Ce sont des couches physiques entre les déchets et l'environnement extérieur. L'efficacité de ces couches étanches dépend de leur comportement mécanique, de leur comportement hydraulique et de leurs propriétés d'atténuation et de rétention de la contamination (Lo et Liljestrang, 1996, Bouchard et coll., 1995 ; Pohl et coll., 1995). Étant donné les objectifs fixés à ces couches (confinement, enfouissement), leur efficacité doit perdurer sur plusieurs dizaines d'années. Elles doivent résister, structurellement et dans le temps, aux attaques physiques et chimiques et offrir de bonnes propriétés mécaniques et physico-chimiques. La pérennité des couches étanches définit cette propriété de maintenir leurs fonctions au fil du temps (Bouchard et coll., 1995).

Il existe plusieurs types de couches étanches. Les couches d'argile, les couches sable bentonite, les membranes bentonite/géosynthétique, les géomembranes, etc., sont quelques exemples des principales techniques utilisées à travers le monde. Le choix entre une ou l'autre d'entre-elles sera guidé par des considérations économiques et pratiques comme la disponibilité de matériaux, la facilité de mise en oeuvre, le savoir-faire local, etc. Les propriétés qui assurent le comportement à long terme des couches étanches sont différentes d'un type de couches à l'autre. Par ce fait même, les raisons qui provoquent la dégradation de ces couches sont différentes. Chaque couche doit être soumise à des essais afin d'évaluer la capacité de celle-ci de résister à la dégradation. Ces essais doivent permettre d'assurer l'efficacité des couches pour la période de sollicitation. Cette période s'étend généralement sur plusieurs années. Elle est, par exemple, égale à 30 ans suite à la fermeture d'un centre d'enfouissement technique.

Pour le cas spécifique des couches sable bentonite, la revue bibliographique, nous a permis de constater que les contaminants organiques et inorganiques constituent une menace face à l'intégrité de ces couches. Ces contaminants se retrouvent à l'intérieur du lixiviat de décharge. Plusieurs études ont révélé l'impact des contaminants sur la conductivité hydraulique de couches semblables. Ces études ont été réalisées en majeure partie avec des contaminants organiques, L'on retrouve peu d'information dans la littérature sur l'impact des contaminants

inorganiques, en particulier les métaux lourds. Pourtant, selon certains chercheurs, ces derniers provoquent une augmentation plus importante de la conductivité hydraulique des couches sable bentonite comparée à l'augmentation produite par les contaminants organiques, ce qui constitue une dégradation plus rapide de l'efficacité de ces couches en présence de métaux lourds. Notons que les métaux lourds sont considérés comme étant des contaminants persistants, c'est-à-dire, qu'ils ne se dégraderont qu'extrêmement lentement à l'intérieur de l'environnement. Ils représentent une menace qui persistera sur un très grand nombre d'années.

L'élément actif à l'intérieur des couches sable/bentonite est la bentonite. Les propriétés de gonflement de celle-ci sont sujettes à des changements au contact des contaminants. Les contaminants, tels les métaux lourds, diminueront la capacité de la bentonite de gonfler. Ce qui aura comme conséquence, au niveau de la couche sable bentonite, d'augmenter sa conductivité hydraulique. Ces liens entre le gonflement de la bentonite et la conductivité hydraulique des couches sont purement qualitatifs et la littérature offre très peu d'information et d'exemples sur ce sujet. Cette problématique que posent les métaux lourds face aux propriétés des couches sable bentonite sera expliquée plus en détails.

Étant donné le nombre de variables influençant le comportement de la couche sable bentonite (type, concentration, valence du contaminant présent; minéralogie, capacité d'échanges cationiques, surface spécifique de la bentonite, etc.), il sera nécessaire de recueillir les résultats de plusieurs observations afin de mieux comprendre l'impact de la contamination sur ce type de couche, afin de mieux prévoir l'efficacité et la pérennité de ces couches.

## **2. Objectifs de la recherche**

Plusieurs méthodes sont possibles pour le management des déchets solides municipaux telles que le confinement, l'incinération et le recyclage. En Algérie, la stratégie en matière de gestion des déchets solides retenue par les Autorités Publiques (conformément aux dispositions de la loi 01-19) privilégie le confinement avec une politique active de recyclage dans certains domaines (papiers, cartons, etc.). L'objectif de cette thèse est d'étudier les possibilités d'utilisation des mélanges sable bentonite comme matériaux alternatifs dans la réalisation des barrières de confinement lors de la construction de CET.

Le travail accompli dans cette thèse, a abordé les sujets suivants :

1. Identification de la bentonite utilisée : une approche rationnelle pour l'identification a été suivie.
2. Influence du pourcentage de bentonite sur le compactage des mélanges sable bentonite.
3. Influence du pourcentage de bentonite sur la conductivité hydraulique des mélanges sable bentonite.
4. Influence du pourcentage de bentonite sur la résistance mécanique des mélanges sable bentonite.
5. Effets des lixiviats sur le gonflement de la bentonite.
6. Effets des métaux lourds sur le gonflement de la bentonite.
7. Estimation de la conductivité hydraulique des mélanges sable bentonite en présence de lixiviats.
8. Estimation de la conductivité hydraulique des mélanges sable bentonite en présence de métaux lourds.
9. Estimation de la résistance mécanique des mélanges sable bentonite en présence de lixiviats
10. Estimation de la résistance mécanique des mélanges sable bentonite en présence de métaux lourds.
11. Evaluation des capacités de rétention chimique de la bentonite de Maghnia

## **3. Méthodologie**

Un programme expérimental est mené pour évaluer les propriétés physico-chimiques, les caractéristiques mécaniques et de compactage, les propriétés hydrauliques et le comportement chimique des mélanges sable bentonite. La bentonite est ramenée de Maghnia et mélangée à

du sable dans des proportions variables dans le but d'obtenir un mélange optimal de design. Le mélange optimal de design est déterminé en tenant compte de la conductivité hydraulique et de la résistance mécanique en même temps.

Le programme expérimental vise à déterminer les propriétés mécaniques, hydrauliques et chimiques les plus significatives des mélanges sable bentonite. Des principes expérimentaux de design sont suivis dans le but de réduire le nombre d'expériences sans compromettre la qualité ni la quantité des données à réunir.

L'hypothèse de recherche émise pour cette étude est définie par les deux énoncés suivants :

- la variation de la conductivité hydraulique de la couche sable bentonite en présence de contaminants.
- la variation des caractéristiques mécaniques de la couche sable bentonite en présence de contaminants.

#### **4. Canevas de la thèse**

Le chapitre 1 présente une revue bibliographique sur les barrières de confinement des déchets solides. Une présentation exhaustive des matériaux argileux qui rentrent dans la composition des barrières naturelles est également introduite avec une référence spéciale aux argiles gonflantes de la famille des smectites : les bentonites.

Le chapitre 2 est consacré à une présentation des techniques modernes de confinement des déchets solides (barrière physique, lixiviats, biogaz). Les techniques de réalisation du confinement (centres d'enfouissements techniques), selon certaines législations à travers le monde, sont également discutées. Une étude comparative entre quelques unes de ces techniques est présentée.

Le chapitre 3 est une présentation de la géologie régionale de la région de Maghnia et de la géologie du gisement de bentonite de Hammam Boughrara. La genèse de formation des gisements de bentonite dans le Nord-Ouest Algérien a été exposée.

Le chapitre 4 présente une caractérisation physico-chimique ainsi qu'une caractérisation mécanique de mélanges sable bentonite étudiées dans cette thèse. L'influence du pourcentage de bentonite sur ces caractéristiques a été étudiée. La relation ente les caractéristiques

individuelles des composants (sable, bentonite) et les caractéristiques du mélange ont été discutés.

Le chapitre 5 explique l'approche suivie pour la sélection des matériaux appropriés pour cette autre partie expérimentale de l'étude. Il explique aussi les divers essais d'identification, les essais chimiques et mécaniques pour caractériser les matériaux (sable, bentonite). Ce chapitre présente aussi les divers matériaux polluants (métaux lourds, lixiviats) utilisés afin d'évaluer le comportement des mélanges sable bentonite en leurs présence. Des informations sont également données sur le matériel et les montages expérimentaux utilisés dans cette thèse.

Le chapitre 6 contient les résultats et les commentaires sur les essais d'identification réalisés sur les matériaux (sable, bentonite) et les contaminants utilisés (lixiviats). On y trouve aussi les résultats et les commentaires sur les essais menés sur les mélanges sable bentonite mis en contact avec divers polluants de nature chimique (les métaux lourds) et de nature organique (les lixiviats).

Le chapitre 7 représente une synthèse du travail réalisé. Il est présenté ici les résultats obtenus pour la bentonite de Maghnia, ainsi que les résultats obtenus pour ses mélanges avec le sable jaune. Ce chapitre donne également les conclusions, les recommandations et les perspectives pour l'utilisation de la bentonite et ses mélanges dans la réalisation des ouvrages de confinement de déchets solides.

L'Annexe A est consacrée aux Techniques d'Essais.

L'Annexe B est un lexique des termes de la géotechnique environnementale.

## Références bibliographiques

Abend, S. and G. Lagaly, "Sol-gel transitions of sodium montmorillonite dispersions" *Appl. Clay Sci.* 16, 201-227 (2000).

Alberta Environment, .Design and Construction of liners for Municipal Wastewater Stabilisation Ponds, Document préparé par Komex Consultant Inc. (1985).

Alston, C., Daniel, D. E. et Devroy, D. J., .Design and construction of sand-bentonite liner for effluent treatment lagoon, Marathon, Ontario , *Can. Geotech. J.*, No. 34, pp. 841-852. (1997).

Al-Shayea, N.A. The combined effect of clay and moisture content on the behaviour of remoulded unsaturated soils. *Bull. Asso. Engng Geol.* Vol. 62, pp. 319-342. (2001).

Anderson, Brown, K. W. & Green, J. 1982. effects of organic fluids on the permeability of clay soil liners. US EPA, Rep. no. 600/9-82-002, Cincinnati, Ohio.

Alther, G.R.. The role of bentonite in soil sealing applications. *Engineering Geology*, 19 (4), 401-9. (1982).

Auboiroux, M., "Affinité de différents cations métalliques ( $\text{Co}^{2+}$ ,  $\text{Ni}^{2+}$ ,  $\text{Cu}^{1+}$ ,  $\text{Zn}^{2+}$ ,  $\text{Cd}^{2+}$ ,  $\text{Pb}^{2+}$ ) pour une montmorillonite calcique. Expérimentation et applications." Thèse de l'Université de d'Orléans (1998).

Aylmore, L. and J. P. Quirk, "Domains and quasicrystalline regions in clay systems" *Soil. Sc. Soc. Amer. Proc.* 35, 652-654 (1971).

Arqui, G. Théorie générale de l'influence de la teneur en eau sur les résultants du compactage. *Bull. Liaison. Labo. P. et Ch.* N°64, pp. 147-158. (1973)

Arroyo, R. Perea and J. D. G. Durán, "Scaling behavior of the rheological properties of montmorillonite suspensions: Correlation between interparticle interaction and degree of flocculation" *J. Colloid Interface Sci.* 235, 251-259 (2001).

Barone, F. S., Yanfiil, E. K., Quigley, R. M. et Rowe, R. K., 1989, Effect of multiple contaminant migration on diffusion and adsorption of some domestic waste contaminants in a natural clayey soil , *Can. Geotech. J.*, No. 26, pp. 189- 198.

Bekkour, K., M. Leyama, A. Benchabane and O. Scrivener, "Time-dependent rheological behavior of bentonite suspensions: An experimental study" *J. Rheol.* 49, 1329-1345 (2005).

Ben Brahim, J., "Contribution à l'étude des systèmes eau-argile par diffraction des rayons X. Structure des couches insérées et mode d'empilement des feuillet dans les hydrates homogènes à deux couches d'eau de la beidellite Na," Thèse de doctorat de l'Université d'Orléans (1985).

Ben Rhaiem, H., D. Tessier and C. H. Pons, "Comportement hydrique et evolution structurale et texturale des montmorillonites au cours d'un cycle de dessiccation-humectation; I, Cas des

montmorillonites calciques" *Clay Minerals* 21, 9-29 (1986).

Benchabane, A. and K. Bekkour, "Effects of anionic additives on the rheological behavior of aqueous calcium montmorillonite suspensions" *Rheol. Acta* 45, 425-434 (2006).

Benna, M., N. Kbir-Ariguib, A. Magnin and F. Bergaya, "Effect of pH on rheological properties of purified sodium bentonite suspensions" *J. Colloid Interface Sci.* 218, 442-455 (1999).

Bereket, G., A. Z. Arog and M. Z. Ozel, "Removal of Pb(II), Cd(II), Cu(II), and Zn(II) from Aqueous Solutions by Adsorption on Bentonite" *J. Colloid Interface Sci.* 187, 338-343 (1997).

Bérend, I., "Mécanismes d'hydratation des montmorillonites homoioniques pour des pressions relatives inférieures à 0.95," Thèse d'Université (Institut National Polytechnique de Lorraine) (1991).

Besq, A., "Ecoulements laminaires de suspensions de bentonite industrielles. Caractérisation rhéométrique - Ecoulements en conduites axisymétriques. Applications aux activités du Génie Civil," Thèse de doctorat de l'Université de Poitiers (2000).

Bolt, G. H., *Physico-Chemical Analysis of the Compressibility of Pure Clays*, Géotechnique, Vol. 6, No. 2, pp. 86-93. (1956).

Bonifas, J. L., "Contribution à l'étude de la viscosité de suspensions de bentonite," Thèse de doctorat de l'ULP (1998).

Bouchard R., Leroueil S. et Marchand G., 1995, *Aspects géotechniques des étangs pour l'épuration des eaux usées municipales*, Ministère de l'Environnement du Québec et Société Québécoise d'Assainissement des Eaux.

Bowders, J. J., Daniel, D. E., Broderick, G. P. & Lilgestrand, H. m. 1986. *Methods for testing the compatibility of clay liners with landfill leachate*. ASTM, Spec. Tech. Publ. 886, Philadelphia, PA.

Bradley, W. F., R. E. Grim and G. F. Clark, "A study of the behavior of montmorillonite on wetting" *Zeitschrift für Kristallographie* 97, 260-270 (1937).

Brandenburg, U. and G. Lagaly, "Rheological properties of sodium montmorillonite dispersions" *Appl. Clay Sci.* 3, 263-279 (1988).

Brindley, G. W., "Discussion and recommendations concerning the nomenclature of clay minerals and related phyllosilicates." *Clays and Clay Minerals* 14, 27-34. (1966).

Broderick, G. P. & Daniel, D. E. 1990. *Stabilizing compacted clay against chemical attack*. ASGE, *Geotech. Engng*, 117(10), 1549-67.

Brown, K. W. & Anderson, D. C.. *Effects of organic solvents on the permeability of clay soils*. US EPA, Rep. no. 600/2-83-016, Cincinnati, Ohio. (1983).

- Caillère, S., S. Hénin and M. Rautureau, "Minéralogie des argiles" Masson, Tomes 1 et 2, 184p et 189p (1982).
- Callaghan, I. C. and R. H. Ottewill, "Interparticle forces in montmorillonite gels" Faraday Discussions of the Chemical Society 57, 110 -118 (1974).
- Cancelli, A.. Caractérisation géotechnique d'un mélange imperméabilisant sol/bentonite. Coll. Etanchéité superficielle, I, 250/1-6, CEMAGREF, Paris.( 1983).
- Cancelli, A. & Francani, V. Quarry reclamation in the Lombardy Plain. Bull. Int. Engng Geology, 29,237-40.( 1984).
- Cancelli, A., Cossu, R. & Malpei, F.. Laboratory investigation on bentonite as sealing agent for waste disposal. In Proc. First Intern. Symp. on Sanitary Landfill, Process Cagliari.
- Carroll, D. & Starkey, H. C. 1971. Reactivity of clay minerals with acids and alkalies. Clays and Clay Minerals, 19,321-33.( 1987).
- Carte géologique de l'Algérie au 1/ 500.000. 2eme édition, 1952.
- Carman, P.C., , Flow of Gases Through Porous Media, Academic Press, New York.(1956)
- Carter, D. L., Heilman, M. D. et Gonzalez, C. L., , « Ethylene Glycol Monoethyl Ether for Determining Surface Area of Silicate Minerals », Soil Science, Vol. 100, NOS, pp.356-360.( 1965).
- Casagrande, A.,; Classification and identification of soils, ASCE, vol.113, pp901-930.( 1948).
- Chapman, D. L., "A contribution to the theory of electrocapillarity" Philos. Mag. 6, 475-481 (1913).
- Corvisier, P., "Ecoulement de fluides thixotropes dans des conduites droites ou présentant des singularités," Thèse de doctorat de l'Université Henri Poincaré (2001).
- Chapuis, R. P., Sand-Bentonite Liners: Predicting Permeability from Laboratory Tests, Canadian Geotechnical Journal, Vol. 27, pp. 47-57.( 1990).
- Chapuis, R.P., Lavoie, J. and Girard, D.,. Design, construction and repair of the soil-bentonite liners of two lagoons. Can. Geotech. J. 29:638 649.( 1992).
- Collis-George, N. et Bozeman, J. M., , A Double Layer Theory for Mixed Ion Systems as Applied to the Moisture Content of Clays Under Restraint , Australian Journal of Soil Research, Vol. 8, No. 3, pp. 239-258.( 1970).
- Charlet G., Chimie analytique Générale; Masson and Cie, Edition.1967.
- Daniel, D. E. & Liljestrang, H. M.. Effects of landfill leachates on natural liner systems. Report to Chemical Manufacturers Association, university of Texas, Dept. of Civil Eng., Austin, Texas.( 1984).



Daniel, D.E. and Benson, C.H., Water content-density criteria for compacted soil liners. *J. Geotech. Eng. ASCE*, /116)12:1811-1830. (1990).

D'Appolonia, D. J., Soil-Bentonite Slurry Trench Cutoffs, *ASCE Journal of the Geotechnical Engineering Division*, Vol. 106, pp. 399-417. (1980).

Darley, H. C. H. and G. R. Gray, "Composition and Properties of Drilling and Completion Fluids" 5<sup>th</sup> edn., Gulf Publ. Co., TX, USA, 643pp (1988).

Day, S.R. and Daniel, D.E., Hydraulic conductivity of two prototype clay liners. *J. Geotech. Eng. ASCE*, (111)8:957-970. (1985).

De Kretser, R. G., P. J. Scales and D. V. Boger, "Surface chemistry-rheology inter-relationships in clay suspensions" *Colloids Surf. A* 137, 307-318 (1998).

Delage, P. et Cui, Y.I., L'eau dans les sols saturés. *Techniques de l'ingénieur*, coll. Construction, article C301. (2000).

Delage, P., Audignier, M., Cui Y.I. et Howart, M. Microstructure of a compacted silty clay. *Canadian Geotechnical Journal* Vol.33, pp.150-158.

Delage, P., et Fry, J.I. Comportement des sols compactés : apport de la mécanique des sols non saturés. *Revue Française de géotechnique* N° 92, pp.17-29. (2000).

Derjaguin, B. V. and L. Landau, "Theory of the stability of strongly charged lyophobic sols and the adhesion of strongly charged particles in solutions of electrolytes" *Acta Physico-chimica (URSS)* 14, 633-662 (1941).

Didier, G., "Gonflement cristallin des montmorillonites. Sa prévision," Thèse de l'Université Claude Bernard, Lyon (1972).

Dubé, J.-S., Application d'un Protocole Analytique à l'Évaluation de la Distribution Géochimique des Métaux Lourds dans les Sols Contaminés, Thèse de maîtrise, Université Laval. (1997).

Durán, J. D. G., M. M. Ramos-Tejada, F. J. Arroyo and F. Gonzalez-Caballero, "Rheological and electrokinetic properties of sodium montmorillonite suspensions" *J. Colloid Interface Sci.* 229, 107-117 (2000).

Egloffstein, T. A., "Natural bentonites--influence of the ion exchange and partial desiccation on permeability and self-healing capacity of bentonites used in GCLs" *Geotextiles and Geomembranes* 19, 427-444 (2001).

Faisandier, K., "Analyse multiéchelle de dispersion de montmorillonites par diffusion des rayons X. Relations entre structure, texture et propriétés macroscopiques de gonflement," Thèse de l'Université de Orléans (1997).

Faisandier, K., C. H. Pons, D. Tchoubar and F. Thomas, "Structural organization of Na- and K-montmorillonite suspensions response to osmotic and thermal stresses" *Clays and Clay Minerals* 46, 636-648 (1998).

Fayouks, D.. Etanchéité superficielle par traitement de sol. Rapp. Gén., Coll. Etanchéité superficielle, I, 113-28, CEMAGREF, Paris.( 1983).

Fernandez, F. & Quigley, R. M.. Hydraulic conductivity of natural clays permeated with simple liquid hydrocarbons. Can. Geotech. 22, 205-14.( 1985).

Galvez-Cloutier, R., .Study of Heavy Metal Accumulation Mechanisms in the Lachine Canal Sediments, Thèse de doctorat, Université McGill.( 1995).

Galvez-Cloutier, R. et El-Herraoui, E., , A Comparative Study on the Physico-Chernical Performance of MSWL Liners at the MRC of Lotbinière, Québec, Proceedings of the Third International Congress on Environmental Geotechnics, Sêco e Pinto Ed., Lisboa, Portugal, pp. 301-306.( 1998).

Giroud,JP et Bottero,A. Influence des propriétés physico-chimiques des argiles monominérales sur leur comportement mécanique,Bulletin Liaison Labo.P. et Ch ;N°62.,nov-dec.,p.105-116.(1972).

Glaeser, R., "Complexes organo-argileux et rôle des cations échangeables.," Thèse de doctorat d'état de Université Paris VI (1953).

Gordon, B. B. & Forrest, M.. Permeability of soil using contaminated permeant. ASTM, Spec. tech. Publ. 746, pp. 101-20.( 1981).

Gouy, M. G., "Sur la constitution de la charge électrique a la surface d'un électrolyte" J. Phys. Radium (Paris) 9, 457-468 (1910).

Griffin, R. A. & Shimp, N. F., Attenuation of pollutants in municipal landfill leachate by clay minerals. US EPA, Rep. no. 600/2-78-157, Washington, D.C.( 1978).

Grahame, D. C., "The electrical double layer and the theory of electrocapillarity" Chem. Rev. 41, 441- 501 (1947).

Grim RE, Guren N, Bentonites developments in Sedimentology, 24.Elsevier Publ.Co. (1978).

Grim RE.,Clay Mineralogy.Nc Graw-Hill, New York, London, Toronto.( 1967).

Güven, N. and R. M. Pollastro. Clay-water interface and its rheological implications, vol. 4. CMS Workshop Lectures. The Clay Minerals Society. Boulder, Colorado, USA 1992.

Han D. Effect of mix proportion and density on the saturated hydraulic conductivity of Korean bentonite. Proceeding of the eighth Congress of the International Association of Engineering Geology and the Environment, Vancouver, British Columbia, Canada, Vol.IV, 21-25September, pp 963-970. (1998).

Hendricks, S. B., R. A. Nelson and L. T. Alexander, "Hydration Mechanism of the Clay Mineral Montmorillonite Saturated with Various Cations" J. Am. Chem. Soc. 62, 1457-1464 (1940).

- Hendricks, S. B., , Lattice Structure of Clay Minerals and Some Properties of Clays, J. Geol., Vol. 50, pp. 276-290.( 1942).
- Hettiaratchi, J. P. A., Hrudehy, S. E., Smith, D. W. & sego, D. C. C., A procedure for evaluating municipal solid waste leachate components capable of causing volume shrinkage in compacted clay soils. Environmental Technology Letters, 9(2), 23-34.( 1988).
- Hoeks, J. & Ryhiner, A. H.. Surface capping with natural liner materials. In Sanitary landfilling: Process, technology and Environmental Impact, ed. T. H. Christensen, R. Cossu &R. Stegmann. Academic Press, London, pp. 311-22.( 1989).
- Hoeks, J., Glas, H., Hofkamp, J. & Ryhiner, A. H.. Bentonite liners for isolation of waste disposal sites. Waste Managem. Research, 5, 93-105.( 1987).
- Holtz. Introduction à la géotechnique .Edition de polytechnique de Montréal.808p.(1991).
- Hofmann, U., Endell, K. et Wilm, D., ,Kristallstruktur und Quellung von Montmorillonit , Z. Krist., Vol. 86, pp. 340-348.( 1933).
- Hough, B.K. , Basic soils engineering, The Ronald Press Co., New York.( 1957).
- Ingles, O. G. & Metcalf, J. B., Soil Stabilization. Butterworth's, Sydney.( 1972).
- Keller, W.D., , Clay Minerals as influenced by environments of their formation, AAPG bull., vol.40,N°.11, Nov., pp2689-2710.( 1965).
- Kenney, T.C., Van Veen, W.A., Swallow, M.A. and Sungalia, M.A.. Hydraulic conductivity of compacted bentonite sand mixtures. Can. Geotech. J., 29:638 649.(1992).
- KimuraT., Takemura,J.,Hiro-Oka,A.,et Okamura,M.,Mechanical behaviour of intermediate soils.Centrifuge 94,Singapore.,Leunget al. (ed.),Balkema,pp13-24.(1994).
- Kozeny, J., Ueber Kapillare Leitung des Wassers im Boden », Wien, *Akad. Wiss.*, Vol. 136, Part 2a, pp. 27 1.( 1927).
- King, K.S., Quigley, R.M, Fernandez, F., Reades, D.W. and Bacopoulos, A.,. Hydraulic conductivity and diffusion monitoring of the Keele Valley Landfill liner, Maple, Ontario.Can. Geotech. J., 30:124 134.( 1993).
- Komine, H. and Ogata, N., Experimental study on swelling characteristics of compacted bentonite. Can. Geotech. J.,31: 478 490.( 1994).
- Lambe, T. W., The structure of compacted clays. The soil Mechanics and Foundations division, Proc. of the ASCE, 84, SM2.( 1958).
- La Rochelle, P., Mécanique des sols 1, Département de génie civil, Université Laval.( 1992).

- Lo, I. M-C. et Lijjestrang, H. M., Laboratory sorption and hydraulic conductivity tests : evaluation of modified-clay materials, *Waste Management & Research*, No.14, pp. 297-310.( 1996).
- Lundgren, T. A., , Some Bentonite sealants in soil mixed blankets D, *Proc. 10<sup>th</sup> , ICSMFE*, Stockholm, No. 2, pp. 349-354.( 1981).
- Malpei, F., Bentonite as sealing agent in sanitary landfill. Master Thesis, Politecnico di Milano (in Italian). ( 1987).
- Marshall, C. E., , Layer Lattices and Base-Exchange Clays, *Z. Krist.*, Vol. 9 1, pp.433-449.( 1935).
- Marcotte, D., Marron, J. C. et Fafard, M., . Washing of Bentonite in Laboratory Hydraulic-Conductivity Tests, *Journal of Environmental Engineering*, Vol. 1 20, No. 3, pp. 691-698.( 1994).
- Mathieu-Sicaud, A., Mering, J. et Perrin-Bonnet, I., , Etude sur microscope électronique de la montmorillonite et de l'hectorite saturées par différents cations, *Bull. Soc. Franc. Mineral. Crist.*, Vol. 74, pp. 439-455.( 1953).
- Meegoda, N. J. et Rajapakse, R. A., , Short-Term and Long-Term Permeabilities of Contaminated Clays, *Journal of Environmental Engineering*, Vol. 119, No. 4, pp.725-743.( 1993).
- Mesri, G. et Olson, R. E., , Shear Strength of Montmorillonite , *Géotechnique*, Vol.20, No. 3, pp. 261-270.( 1970).
- Mesri, G. & Olson, R. E., Mechanism controlling the permeability of clays. *Clays and Clay Minerals*, 19,151-8.( 1971).
- Mitchell, J. K., *Fundamentals of Soil Behaviour*. J. Wiley & Sons, Toronto.( 1976).
- Mitchell, J.K., Centrifuge model tests on backfill stability. *Can. Geotechn. J.* Vol.23, pp.341-345.(1986).
- Minato, H., Chemical composition of coexisting clinoptinolite and montmorillonite. *Proceedings of the Fifth International Conference on Zeolites*, Naples, Italy, pp. 179 185.( 1980).
- Ming, D.W. and Mumpton, F.A., Zeolites in soils. In: J.B. Dixon and S.B. Weed (Editors), *Minerals in Soil Environments*, Soil Science Society of America, Madison, WI.( 1987).
- Nasiatka, D. M., Shepherd, T. A. & Nelson, J. D., Clay liner permeability in low pH environments. In *Proc., Symposium on Uranium Mill. Tailings Managements*, Colorado State University, Fort Collins, Colorado, pp. 627-45.( 1981).
- Offredi, A., Geotechnical and mineralogical characterization of sand-bentonite mixtures used as sealing agent in sanitary landfills. Master Thesis, University of Milan.( 1990).

Oner, F., Sedimentation-mineralization relationships in the volcano-sedimentary basins of G6rdes and Demirci of Neogene age. Menderes Massif Mineral Exploration Project of MTA of Turkey, Briefing and Seminar Series, 2.( 1993).

Peirce, J. J., Sallfors, G., Peel, T. A. & Witter, K.. Effects of selected inorganic leachates on clay permeability. ASCE, Geotech. Engng., 113(8), 915-19.( 1987).

Peterson, S. R. & Gee, G. W., Interactions between acidic solutions and clay liners: permeability and neutralization. ASTM, Spec. Tech. Publ. 874, pp. 229-45.( 1985).

Pusch, R., Use of bentonite for isolation of radioactive waste products. Clay Minerals, 27: 353-361.( 1992).

Jozja, N., "Étude de matériaux argileux Albanais. Caractérisation "multi-échelle" d'une bentonite magnésienne. Impact de l'interaction avec le nitrate de plomb sur la perméabilité." Thèse de doctorat de l'Université d'Orléans (2003).

Keren, R., I. Shainberg and E. Klein, "Settling and flocculation value of Na-montmorillonite particles in aqueous media" Soil Sci. Soc. Am. J. 52, 76-80 (1988).

Khandal, R. K. and T. F. Tadros, "Application of viscoelastic measurements to the investigation of the swelling of sodium montmorillonite suspensions" J. Colloid Interf. Sci. 125, 122-128 (1988).

Kozaki, T., H. Sato, S. Sato and H. Ohashi, "Diffusion mechanism of cesium ions in compacted montmorillonite" Engineering Geology 54, 223-230 (1999).

Kozaki, T., A. Fujishima, N. Saito, S. Sato and H. Ohashi, "Effects of dry density and exchangeable cations on the diffusion process of sodium ions in compacted montmorillonite" Engineering Geology 81, 246-254 (2005).

Krishna Mohan, K., M. G. Reed and H. Scott Fogler, "Formation damage in smectitic sandstones by high ionic strength brines" Colloids Surf. A 154, 249-257 (1999).

Langmuir, D., "Aqueous Environmental Geochemistry" Prentice Hall, 600p (1997).

Langmuir, D., 'journal of the American Chemical society, 40, 1361, 1918

Laribi, S., J.-M. Fleureau, J.-L. Grossiord and N. Kbir-Arighuib, "Comparative yield stress determination for pure and interstratified smectite clays" Rheol. Acta 44, 262-269 (2005).

Le Pluart, L., "Nanocomposites Epoxyde/amine/montmorillonite : Rôle des interactions sur la formation, la morphologie aux différents niveaux d'échelle et les propriétés mécaniques des réseaux," Thèse de doctorat de L'Institut National des Sciences Appliquées de Lyon (2002).

Le Pluart, L., J. Duchet, H. Sautereau, P. Halley and J.-F. Gerard, "Rheological properties of organoclay suspensions in epoxy network precursors" Appl. Clay Sci. 25, 207-219 (2004).

- Leyama, M., "Etude de l'écoulement des suspensions de bentonite," Thèse de doctorat de l'ULP (2001).
- Li, H., S. Wei, C. Qing and J. Yang, "Discussion on the position of the shear plane" *J. Colloid and Interface Science* 258, 40-44 (2003).
- Luckham, P. F. and S. Rossi, "Colloidal and rheological properties of bentonite suspensions" *Adv. Colloid Interface Sci.* 82, 43-92 (1999).
- M'Ewen, M. B. and M. I. Pratt, "The gelation of montmorillonite" *Trans. Faraday Soc.* 53, 535-547 (1957).
- Mathieu-Sicaud, A. and J. Mering, "Etude au microscope de la montmorillonite et de l'hectorite saturées par différents cations" *Bull. Soc. Franc. Miner. Crist.* 74, 439-455 (1951).
- M'bodj, O., N. K. Ariguib, M. T. Ayadi and A. Magnin, "Plastic and elastic properties of the systems interstratified clay-water-electrolyte-xanthan" *J. Colloid Interface Sci.* 273, 675-684 (2004).
- Mc Kenzie, R. C., "The classification of soil silicates and oxydes" in "Soil Components (Inorganic Components)". Gieseeking J. E. eds. Spring-Verlag, vol. 2, New York, Berlin, Heidelberg, 1-25 (1975).
- Mering, J., "On the hydration of montmorillonite" *Trans. Faraday Soc.* 42B, 205-219 (1946).
- Mering, J., "L'interférence des rayons X dans les systèmes à interstratification désordonnée." *Acta Cryst.* 2, 371-377 (1949).
- Mering, J. and G. Pedro, "Discussion à propos des critères de classification des phyllosilicates 2/1." *Bulletin du groupe français des argiles* 21, 1-30 (1969).
- Mering, J. and A. Oberlin, "The smectites" in "The Electron-Optical Investigation of Clays". J. A. Gard Eds., Mineralogical Society, London. p195 (1971).
- Millar, C.E., Turk, LM. Foth, H.D., , *Fundamentals of Soil Science*, John Wiley and Sons, Inc., New York. (1998).
- Norrish, K., "The swelling of montmorillonite" *Disc. Faraday Soc.* 18, 120-134 (1954).
- Ourth, A-S, Influence des lixiviats sur les propriétés géomecaniques, en conditions saturée ou non, de l'argile constituant des barrières d'étanchéité pour centre d'enfouissement technique et sites contaminés, Mémoire de fin d'études, Diplôme d'études approfondies en sciences agronomiques et ingénierie génétique, Faculté des Sciences Agronomiques de Gembloux , Belgium, 74p. (1998).
- Ourth, A-S and Verbrugge, JC, , Influence of Leacheates on Geomechanical properties of clay Used as Confining Barriers. *Proceedings XI Panamerican Conference on Soil Mechanics and Geotechnical Engineering*, Iguassu, August, AA Balkema, Vol I, pp497-500. (1999).

Ourth, A-S and Verbrugge, JC, First results about the influence of leachate on the properties of Boom clay. Proceedings II Geoenvironmental Engineering Conference, London, September, Thomas Telford, pp 47-53.( 1999).

Pellerin, F.M., La porosimétrie au mercure appliquée à l'étude géotechnique des sols et des roches .Bulletin de Liaison des Laboratoires des Ponts et Chaussées ,Vol.106,pp.105-116.(1979).

Peck R.B., Hanson,W.,et Thornburn,T., Foundation Engineering.John Wiley and Sons.(1957).

Pettijohn, F.J., Sedimentary Rocks, Harper and Bros., New York.( 1997).

Pédro, G., "Les minéraux argileux" dans "Pédologie (2 - Constituants et propriétés du sol)". Eds. Duchaufour Ph. et Southier B. Masson, Paris 665p, 47-64 (1994).

Pignon, F., A. Magnin and J.-M. Piau, "Thixotropic behavior of clay dispersions: Combinations of scattering and rheometric techniques" J. Rheol. 42, 1349-1373 (1998).

Pinta M.; techniques de l'Ingénieur 10. p 2825, (1985).

Philipponnat G., et Hubert, B, Foundations et ouvrages en terre.Editions Eyrolles ,Paris,548p,(2000).

Pons, C. H., "Mise en évidence des relations entre la texture et la structure dans les systèmes eau smectites par diffusion aux petits angles du rayonnement synchrotron," Thèse de doctorat de L'Université d'Orléans (1980).

Pons, C. H., F. Rousseaux and D. Tchoubar, "Utilisation du rayonnement synchrotron en diffusion aux petits angles pour l'etude du gonflement des smectites; I, Etude du systeme eumontmorillonite- Na en fonction de la temperature" Clay Minerals 16, 23-42 (1981).

Pons, C. H., F. Rousseaux and D. Tchoubar, "Utilisation du rayonnement synchrotron en diffusion aux petits angles pour l'etude du gonflement des smectites; II, Etude de differents systemes eau-smectites en fonction de la temperature" Clay Minerals 17, 327-338 (1982).

Pons, C. H., H. Ben Rhaiem, D. Tessier and C. Clinard, "Apport de la diffusion aux petits angles de rayons X à l'étude de la microstructure des matériaux argileux" dans "Micromorphologie des sols, Proc. VII Int. Meet. Micromorphology", 37-42 (1987).

Pohl, D. H., Martin, J., Palmeira, E. et Laumakis, T., , Use of selected tropical soils as seepage barriers for contaminated liquids, Innovative technologies for site rernediation and hazardous waste management, Radisav D. Vidic and Frederick G. Pohland, American Society of Civil Engineers, pp. 1 10- 1 17.( 1995).

Push R, .Clay particules. Nat.Swed.Build.Res.Council, Stockholm, REP.N°40.( 1962).

Pusch, R., "Mineral-water interactions and their influence on the physical behaviour of highly compacted Na bentonite" Can.Geotech. J. 19, 381-387 (1982).

- Quigley, R. M., , Clay Minerals Against Contaminant Migration, *Geotechnical News*, Vol. II, No.4, pp.44-46.( 1993).
- Quigley, R. M., Crooks, V. E. & Fernandez, F.. Engineered clay liners. In *Proc., Semin. on Design and Construction of Municipal and Industrial Waste Disposal Facilities*. Can. Geotech. Soc., Toronto, pp. 115-34.( 1984).
- Quigley, R. M., Fernandez, F., Helgason, T.,Margaritas, A. & Whitby, J. L.. Hydraulic conductivity of contaminated natural clay directly below a domestic landfill. *Can. Geotech.* .24, 377-83.( 1987).
- Quigley, R. M., Fernandez, F. & Rowe, R.. Clayey barrier assessment for impoundment of domestic leachate (Southern Ontario) including clay-leachate compatibility by hydraulic conductivity testing. *Can. Geotech.* 25, 574-81.( 1988).
- Rand, B., E. Pekenc, J. W. Goodwin and R. Smith, "Investigation into the existence of edge-face coagulated structures in Na-montmorillonite suspensions" *J. Chem. Soc. Faraday Trans.* 76, 225-235 (1980).
- Robert,L., ‘Opération unitaire- adsorption’ *Techniques de l’ingénieur J2730 a*, (1989).
- Rodier J., *L’analyse de l’eau : eaux naturelles, eaux résiduaires, eau de mer*. Sixième édition, (1978).
- Sima, N. & Reuter, A.. The use of bentonite for sealing earth dams. *Bull. Int. Ass. Eng. Geology*, 20, 222-6.( 1979).
- Skempton ,A.W., The pore pressure coefficients ,A and B.*Geotechnique Vol.4,N°4,pp.143-147*, (1953).
- Sposito G, . *The surface chemistry of soils* .Oxford University Press, New York. (1984).
- Stern, O., "Zur theorie der elektrolytischen doppelschicht" *Zeit. Elektrochem.* 30, 508-16 (1924).
- Slejko E.L., Dekker.M, *Adsorption Technology. a step by step approach to process evaluation and application* Chap. 2 p37.Ed M.Dekker,New York, (1985).
- Swartzen-Allen, S. L. and E. Matijevic, "Surface and colloid chemistry of clays" *Chem. Rev.* 74, 385- 400 (1974).
- Tessier, D., "Recherches expérimentales sur l’organisation des particules dans les argiles. Application à l’étude de 4 pâtes argileuses "calciques" en voie de dessiccation," Thèse ingénieur CNAM, Paris (1975).
- Tessier, D., "Etude expérimentale de l’organisation des matériaux argileux. Hydratation, gonflement et structure au cours de la dessiccation et de la réhumectation," Thèse de doctorat de l’Université de Paris VII (1984).



- Tessier, A., Campbell, P. G. C. et Bisson, M., Sequential Extraction Procedure for the Speciation of Particulate Trace Metals D, *Analytical Chemistry*, Vol. 51, No. 7, pp. 844-851. (1979).
- Tombácz, E. and M. Szekeres, "Colloidal behavior of aqueous montmorillonite suspensions: The specific role of pH in the presence of indifferent electrolytes" *Appl. Clay Sci.* 27, 75-94 (2004).
- Touret, O., C. H. Pons, D. Tessier and Y. Tardy, "Etude de la repartition de l'eau dans des argiles saturées Mg<sup>2+</sup> aux fortes teneurs en eau" *Clay Minerals* 25, 217-233 (1990).
- Uppot, J. O. & Stephenson, R. W. Permeability of clays under organic permeants. *ASCE, Geotech. Engng.* 115(1), 115-31.(1989).
- Vali, H. and L. Bachmann, "Ultrastructure and flow behavior of colloidal smectite dispersions" *J. Colloid Interf. Sci.* 126, 278-291 (1988).
- Van Ree, C.C.D.F., Weststrate, F.A., Meskers, C.G. and Bremmer, C.N... Design aspects and permeability testing of natural clay and sand-bentonite liners. *Geotechnique*, (4211: 4956.(1992).
- Van Olphen, H., "An Introduction to Clay Colloid Chemistry" Ed. Inter science, New York (1963).
- Van Olphen, H., "Internal mutual flocculation in clay suspension" *J. Colloid Interf. Sci.* 19, 313-322 (1964).
- Van Olphen, H., "An Introduction to Clay Colloid Chemistry" Willey, New York (1977).
- Verwey, E. J. W. and J. T. G. Overbeek. Theory of the stability of lyophobic colloids. Elsevier, Amsterdam, The Netherlands (1948).
- Viallis-Terrisse, H., "Interaction des Silicates de Calcium Hydratés, principaux constituants du ciment, avec les chlorures d'alcalins. Analogie avec les argiles.," Thèse de doctorat de l'Université de Bourgogne (2000).
- Weiss, A. and R. Frank, "Über den Bau der Gerüste in thixotropen Gelen" *Z. Naturforsch* 16b, 141-142 (1961).
- Weber WJ., McGinley PM, Ktz., LE 'Sorption in subsurface systems concept, models and effects on contaminant fate and transport. *Water Research*, Vol. 25, p.499-528, (1991).
- Winiarski, T., Analyse systémique du fonctionnement de l'interface système naturel et système anthropisé: -exemple de l'interface décharge/aquifère, Thèse de doctorat, Université Claude Bernard-Lyon 1.(1994).

Wu, J. Y. et Khera, R. P., « Properties of a Treated-Bentonite/Sand Mix in Contaminant Environment, » Physico-Chernical Aspects of Soil and Related Materials, ASTM STP 1095, (1990).

Yariv, S. & Cross, H., Geochemistry of Colloid System for Earth Scientists. Spinger-Verlag, New York. (1979).

K. B. Hoddinott and R. O. Lamb, Eds., American Society for Testing and Materials, pp. 47-59.

Yang, M., C. M. Neubauer and H. M. Jennings, "Interparticle potential and sedimentation behavior of cement suspensions : Review and results from paste" Advanced Cement Based Materials 5, 1-7 (1997).

### **NORMES:**

NP P 94-056 ..... Analyse granulométrique : méthode par tamisage à sec après lavage.

NP P 94-057 ..... Analyse granulométrique des sols : méthode par sédimentation.

NP P 94-051 .....Détermination des limites d'Atterberg.

NP P 94-068 ..... Détermination de la valeur de bleu de méthylène par l'essai à la tache.

NP P 94- 071-1 ... Essai de cisaillement rectiligne à la boîte

## 1.1 Introduction

Les expériences technique et scientifique indiquent que en mélangeant un matériau granulaire avec une argile active comme la bentonite, on obtient un mélange de faible perméabilité qui est mécaniquement stable et ceci en dépit de la nature contraste des propriétés des constituants en terme de dimension des grains et de l'activité chimique. Il en résulte que l'agrégation d'un matériau pulvérulent avec la bentonite, si elle est judicieusement proportionnée et compactée, peut satisfaire plusieurs exigences hydrauliques et mécaniques pour des travaux de terre. Les propriétés du matériau de base ainsi que la masse de la fraction de bentonite ont tout les deux étaient sélectionnées à la suite de critères empiriques à satisfaire dans le processus de design. Actuellement les utilisations des mélanges sable bentonite dans le domaine de l'engineering, sont fréquentes. Le tableau 1.1 dresse une liste de certaines de ces applications.

| <b>*FB (%)</b> | <b>Applications</b>  | <b>Location</b>              | <b>Référence</b>  |
|----------------|--|------------------------------|---|
| 50             | Dépôts profonds de matériaux hautement radioactifs.              | Canada                       | Lopez et al. 1984   |
| 15             | Dépôts semi profonds matériaux radioactifs de faibles activités  | Japon                        | Nishigaki et al.1994  |
| 5 -15          | Barrières de décharges, rejets industriels<br>Barrières de canal | Canada,<br>USA,<br>Allemagne | Chapuis, 1990; D'Appolonia, 1980.<br>Gilham et al 1984        |
| 3 -5           | Tranchées verticales (cutoff walls)                              | Mondial                      |   |
| < 5            | Barrages zonés   | Europe                       | Schnitter et Zeller 1961; Lauffer et Shober 1961; ITCOLD 1981 |

\*FB : fraction de bentonite

Tableau 1.1 Utilisation des mélanges sable bentonite dans la pratique en fonction de la fraction bentonite

Ainsi plusieurs décharges et lagunes ont été imperméabilisées par des matériaux argileux (mélange de sol argile, mélange de sable bentonite) dans le but de retenir aussi bien des liquides que des déchets solides dans plusieurs pays. Au Canada par exemple, ce sont plus de

450 décharges et lagunes qui ont construites avec des barrières en matériaux argileux depuis 1980 (Chapuis, 2000).

Le but derrière l'installation d'une barrière dans une décharge est d'empêcher la migration des lixiviats vers les eaux souterraines et de surface, de réduire la concentration des polluants par adsorption (Lee, 2002 ; Reddy et Butul, 1999). Les deux barrières, naturelles et synthétiques, sont utilisées dans les décharges contrôlées bien équipées (Reddy et Butul, 1999 ; Davis et Cornwell, 1991). Les barrières en matériaux géosynthétiques ou barrières en matériaux flexibles (FML.s) et soils imperméables peuvent être utilisés ensemble. Les recommandations de l'USEPA (2001) favorisent l'utilisation de barrières composites. Une barrière composite est actuellement une barrière unique composée de deux éléments, une couche plastic et une couche d'argile compactée.

Depuis 1980, l'utilisation des barrières en matériaux flexibles (FML's) est en constante progression à cause de leurs faible perméabilité et de leurs résistance aux diverses attaques chimiques (USEPA, 2001). Ce type de barrière est accompagné par un système de collecte et de drainage des lixiviats générés par les déchets dans la décharge. Les matériaux géosynthétiques sont en général des géotextiles, des géomembranes, des géogrides et des géocomposites (USEPA, 2001 ; Reddy et Butul, 1999 ; Koerner et Richardson, 1987).Cependant on a trouvé que toutes ces barrières étaient vulnérables aux fuites (Lee, 2002 ; Reddy et Butul, 1999). Une attention particulière est alors de plus en plus donnée à l'atténuation naturelle par des barrières argileuses du moment que ces dernières possèdent une capacité naturelle de rétention des polluants (USEPA, 2001).

## **1.2 Barrières en mélange sable bentonite**

Les barrières en sol qui consistent en un mélange de sable bentonite sont largement utilisées à travers le monde et également en Amérique du Nord (Edil ,2002). Leurs efficacités dépends de leur comportement mécanique, de leur comportement hydraulique et de leurs propriétés d'atténuation et de rétention de la contamination (Lo et Lijstrand, 1996 ; Bouchard et coll., 1995, Pohl et coll., 1995). Bien que les barrières en sable bentonite sont appropriées pour entraver les fuites de contaminants dans une décharge d'une manière économique, certaines précautions doivent être prises afin d'assurer les niveaux de performances requises (Bonaparte et Gross, 1990). Lorsque les sols en place sont trop grossiers pour être utilisés comme couche étanche et qu'il n'y a pas d'argile compactable disponible à proximité, une solution consiste à utiliser un mélange sable bentonite (s/b). Rowe (2001) a résumé les considérations de base

pour la sélection de la bentonite et les méthodes de design de ces barrières par la granulométrie du sol de base (Evans, 1991 ; Alston et al, 1997), la quantité de bentonite (Kenney et al. ,1991 ; Alston et al, 1997 ; Santucci de Magistris et al, 1998 ; Silvapullaiah et al, 2000) et la minéralogie de la bentonite (Edil et Erikson, 1994 ; Buettner, 1995). La réalisation d'une barrière en sable bentonite d'une manière réussie passe nécessairement par l'obtention et le maintien d'un mélange homogène en évitant la ségrégation avant et durant le placement, un bon compactage et un bon contrôle de la teneur en eau (Kenny et al ,1991 ; Evans, 1991) et des couches uniformes lors de la pose. Une considération de base dans la sélection et la construction des barrières en sable bentonite est l'éventualité de l'interaction entre la bentonite et le fluide à retenir qui peut causer une augmentation de la conductivité hydraulique et provoquer ainsi une défaillance grave dans le fonctionnement de la barrière (Stewart et al., 1999 ; Kleppe et Olson , 1985). Les spécimens de sable bentonite ont montrés de bonnes résistances au phénomène de gel dans des essais de laboratoire ( Wong et Haug,1991) comparés aux barrières en argiles compactées , il est cependant prudent de les protéger contre le gel-degel et la dessiccation.

#### Choix des matériaux

Certaines caractéristiques distinguent les minéraux argileux de type smectite et sont indispensables pour tout matériau de barrière antipollution (Winiarski 1994) :

- leurs propriétés de gonflement qui assurent un bon contact avec la roche hôte et permettent le remplissage des fissures existantes ou qui se développeraient à posteriori;
- une très faible perméabilité;
- des propriétés d'échange et d'adsorption aptes à retenir préférentiellement certains polluants;
- une stabilité physique du matériau lors d'un contact avec de l'eau.

Canada Environment (1985) recommande l'utilisation de bentonites à forte teneur en montmorillonite ayant principalement du sodium comme cations échangeables. D'après ce document, les bentonites avec du calcium auraient un potentiel de gonflement plus faible et nécessiteraient des pourcentages de bentonite plus élevés pour atteindre les mêmes objectifs de conductivité hydraulique. Le sable doit aussi posséder des caractéristiques granulométriques telles que la stabilité hydraulique du mélange sera assurée et que la bentonite demeurera à l'intérieur du squelette formé par le sable. Les données de Marcotte et al. (1993) recueillies dans le cadre de l'étude géotechnique réalisée pour la décharge de Trois-Rivières, montrent que le risque de lessivage augmente lorsque les pourcentages de particules fines et de bentonite sont faibles. On peut y remédier en augmentant le pourcentage de particules fines. Bien sûr, les conditions conduisant à un lessivage varient avec le sol étudié,

la nature de la bentonite utilisée et peut-être les caractéristiques d'essais. On doit donc vérifier que le mélange sable bentonite est stable, en réalisant des essais de perméabilité sous des gradients hydrauliques au moins aussi élevés que dans les conditions de terrain, sans papier-filtre qui pourrait arrêter la bentonite, et en suivant l'évolution dans le temps de la conductivité hydraulique et de l'apparence de l'eau percolée (Laine et Miklas, 2002). Les pourcentages de bentonite utilisés varient généralement entre 4 et 15 % (CCME, 1991). L'épaisseur typique pour ce genre de couche varie entre 15 et 30 cm (projets Nord Américains). Pour de faibles pourcentages de bentonite, le comportement mécanique est contrôlé par le sol pulvérulent. Si par contre le pourcentage en bentonite devenait excessif, les particules de sable ne seraient plus en contact les unes avec les autres et le comportement mécanique serait alors contrôlé par la bentonite et son faible angle de frottement. En ce sens, trop de sécurité sur le pourcentage de bentonite pour atteindre une performance hydraulique peut conduire à un problème de stabilité mécanique des mélanges sur les talus. La figure 1.1 de Lundgren (1981) montre l'influence du pourcentage de bentonite sur la conductivité hydraulique d'un mélange sable bentonite. Lorsque le pourcentage de bentonite défini en poids est augmenté,  $k$  décroît selon une relation qui est approximativement linéaire dans un diagramme  $\log k$  vs  $b/s$ , jusqu'à un palier qui correspond à la conductivité hydraulique de la bentonite.

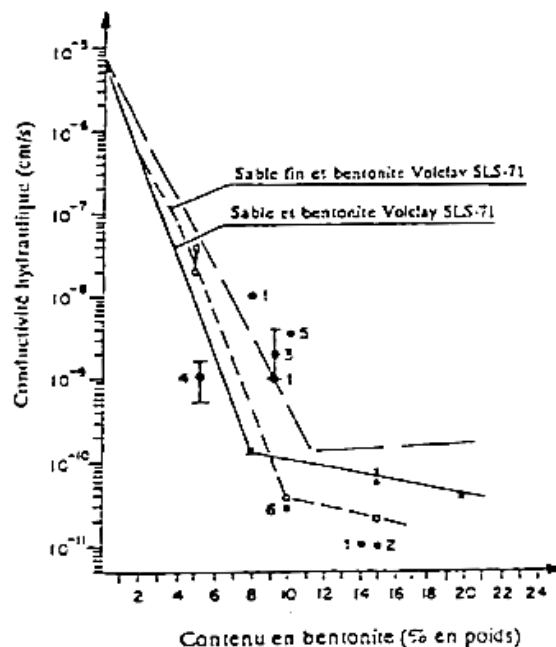


Figure 1.1 Pourcentage de bentonite vs conductivité hydraulique d'un mélange s/b - Tirée de Lundgren (1981)

En faisant varier le pourcentage de particules fines contenues dans le sable, on peut diminuer la quantité de bentonite requise pour atteindre la conductivité hydraulique désirée (Alston et coll. 1997). Dans la pratique, l'on cherchera à obtenir le mélange le moins coûteux, qui satisfasse les conditions hydrauliques tout en n'assurant aucune perte de particules par lessivage. En général,  $10^{-7}$  cm/s représente l'ordre de grandeur de la conductivité hydraulique maximale habituellement requise pour les sites d'enfouissement, les étangs de traitement, etc.

Comportement à long terme Plusieurs facteurs peuvent affecter la pérennité des barmes de sable bentonite : des facteurs de nature chimique tels que dissolution de minéraux, modification de la minéralogie, modification des doubles couches, et des facteurs de nature physique tels que les cycles de gel dégel, les cycles de mouillage séchage et l'érosion interne. La tendance au retrait par séchage de la bentonite est très marquée. Pour éviter la fissuration du mélange, il faut que celui-ci ait un squelette de sable suffisamment rigide pour y résister, le retrait et la fissuration de mélanges sable bentonite diminuant lorsque le pourcentage de sable augmente. La bentonite peut éventuellement sécher et diminuer de volume à l'intérieur des pores, mais sans affecter le volume total du sol; par ailleurs, lorsque l'eau redevient disponible, la bentonite reprend son volume initial. Les cycles de gel dégel n'augmentent pas la conductivité hydraulique des mélanges sable bentonite. Comme les autres argiles, la bentonite peut être affectée par les acides, les bases et les composés organiques, mais elle est particulièrement sensible aux échanges de cations. Certaines bentonites commerciales sont traitées pour accroître leur résistance à ces différents facteurs, mais leur comportement à long terme reste incertain. Il est bien connu que les sols qui possèdent une forte teneur en minéraux de type smectite peuvent voir leur conductivité hydraulique augmenter de façon significative lorsqu'ils sont exposés à certains contaminants (Mesn et Olson 1971, D'apponia 1980, Anderson et coll. 1985, Wu et Khera IWO). Par exemple, Wu et Khera (1990) ont démontré que la perméabilité d'un mélange sable bentonite, contenant 10 % de bentonite, augmentait lors d'une augmentation de la concentration des contaminants. Ils ont observé, dans le pire des cas, une augmentation de cinq ordres de grandeur. De plus, ils concluent que les contaminants qui ont le plus d'impact sur le gonflement de la bentonite, provoquent les plus grandes hausses de la conductivité hydraulique du mélange s/b. En somme, ce qui tend à diminuer l'épaisseur de la double couche autour des particules tend à restreindre le gonflement de la bentonite et à augmenter la perméabilité des couches s/b (Wu et Khera, 1990). Selon les données disponibles, il semble que l'impact négatif sur le gonflement de la bentonite et sur la conductivité hydraulique de mélanges s/b soit inférieur pour les contaminants organiques

comparé à celui provoqué par les métaux lourds qui est lui-même inférieur à celui dû aux acides et aux bases. La pression de consolidation est un autre facteur qui influence le degré de détérioration des couches s/b. Pour une pression de consolidation supérieure à 100 kPa, Wu et Khera (1990) ont observé peu de variations de la conductivité hydraulique en présence de contaminants. Celle-ci était modifiée de façon significative lorsque la pression de consolidation était inférieure à 100 kPa. Alston et coll. (1997) ont observé qu'en augmentant la pression de consolidation, l'augmentation de la conductivité hydraulique de couches s / b due aux contaminants était moindre. Les essais au laboratoire doivent vérifier la stabilité a long terme de la couche étanche entière, ce qui inclut les couches de protection au-dessus et en dessous de la couche sable/bentonite (Alston et coll. 1997, Chapuis 1990). Selon leur composition, les couches protectrices peuvent influencer la conductivité hydraulique en créant des échanges d'ions avec la couche s/b. Dépendant de l'épaisseur de la couche du haut, celle-ci provoque une pression de consolidation plus ou moins grande qui peut aussi influencer la conductivité hydraulique (figure1.2).

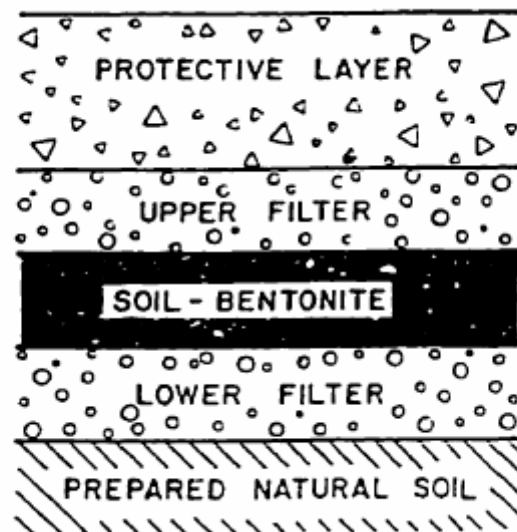


Figure1.2. Section typique d'une couche sable/bentonite  
Tirée de Chapuis (1990)



### 1.3 Les matériaux argileux

Il existe plusieurs définitions des argiles. Le terme « argile » n'aura pas le même sens en mécanique des sols, mécanique des roches, ou en physique du sol; il désigne, selon les cas, un ensemble d'espèces minérales, une famille de roches, une catégorie de sols ou encore une classe granulométrique. Sous cette appellation générique se cache donc une grande variété de matériaux, dont le point commun est de posséder des *minéraux argileux*, qui sont eux de nature bien précise (à base de silicates) et dont la structure confère à ces matériaux - comparativement à d'autres types de sols ou de roches - des propriétés bien spécifiques quant à leur interaction avec l'eau.

L'argile qui fait l'objet de notre travail est connue sous le nom de "*bentonite*". Elle désigne généralement une poudre minérale constituée essentiellement de l'argile de montmorillonite (famille des smectites). Dans leur état naturel, la plupart des gisements de bentonite sont hétérogènes ; ils sont constitués de smectites mélangées ou interstratifiées avec l'illite et/ou la kaolinite et d'autres impuretés [Laribi *et al.* (2005)]. La bentonite est largement utilisée dans de nombreux secteurs industriels (pharmacie, cosmétique, chimie, génie civil, agroalimentaire ...). Elle est utilisée sous forme pâteuse ou à l'état de poudre pour la réalisation de barrières étanches pour les déchets industriels et ménagers (géomembranes bentonitiques) et les déchets radioactifs (barrières ouvragées ; poudre compactées). A l'état liquide, la boue de bentonite se définit comme une *suspension eau-argile*. L'origine de l'usage de la boue est sans aucun doute les forages pétroliers [Besq (2000)]. Elle permet, du fait de ses propriétés rhéologiques, de faire face aux nombreuses exigences du forage, telles que la stabilité de l'ouvrage (par imprégnation du terrain et par fabrication d'un cake pour limiter la filtration vers la paroi) et l'évacuation des déblais [Jozja (2003) ; Besq (2000)].

Dans ce chapitre, nous présentons, en premier lieu, la structure et les propriétés des matériaux argileux en général, afin de mieux distinguer les spécificités des smectites ainsi que la montmorillonite. Cette famille d'argile est la composante majeure de la bentonite commerciale utilisée dans le présent travail. Cependant, il convient de souligner qu'une bentonite peut être composée de smectites mélangées ou interstratifiées avec l'illite et/ou la kaolinite. On note que ces dernières sont moins abondamment traitées dans la littérature que les smectites et les montmorillonites [Luckham et Rossi (1999) ; Laribi et al. (2005)]. Nous présentons par la suite, une revue bibliographique sur la microstructure de la bentonite, son hydratation et ses propriétés de gonflement et de dispersion. La fin de ce chapitre est consacrée aux interactions et aux modes d'associations entre les particules dans le système bentonite-eau.

## 1.4 Organisation structurale

Les phyllosilicates sont des silicates dans lesquels les tétraèdres de  $\text{SiO}_4$  forment des feuillets infinis bi-dimensionnels. Ces feuillets tétraédriques sont condensés avec des octaèdres d'oxydes métalliques dans un rapport 2:1 ou 1:1. Les phyllosilicates sont également appelés plus simplement silicates lamellaires [Le Pluart (2002)]. Les différents groupes de minéraux argileux se différencient par l'arrangement de leurs couches tétraédriques et octaédriques représentés sur la figure 1.3. L'organisation structurale des phyllosilicates est basée sur une charpente d'ions  $\text{O}^{2-}$  et  $\text{OH}^-$  [Caillère *et al.* (1982)]. Ces anions occupent les sommets d'assemblages octaédriques ( $\text{O}^{2-}$  et  $\text{OH}^-$ ) et tétraédriques  $\text{O}^{2-}$ . Dans les cavités de ces unités structurales élémentaires viennent se loger des cations de tailles variables ( $\text{Si}^{4+}$ ,  $\text{Al}^{3+}$ ,  $\text{Fe}^{3+}$ ,  $\text{Fe}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ) en position tétraédrique ou

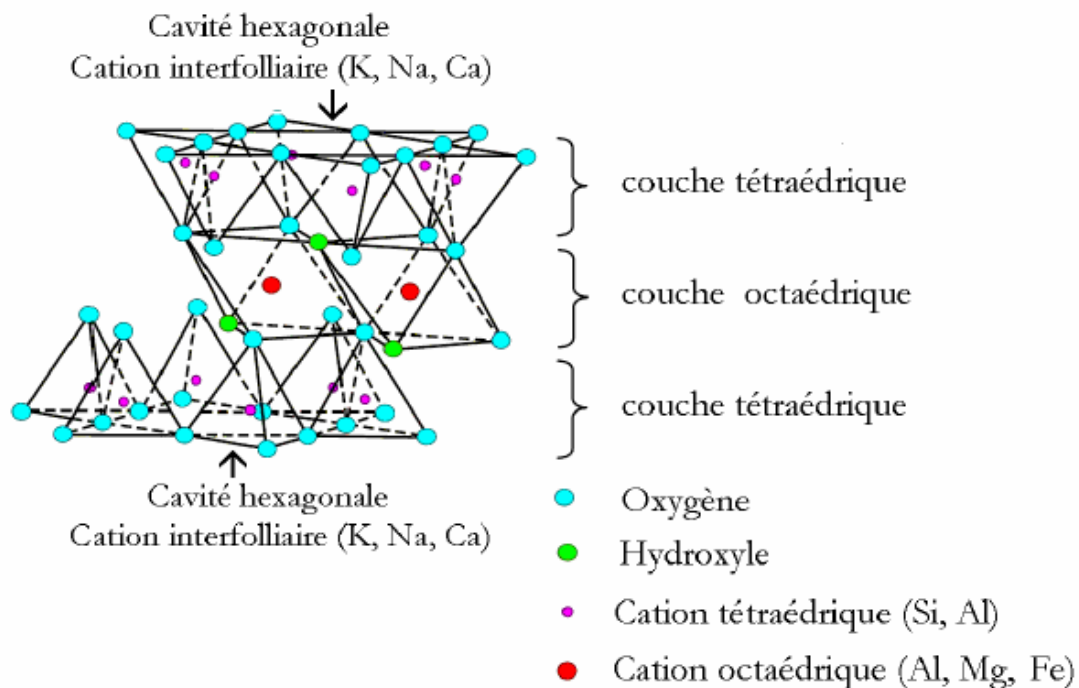


Fig. 1.3 : Représentation schématique d'un feuillet de phyllosilicate 2:1 [Luckham et Rossi (1999)].

octaédrique. Ces éléments s'organisent suivant un plan pour constituer des couches octaédriques et tétraédriques dont le nombre détermine l'épaisseur du feuillet. L'espace entre deux feuillets parallèles s'appelle espace interfoliaire. Lorsque deux cavités sur trois de la couche octaédrique sont occupées par  $\text{Al}^{3+}$  (ou un autre ion métallique trivalent), la structure est dénommée *dioctaédrique*. Quand la totalité des cavités octaédriques est occupée par des

ions métalliques bivalents, la structure s'appelle *trioctaédrique*. Par ailleurs, il peut exister des substitutions isomorphiques dans les couches tétraédriques ( $\text{Si}^{4+}$ -- $\text{Al}^{3+}$ ,  $\text{Fe}^{3+}$ ) et /ou octaédrique ( $\text{Al}^{3+}$ -- $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Fe}^{2+}$ , ou  $\text{Mg}^{2+}$ -- $\text{Li}^+$ ). Ces substitutions entraînent un déficit de charge qui est compensé, à l'extérieur du feuillet, par des cations compensateurs.

## 1.5 Classification des argiles

Il existe différentes classifications des argiles. La plus classique est basée sur l'épaisseur et la structure du feuillet. On distingue ainsi quatre groupes [Jozja (2003)] : **i) Minéraux à 7 Å** : Le feuillet est constitué d'une couche tétraédrique et d'une couche octaédrique. Il est qualifié de T:O ou de type 1:1. Son épaisseur est d'environ 7 Å. **ii) Minéraux à 10 Å** : Le feuillet est constitué de deux couches tétraédriques et d'une couche octaédrique. Il est qualifié de T:O:T ou de type 2:1. Son épaisseur est d'environ 10 Å. **iii) Minéraux à 14 Å** : Le feuillet est constitué de l'alternance de feuillets T:O:T et de couches octaédriques interfoliaires, **iv) Minéraux interstratifiés** : L'épaisseur du feuillet est variable. Ces minéraux résultent du mélange régulier ou irrégulier d'argiles appartenant aux groupes ci-dessus. Par ailleurs, on trouve dans la littérature des modèles différents pour la classification des phyllosilicates. La première classification, établie par le comité international de Classification et de Nomenclature des Minéraux argileux en 1966, est basée uniquement sur la charge du feuillet et sur le nombre d'atomes métalliques en couche octaédrique. La deuxième, établie par Mering et Pedro (1969), prend en compte la localisation des substitutions, leur distribution et le type de cations compensateurs. Cette classification ne prend pas en compte les silicates synthétiques, parfois utilisés dans l'élaboration de nanocomposites, que sont la fluorohectorite, le fluoromica ou la laponite. Le Tableau 1.2 présente une classification déduite des travaux de Brindley (1966) et Mc Kenzie (1975) qui donne la valeur de la charge permanente du feuillet qui a servi comme critère pour établir une classification des phyllosilicates 2:1 (famille qui nous intéresse dans la présente étude). Parmi l'ensemble des argiles citées dans le tableau 1.2, les trois familles les plus importantes sont les kaolinites, les illites et les smectites :

*i) Kaolinite* : Dans le cas de la kaolinite, le feuillet est toujours neutre, dioctaédrique et alumineux, de composition  $(\text{Si}_2)(\text{Al}_2)\text{O}_5(\text{OH})_4$  par demi-maille [Pédro (1994)]. Morphologiquement, la kaolinite se présente sous forme de particules hexagonales constituées par des empilements de feuillets [Jozja (2003)].

ii) *Smectites* : La structure de la couche octaédrique des smectites, ainsi que la localisation des substitutions, ont conduit à une classification de ces minéraux. Ainsi, il existe deux grandes catégories de smectites. Les premières sont dites dioctaédriques du fait de l'occupation de seulement deux sites octaédriques sur trois. Parmi elles, certaines présentent majoritairement des substitutions dans la couche octaédrique (montmorillonite), alors que d'autres sont principalement substituées dans les couches tétraédriques (beidellite). Typiquement, l'ion en site octaédrique est alors l'aluminium, qui est remplacé par du magnésium ou du fer, alors que le silicium tétraédrique est remplacé par de l'aluminium. Il existe un troisième type de smectite dioctaédrique, possédant essentiellement du fer au degré d'oxydation III dans sa couche octaédrique, remplacé par de l'aluminium ou du magnésium (nontronite). Les autres smectites sont trioctaédriques, car, dans ce cas, tous les sites octaédriques sont occupés. L'ion en site octaédrique est en général le magnésium. Parmi elles, certaines sont caractérisées par des substitutions du magnésium par le lithium dans la couche octaédrique (hectorite), alors que pour d'autres, les substitutions ont principalement lieu dans la couche tétraédrique, où le

| Feuillet | Charge par maille  | Dioctaédriques   | Trioctaédriques   |
|----------|--|--|---|
| 1: 1     | 0  | Kaolinite<br>(Si <sub>4</sub> )(Al <sub>4</sub> ) <sub>0</sub> 10(OH) <sub>8</sub>   | Antigorite<br>(Si <sub>4</sub> )(Mg <sub>3</sub> ) <sub>0</sub> 10(OH) <sub>8</sub>   |
|          | #0   |  | Berthierines<br>(Si <sub>4-x</sub> Al <sub>x</sub> )(Mg <sup>2+</sup> <sub>6-x</sub> M <sup>3+</sup> <sub>x</sub> ) <sub>0</sub> 10(OH) <sub>8</sub>        |
|          | #0   | Pyrophyllite<br>(Si <sub>8</sub> )(Al <sub>4</sub> ) <sub>0</sub> 20(OH) <sub>4</sub>  | Talc<br>(Si <sub>8</sub> )(Mg <sub>6</sub> ) <sub>0</sub> 20(OH) <sub>4</sub>   |
| 2: 1     | SMECTITES  |  |   |
|          | 0.4 à 1.2  | Montmorillonite<br>(Si <sub>8</sub> )(Al <sub>4-y</sub> Mg <sub>y</sub> )O <sub>20</sub> (OH) <sub>4</sub> M <sub>y</sub> <sup>+</sup>                 | Hectorite<br>(Si <sub>8</sub> )(Mg <sub>6-y</sub> Li <sub>y</sub> )O <sub>20</sub> (OH) <sub>4</sub> M <sub>y</sub> <sup>+</sup>                            |
|          |  | Beidellite<br>(Si <sub>8-x</sub> Al <sub>x</sub> )Al <sub>4</sub> O <sub>20</sub> (OH) <sub>4</sub> M <sub>x</sub> <sup>+</sup>                        | Saponite<br>(Si <sub>8-x</sub> Al <sub>x</sub> )(Mg <sub>6</sub> )O <sub>20</sub> (OH) <sub>4</sub> M <sub>x</sub> <sup>+</sup>                             |
|          | 1.2 à 1.8  | Illites<br>(Si <sub>8-x</sub> Al <sub>x</sub> )(Al <sub>4-y</sub> M <sup>2+</sup> <sub>y</sub> )O <sub>20</sub> (OH) <sub>4</sub><br>K <sup>+x+y</sup> | Vermiculites<br>(Si <sub>8-x</sub> Al <sub>x</sub> )(Mg <sub>6-y</sub> M <sup>3+</sup> <sub>y</sub> )O <sub>20</sub> (OH) <sub>4</sub><br>K <sup>+x-y</sup> |
|          | MICAS  |  |   |
|          | 2  | Muscovite<br>(Si <sub>6</sub> Al <sub>2</sub> )(Al <sub>4</sub> ) <sub>0</sub> 20(OH) <sub>2</sub> K <sup>+2</sup>                                     | Phlogopite<br>(Si <sub>6</sub> Al <sub>2</sub> )(Mg <sub>6</sub> ) <sub>0</sub> 20(OH) <sub>2</sub> K <sup>+2</sup>   |
| 4        | Margarite<br>(Si <sub>4</sub> Al <sub>4</sub> )(Al <sub>4</sub> ) <sub>0</sub> 20(OH) <sub>2</sub> Ca <sup>2+</sup> <sub>2</sub> | Clintonite<br>(Si <sub>4</sub> Al <sub>4</sub> )(Mg <sub>6</sub> ) <sub>0</sub> 20(OH) <sub>2</sub> Ca <sup>2+</sup> <sub>2</sub>                      |   |

Tableau 1.2 : Classification des phyllosilicate 2:1 [Jozja (2003)].

silicium est remplacé par de l'aluminium (saponite). La localisation des substitutions est un facteur déterminant dans les propriétés d'adsorption des smectites, d'où l'importance de la classification décrite ici. Cependant, la montmorillonite et l'hectorite, dans lesquelles les substitutions ont principalement lieu dans la couche octaédrique, sont les plus répandues dans la nature, et donc les plus souvent étudiées [Viallis-Terrisse (2000)].*iii) Illite* : Comme les smectites, cette famille est aussi un phyllosilicate 2:1. Les feuillets possèdent une charge globale négative, plus élevée que celle des smectites, qui est compensée par des ions potassium. La différence fondamentale avec les smectites réside dans le fait que les ions compensateurs (potassium) ne sont que très faiblement échangeables : l'illite a une capacité d'échange cationique faible. Il n'y a pas d'hydratation des espaces interfoliaires [Jozja(2003) ; M'bodj *et al.* (2004)].

## 1.6 Les smectites

Comme nous l'avons déjà indiqué plus haut, ce type de phyllosilicates est constitué des deux couches tétraédriques encadrant une couche octaédrique (figure 1.4). Les minéraux les plus importants de cette famille sont la montmorillonite, la beidellite, l'hectorite et la saponite [Jozja (2003)]. Cette famille d'argile est composée de particules plates d'une grande extension latérale avec des diamètres allant de quelques microns à plusieurs centaines de microns. Ces

Tableau 1.2 : Classification des phyllosilicate 2:1 [Jozja (2003)].

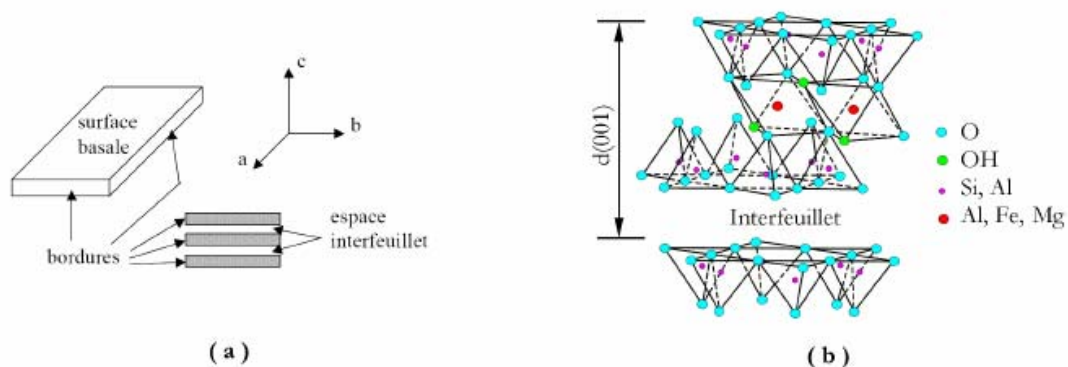


Fig. 1.4 : **a)** Illustration de l'empilement des feuillets d'argile, montrant les surfaces basales, les bordures des particules, ainsi que les espaces interfeuillets [Viallis-Terrisse (2000)]. **b)** Représentation schématique [Luckham et Rossi (1999)] de l'empilement des feuillets unitaires dans une smectite.

particules sont elles-mêmes constituées d'un empilement de feuillets unitaires, formant spatialement une structure de type "jeu de cartes" (figure 1.4.a). L'épaisseur totale du feuillet et de l'espace interfeuillet associé est d'environ 14 Å [Viallis-Terrisse (2000)]. Des molécules d'eau sont susceptibles de s'intercaler dans l'espace interfoliaire (fig. 1.4.b). Le degré d'hydratation dépend de la nature du cation hydraté et de l'humidité relative. Cette possibilité de "gonflement" des espaces interfoliaires conduit à désigner ces argiles par le terme d'"argiles gonflantes", comme nous le verrons plus loin. Les études électrocinétiques menées sur les smectites indiquent que pour tout pH supérieur à 2 ou 3, celles-ci portent une charge négative à leur surface, neutralisée par des cations dits "compensateurs". La principale origine de cette charge de surface provient de substitutions isomorphiques au sein du réseau cristallin, résultant du remplacement des cations métalliques du réseau par des cations de même taille mais de charge inférieure. Cette charge négative est couramment notée charge structurale permanente et se situe aux alentours de  $7.10^{-3} \text{ e}/\text{Å}^2$ . Elle est à l'origine du gonflement de ces minéraux en présence d'eau. D'autres facteurs interviennent également dans la formation de la charge de surface : certaines imperfections au sein du réseau cristallin, la présence de liaisons rompues en bordure des particules, ou celle d'hydroxyles structuraux en surface [Viallis-Terrisse (2000)]. Pour les phyllosilicates, les espaces qui se trouvent entre les feuillets (figure 1.4) peuvent être vides ou remplis. Ils sont vides dans le cas où les feuillets sont neutres et occupés par des cations dès que les feuillets de l'édifice présentent un déficit de charge à la suite de substitutions isomorphiques. Ces cations rétablissent l'électro-neutralité du système et en même temps assurent la liaison entre les feuillets adjacents, qui est ici de nature ionique

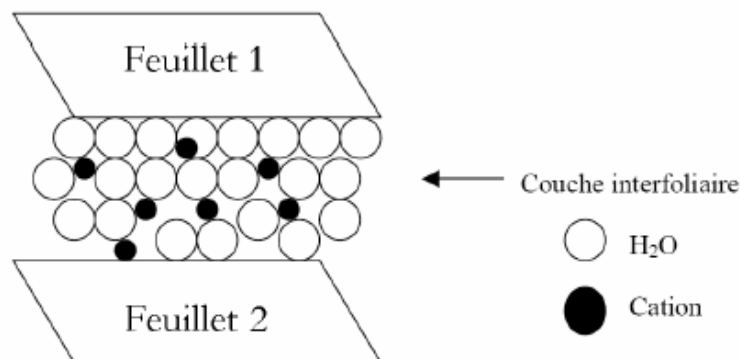


Fig. 1.5 : Représentation schématique de la couche interfoliaire dans le cas de cations interfoliaires hydratés [Jozja (2003)].

[Pédro (1994)]. Ces cations peuvent être soit *secs* soit *hydratés*. Les cations les plus fréquents sont  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Li}^+$ . Dans le cas des smectites où les cations compensateurs sont hydratés avec la présence d'un film d'eau entre les feuillets concourant à leur écartement, on parle de *minéraux expansibles*. La propriété essentielle de ces minéraux est de se disperser au contact de l'eau pour former des suspensions plus ou moins stables. Les cations interfoliaires sont en général échangeables par des cations organiques et minéraux se trouvant dans des solutions mises au contact du phyllosilicate (Figure 1.5). On caractérise alors chaque phyllosilicate par sa *Capacité d'Echange Cationique (CEC)* définie comme étant le nombre de cations monovalents (équivalents chimiques) qu'il est possible de substituer aux cations compensateurs pour compenser la charge électrique de 100 g de minéral calciné. Il y a, dans les argiles, deux principales causes d'existence d'une capacité d'échange ionique, l'une interne et l'autre externe [Glaeser (1953)] :

**i) La présence de substitutions isomorphiques (CEC interne) :** La plus fréquente est la substitution de  $\text{Al}^{3+}$  par  $\text{Mg}^{2+}$  dans la couche octaédrique. C'est le mécanisme principal d'échange pour une montmorillonite. Pour cette argile [Caillère *et al.* (1982)], la distance entre les sites négatifs situés au niveau de la couche octaédrique et le cation échangeable situé à la surface du feuillet est telle que les forces d'attraction sont faibles. Des substitutions de Si par Al dans la couche tétraédrique sont également possibles.

**ii) Les phénomènes de bordure (CEC externe) :** Aux bordures d'un feuillet, les valences du silicium et de l'oxygène en couche tétraédrique d'une part, de l'aluminium et de l'oxygène en couche octaédrique, d'autre part, ne sont pas saturées. Pour compenser ces valences, des molécules d'eau s'hydrolysent et il y a apparition de groupes silanol (Si-OH) ou aluminol (Al-OH) qui, en fonction du pH, peuvent capter ou libérer des protons. Ces derniers peuvent être échangés avec d'autres cations. Le nombre et la nature des charges de bordure de feuillet seront directement liés au pH [Jozja (2003)]. Langmuir (1997) a montré que les charges de bordure de feuillet prennent une importance plus significative lorsque la taille des particules diminue. Ces phénomènes expliquent environ 20 % de la capacité totale d'échange d'une smectite. En résumé, la charge négative des particules argileuses est compensée par l'adsorption de cations, essentiellement le sodium et le calcium dans le cas des smectites. Ces contre-ions sont localisés sur les surfaces externes des particules ainsi qu'entre les feuillets unitaires. Ces cations peuvent être échangés par d'autres cations présents dans le système et on peut ainsi définir une capacité d'échange cationique pour un échantillon donné. Cette capacité d'échange cationique dépendant du pH de la solution, elle est en général mesurée à

pH neutre, ce qui permet une comparaison fiable des différentes données expérimentales. Dans le cas des montmorillonites, la littérature rapporte des valeurs comprises entre 85 et 160 milliéquivalents pour 100 grammes d'argile [Viallis-Terrisse (2000)].

### 1.7 Microstructure de la bentonite

Pour comprendre la microstructure de la bentonite, nous présentons dans ce paragraphe une revue bibliographique sur la microstructure de la montmorillonite en prenant en considération les différents types de minerais et d'empilements de particules constituant l'argile en question. Cette démarche est motivée par : (i) la forte présence de la montmorillonite dans la littérature [Didier (1972) ; Luckham et Rossi (1999) ; Durán *et al.* (2000) ; Tombácz et Szekeres (2004) ], (ii) le fait que les phyllosilicates présentent des similitudes de structure et de propriétés [Le Pluart (2002)] (iii) la bentonite en général, particulièrement celle étudiée ici, est constituée en grande partie par ce type de minerais. En plus de leur facteur de forme exceptionnel [ $L/e$  généralement compris entre 100 et 1000 (fig.1.6)], les montmorillonites possèdent la propriété de gonflement la plus intéressante de tous les minéraux de la famille des phyllosilicates. Nous nous attachons dans cette partie à décrire leur structure à différentes échelles et leurs propriétés spécifiques. Ceci est rendu possible par l'utilisation de techniques expérimentales telles que la Diffusion aux Petits Angles des Rayons X (DPAX) [Pons (1980)], la Microscopie Electronique à transmission (MET) et la Microscopie Electronique à Balayage (MEB). Différents auteurs ont mis en évidence trois niveaux d'organisation dans les systèmes argileux, particulièrement les montmorillonites. Nous avons repris sur la figure 1.6 la présentation des différents niveaux d'organisation selon l'échelle d'observation proposée par Le Pluart *et al.* (2004). Nous présentons donc dans cette partie les trois différents "objets" caractéristiques de cette structure multi-échelle des montmorillonites.

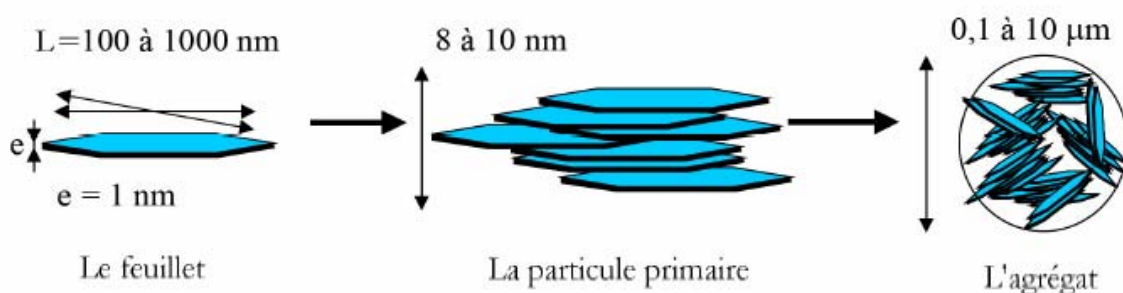


Fig. 1.6 : Structure multi-échelle de la montmorillonite [Le Pluart *et al.* (2004)].



### 1.7.1 Le feuillet

Les feuillets sont les unités structurales de base définissant la nature minéralogique, l'appartenance au type d'argile, les propriétés physico-chimiques ainsi que le comportement macroscopique. Le feuillet représente la répétition horizontale de la demi-maille dans les directions x et y. Il est assimilable à un disque ou à une plaquette, possédant des dimensions latérales de l'ordre du micron, et faisant à peu près un nanomètre d'épaisseur. Ces plaquettes sont considérées comme souples et relativement déformables. L'anisotropie des feuillets est très importante. Dans la famille des smectites, la charge d'un feuillet varie de 0,2 à 0,6 électron par maille, selon la localisation des substitutions et le taux d'occupation des couches octaédriques. La montmorillonite possède environ 0,3 à 0,4 électron par maille [Le Pluart(2002)]. Comme nous l'avons dit plus haut, les cations compensateurs à la surface des feuillets de montmorillonite sont généralement des ions calcium ou sodium. On emploie généralement les termes de montmorillonite "calciq" et de montmorillonite "sodique" pour faire référence à la nature de ces cations.

### 1.7.2 La particule primaire

Les particules constituent le premier niveau d'organisation. Elles sont caractérisées par un empilement de feuillets identiques parallèlement à leur plan de base. Les forces de cohésion entre feuillets sont plus faibles que celles existant au sein du feuillet. Si on considère les principales espèces minéralogiques, la structure de la particule observée dans un plan perpendiculaire au plan des feuillets peut se présenter suivant trois grands types d'empilements: (i) *Empilement ordonné* où les feuillets sont empilés les uns sur les autres dans un ordre parfait. C'est le cas des phyllosilicates dont l'espace interfoliaire est vide ou anhydre (plutôt pour les kaolinites ou illites). (ii) *Empilement semi-ordonné* (ou désordre translationnel). Dans ce cas, les feuillets successifs présentent des translations "semi-définies". Ils sont séparés par quelques molécules d'eau, l'épaisseur de la particule est variable et dépend du degré d'hydratation. Ils peuvent glisser latéralement les uns sur les autres. (iii) *Empilement désordonné* (ou désordre turbostratique). Dans ce cas, des feuillets successifs présentent des translations et/ou des rotations quelconques dans tout l'édifice. Les feuillets sont séparés par un film d'eau permettant une libre rotation autour d'un axe perpendiculaire au plan de la particule [Pons (1980) ; Pedro (1994)].

Il existe un nombre important de termes pour désigner les particules. Le plus petit élément cristallin (le plus petit volume cohérent) produisant des interférences dans un phénomène de diffraction X a été appelé par Mering et Oberlin (1971) "particule primaire". La particule plus grossière, obtenue après une dispersion dans certaines conditions, constituée par l'association de plusieurs particules primaires, a été désignée par les mêmes auteurs par le terme de "particule libre". La montmorillonite est généralement constituée par l'association de plusieurs particules primaires, dont l'extension latérale est particulièrement importante [Pons *et al.* (1982) ; Ben Rhaiem *et al.* (1986) ; Tessier (1984)]. Ces auteurs avaient été amenés à concevoir une juxtaposition, par les bords, des cristallites présentant une légère désorientation les unes par rapport aux autres. Toujours dans le cas de la montmorillonite, Aylmore et Quirk (1971) avaient introduit la formation, par chevauchement face-face à partir de particules libres ou primaires, d'édifices à extension latérale considérable : les "domaines". Si nous nous limitons à la dimension des particules dans la direction perpendiculaire au plan des feuillets, l'épaisseur de ces particules a été évaluée, par l'analyse classique aux Rayons X des réflexions 001, à une dizaine de feuillets maintenus par les forces électrostatiques attractives entre les ions compensateurs et les feuillets. Elle fait généralement 8 à 10 nanomètres d'épaisseur (fig. 1.6). La taille des particules est à peu près constante, c'est-à-dire que lorsqu'une montmorillonite est gonflée, l'espace interfoliaire est augmenté et il y a moins de feuillets dans une particule [Mathieu-Sicaud et Mering (1951) ; Le Pluart (2002) ; Jozja (2003)]. D'autre part, la montmorillonite présente des substitutions isomorphes de type dioctaédrique [Luckham et Rossi (1999)]. Ce type de localisation des charges empêche les cavités hexagonales de deux feuillets adjacents de se superposer. L'arrangement global des feuillets, au sein d'une particule primaire de montmorillonite, est donc turbostratique. Ils présentent un désordre dans le plan latéral mais sont tous perpendiculaires à la direction z [Didier (1972)]. Cela a été bien confirmé dans le cas des montmorillonites calciques fortement hydratées en utilisant l'analyse de la diffusion aux petits angles et la microscopie électronique à transmission [Pons *et al.* (1982) et (1987)]. Ces auteurs ont défini la particule comme étant un empilement parallèle quel que soit le degré d'ordre dans la répétition de ces feuillets à l'intérieur de l'empilement. Comme nous le verrons plus loin, ces particules constituent les "parois" du réseau de pores développé au sein de l'échantillon et ont une épaisseur extrêmement variable en fonction de la teneur en eau de l'échantillon.

Dans la littérature, on trouve souvent des travaux sur des bentonites constituées par des minéraux non homogènes dites "interstratifiées" [Caillère *et al.* (1982) ; Laribi *et al.* (2005)]. Ces particules d'argile sont constituées par la superposition de feuillets qui sont : (i) soit de

nature différente (illite-smectite, vermiculite-smectite, etc.), (ii) soit de même nature mais qui diffèrent par leurs remplissages interfoliaires comme le cas de la montmorillonite hydratée où l'espace interfoliaire peut contenir une, deux, trois ou quatre couches d'eau, (iii) ou par la nature et le remplissage interfoliaire à la fois, comme le cas de l'illite-smectite avec des feuillets de smectite dans des états d'hydratation variables [Ben Rhaiem *et al.* (1986) ; Jozja (2003)]. Parmi ces minéraux, les interstratifiés illite/smectite sont les plus étudiés. On les trouve dans des bentonites couramment utilisées dans les boues de forage [Jozja (2003) ; M'bodj *et al.* (2004) ; Laribi *et al.* (2005)]. Dans le cas des minéraux interstratifiés, l'empilement se caractérise essentiellement par le mode de succession des feuillets de nature différente suivant la normale à leur plan. Ainsi si on considère un minéral interstratifié qui contient deux types de feuillets A et B, on peut envisager essentiellement trois types d'interstratifiés : (i) *ségrévés* : une particule donnée présente des séquences AAABBB (figure 1.7.a). Le diagramme de diffraction X est la superposition des diagrammes produits par chacun des constituants, (ii) *Réguliers* : une particule donnée comporte des séquences ABABAB...AB (figure 1.7.b). Une période de surstructure perpendiculairement au plan des feuillets égale à la somme des épaisseurs des deux feuillets apparaît ( $d_T = d_A + d_B$ ). Le diagramme de diffraction X comporte alors des réflexions basales de surstructure correspondant à  $d_T$ , (iii) *Aléatoires* : tous les cas intermédiaires entre les deux décrits précédemment (figure 1.7.c). Dans ce cas, les diagrammes de diffraction X présentent des réflexions (00l) irrationnelles [Mering (1949) ; Pedro (1994)] et leur interprétation est très délicate.

### 1.7.3 L'agrégat

C'est un ensemble de particules primaires orientées dans toutes les directions. Les agrégats ont une taille qui varie de 0,1 à 10 microns comme il est montré sur la figure. 1.6 [Le Pluart (2002)]. Il s'agit d'un assemblage de particules dont l'arrangement est gouverné par le type de forces résultant des interactions entre particules (et du degré de compaction). En effet, lorsque les

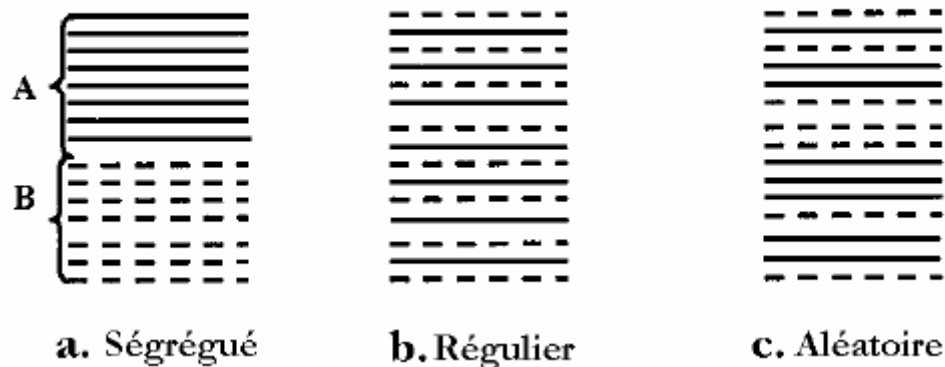


Fig. 1.7 : Différents modes de succession des feuillets au sein d'une unité interstratifiée

forces répulsives sont dominantes, les particules s'orientent parallèlement et la structure est dite dispersée. Ces particules s'assemblent au sein d'*agrégats*, plus au moins denses selon la texture et le nombre des particules, ainsi que les distances entre celles-ci. Tessier (1975), en prenant pour référence les données de Mering et Oberlin (1971) et de Van Olphen (1963), portant sur les minéraux expansibles, a proposé une nomenclature pour nommer les différents modes d'association des particules (détaillés plus loin) : l'agrégat constitué de plusieurs particules primaires a été nommé *unité morphologique* ; le dernier niveau d'organisation est constitué par les *super-agrégats*, où se regroupent les agrégats. Selon la quantité d'eau présente au sein du système et la nature de l'argile considérée, l'organisation sera plus ou moins variée. Il en résulte différents types de structuration comme, par exemple, dans le cas de la montmorillonite, qui possède des unités morphologiques très déformables. Ces déformations sont probablement plus aisées que dans les autres phyllosilicates, même si elles sont relativement limitées du fait que les particules possèdent une certaine rigidité [Luckham et Rossi (1999) ; Jozja (2003)]. On en conclut que l'organisation de la microstructure de la bentonite (du feuillet à l'assemblage d'agrégats) ne peut être interprétée que si l'organisation de l'espace poral est prise en considération. La dimension, la forme et la distribution des espaces poraux dépendent de la granulométrie de l'argile, de son caractère gonflant et aussi du fluide interstitiel et des contraintes auxquelles la bentonite est soumise. Touret *et al.* (1990) ont décrit l'existence de trois types d'espaces liés à l'organisation de la phase solide dans des argiles (Figure 1.8) :

(i) *L'espace interfoliaire* sépare deux feuillets dans un empilement. Il est généralement occupé par les couches d'eau adsorbée (1 à 4) et des cations échangeables, et son épaisseur moyenne est comprise entre 1,5 et 2,5 nm.

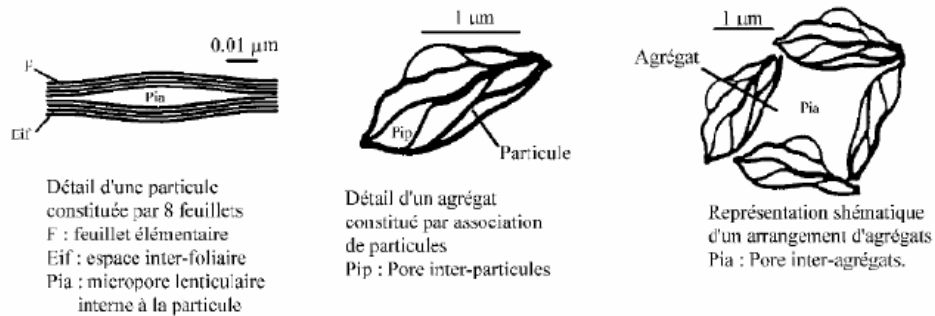


Fig. 1.8 : Les différents types d'espaces poreux [Touret *et al.* (1990)]

(ii) *L'espace interparticulaire* séparant les particules argileuses qui forment les agrégats. Il est susceptible de diminuer jusqu'à atteindre la valeur de l'espace interfoliaire pour les argiles fortement compactées [Pusch (1982)]. Dans ce type d'espace, la double couche, qui sera traitée en détail plus loin, peut se développer. Les micropores lenticulaires sont intérieurs aux particules, à l'échelle de quelques nm. (iii) *L'espace interagrégat* a une section moyenne comprise entre 1,6 et 16 nm où l'eau circule librement (eau libre) limitant les effets électrostatiques de la double couche (fig. 1.8).

## 1.8 Le système bentonite-eau

Les particules de la bentonite présentent une grande affinité pour l'eau qui s'exprime d'une part par la quantité d'eau qu'est susceptible de retenir l'argile et d'autre part par l'énergie avec laquelle cette eau est retenue. Ce phénomène d'ordre capillaire résultant de la granulométrie fine des particules ainsi que de la présence de charges à la surface des feuillets vont contribuer à accentuer les interactions bentonite-eau. Pour comprendre cela, on s'intéresse à l'échelle des particules où les feuillets sont séparés par un nombre variable de couches d'eau (entre 0 et 4) et des pores lenticulaires de l'ordre de 30 à 50 Å [Touret *et al.* (1990)]. Les particules sont plus ou moins épaisses, selon la nature du cation compensateur et les propriétés physico-chimiques de la bentonite. Les particules sont séparées les unes des autres par une quantité d'eau, relativement importante, mais elles ne sont cependant pas

indépendantes. Du fait de la très grande étendue des feuillets dans leur plan et des forces d'attraction interfeuille, il se forme des connections entre particules par rapprochement de deux zones de feuillets extérieurs à deux particules adjacentes, ou par interaction entre feuillets que l'on détaillera par la suite [Luckham et Rossi (1999)]. Comme cela a été expliqué plus haut, les particules ainsi connectées forment des

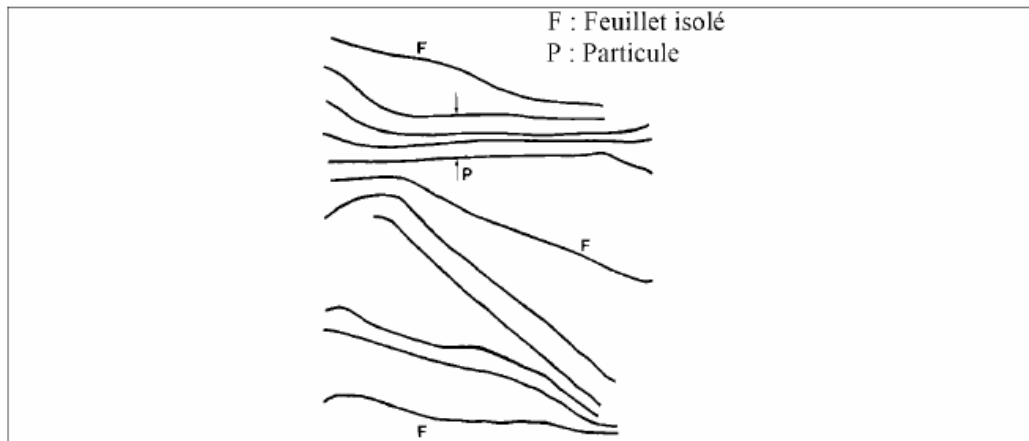


Fig. 1.9 : Représentation schématique de l'état gel [Jozja (2003)]

agrégats ou des super-agrégats suivant la densité des suspensions. Cette organisation est caractéristique de ce qu'on appelle "*milieu granulaire*". Lorsque l'hydratation se poursuit par le gonflement des particules, on désigne l'état de la bentonite hydratée sous le terme de "*gel*". Ces types de gels sont caractérisés par des particules très lâches constituées d'un nombre faible de feuillets (en moyenne 5), voire des feuillets isolés, situés à des distances allant de 30 à quelques centaines d'Å (figure 1.9). L'ensemble forme un réseau très souple, aux propriétés importantes de viscosité et de thixotropie [Glaeser (1953) ; Jozja (2003)].

### 1.8.1 Dispersion des feuillets

En présence d'eau, une bentonite peut former un solide hydraté, un gel et/ou une suspension plus ou moins stable. Cela est possible grâce au caractère gonflant de cette argile. Ce comportement est traité en détail par différents auteurs [Norrish (1954) ; Swartzen-Allen et Matijevic (1974) ; Van Olphen (1977) ; Luckham et Rossi (1999)]. Si on essaye de comprendre le phénomène de gonflement au niveau de l'organisation structurale de la bentonite, on peut distinguer deux échelles différentes : (i) *une dispersion interparticulaire* où

la pénétration des molécules d'eau est localisée entre les particules élémentaires ; (ii) *une hydratation interfeuillet* où la pénétration des molécules d'eau est localisée entre les feuillets qui constituent une particule [Hendricks *et al.* (1940) ; Pons (1980)]. Le phénomène d'hydratation interfeuillet augmente la distance entre les feuillets (distance basale) comme le montre la figure 1.10 [Luckham et Rossi (1999)]. Auparavant, des études par diffraction des rayons X réalisées sur des phyllosilicates hydratés sous pression relative

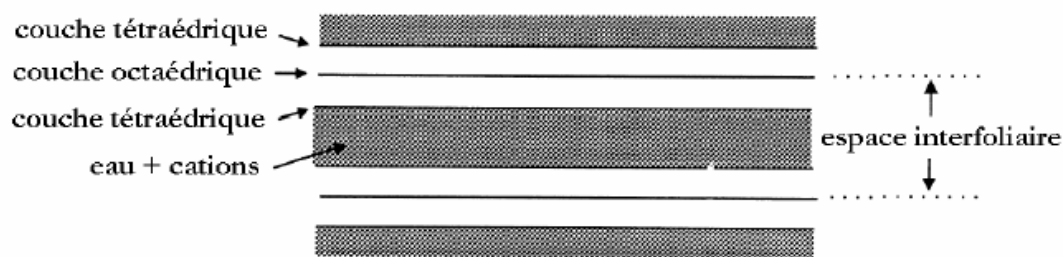


Fig. 1.10 : Représentation de l'espace interfoliaire (distance basale) entre deux feuillets de montmorillonite [Luckham et Rossi (1999)]

contrôlée ont montré que l'eau s'y organise en couches moléculaires planes [Ben Brahim(1985)]. En outre, d'autres auteurs ont étudié la montmorillonite et ont montré l'existence, pour des pressions relatives d'eau croissantes, d'hydrates successifs à 1, 2, 3 et 4 couches d'eau auxquelles correspondent des distances basales de 12,6 ; 15,6 ; 18,6 ; 21,6 Å respectivement [Bradley *et al.* (1937) ; Mering (1949) ; Pons (1980) ; Ben Rhaiem *et al.* (1986), Bérend (1991)]. A ce stade et à des faibles états d'hydratation, entre 1 et 4 couches d'eau interfoliaires, le minerai de montmorillonite reste dans un état qu'on qualifie de solide hydraté [Pons *et al.* (1981) ; Ben Rhaiem *et al.* (1986)]. Lorsque l'insertion de l'eau se poursuit, dans un système de montmorillonite hydratée, au-delà de 4 couches, on parle dans la littérature du processus "de gonflement". Il est principalement dû à la formation, entre feuillets adjacents, de ce qu'on appelle "double couche diffuse" qui sera détaillée plus loin [Norrish (1954) ; Luckham et Rossi (1999)]. Les distances interfoliaires passent brusquement de 21,6 Å (hydrate à 4 couches d'eau) à 30 Å et au-delà, sans que l'on puisse mettre en évidence de distances comprises entre ces deux valeurs [Pons *et al.* (1987) ; Bérend (1991)]. Pour des teneurs en eau plus importantes, on parle plus souvent de dispersion ou de suspension de montmorillonite dans l'eau que de gonflement aqueux de la montmorillonite

[Le Pluart (2002)]. Les propriétés d'hydratation, de gonflement et de dispersion n'existent que parce que l'énergie de cohésion interfoliaire est suffisamment faible pour que les molécules d'eau puissent pénétrer entre les feuillets. Cela a été établi à travers une succession de travaux antérieurs effectués sur les phyllosilicates en général et la montmorillonite en particulier [Hendricks *et al.* (1940) ; Norrish (1954) ; Pons (1980) ; Ben Rhaiem *et al.* (1986) ; Bérend (1991)]. L'aptitude d'un phyllosilicate à s'hydrater se résume donc dans la concurrence entre : (i) l'énergie d'attraction des molécules d'eau qui se traduit par la somme des interactions eau-cations, eau-eau et eau-feuillets et (ii) l'énergie de cohésion interfeuillets qui dépend des cations interfoliaires, de l'origine de la charge du feuillet et du mode d'empilement des feuillets.

Par conséquent, lorsque la cohésion reste élevée, l'hydratation devrait être limitée à quelques couches d'eau. Le cas typique est la montmorillonite-Ca, pour laquelle l'énergie attractive est inférieure à l'énergie cohésive dès l'adsorption de la deuxième couche d'eau. Par contre, dans les systèmes où la cohésion interfeuillets devient très faible devant l'énergie attractive, le nombre de couches d'eau insérées peut devenir très élevé, conduisant, comme dans le cas de la montmorillonite-Na, à la dispersion des feuillets [Pons *et al.* (1981) ; Ben Rhaiem *et al.* (1986)]. Dans la littérature, on trouve une nomenclature bien spécifique à ces deux modes de gonflement qui se distinguent par leur aptitude d'hydratation. Il s'agit des gonflements "cristallin" et "osmotique" [Norrish (1954) ; Didier (1972)] : (i) *Gonflement cristallin* de la montmorillonite ou, également, du gonflement en présence d'eau vapeur. Il permet d'augmenter la distance interfoliaire de 9.6 à 20 Å. Ce gonflement est directement lié au nombre de couches d'eau adsorbées entre les feuillets. Il est intéressant de noter qu'une montmorillonite, même séchée à 105°C, présente généralement une distance interfoliaire d'environ 12 Å, témoignant de la présence d'eau liée entre ses feuillets. L'amplitude du gonflement cristallin est liée à l'énergie d'hydratation des cations compensateurs. Dans le cas d'une montmorillonite-Ca, le phénomène de gonflement est réduit à ce type de mécanisme. [Norrish (1954) ; Ben Rhaiem *et al.* (1986)]. (ii) *Gonflement osmotique*, appelé également gonflement "macroscopique" ou gonflement "libre". Il se produit lorsque l'énergie d'hydratation est suffisante pour franchir la barrière de potentiel due aux forces électrostatiques attractives entre feuillets. Au-delà de la deuxième couche d'eau adsorbée à la surface d'un feuillet, l'eau perd ses propriétés d'eau liée et devient de l'eau libre. Dans le cas de montmorillonite-Na, on parle du gonflement cristallin mais aussi du phénomène de gonflement osmotique. Ce dernier résulte de la formation d'une couche diffuse. L'épaisseur de celle-ci, qui dépend de l'ion considéré et des caractéristiques de la solution, peut atteindre 100



nm. La raison du gonflement osmotique est la différence de concentration entre la solution interne ( $\text{Na}^+$  dans l'espace interfeuillet) et externe, avec une concentration inférieure en  $\text{Na}^+$ . Cause de la fixation électrostatique de  $\text{Na}^+$ , cette différence ne peut être compensée que par une quantité supplémentaire d'eau entrant dans l'espace interfeuillets [Egloffstein (2001) ; Kozaki *et al.* (2005)].

### 1.8.2 Rôle des cations compensateurs

Le gonflement tel que nous venons de le décrire peut être qualifié d'idéal. Il n'est en fait observé que dans des conditions bien précises, dépendant du couple matériau-cation compensateur. Hendricks *et al.* (1940) se sont les premiers intéressés à préciser le rôle des cations échangeables sur le début de l'hydratation. Ultérieurement, des études ont montré l'existence de deux groupes de cations compensateurs [Norrish (1954) ; Pons *et al.* (1981) et (1982) ; Ben Rhaiem *et al.* (1986) ; Touret *et al.* (1990) ; Faisandier *et al.* (1998)] : (i) Les cations qui permettent d'obtenir *la dispersion maximum* pour la montmorillonite mais également pour tous les phyllosilicates présentant des propriétés d'hydratation. Ces cations sont :  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Li}^+$ ,  $\text{K}^+$  et  $\text{Ag}^+$ . (ii) Les cations qui ne permettent qu'une *hydratation limitée* à quelques couches d'eau (2-4 suivant le minéral) :  $\text{Cs}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Ba}^{2+}$ . Norrish (1954) a relié le gonflement des particules argileuses à l'hydratation des cations en classant ces derniers par valeur décroissante de leur énergie d'hydratation réduite. Il obtient le classement suivant :  $\text{Li}^+$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{K}^+$  puis  $\text{Cs}^+$ . Ce classement est bien logique à partir du moment où les cations  $\text{Li}^+$  et  $\text{Na}^+$  permettent d'obtenir une dispersion maximale alors que les cations  $\text{Ca}^{2+}$  et  $\text{Cs}^+$  ne permettent qu'une hydratation limitée. Ce n'est que le  $\text{K}^+$  qui pose un problème, tantôt il se comporte comme  $\text{Na}^+$  et tantôt comme  $\text{Ca}^{2+}$ . Bien après ce travail, Faisandier (1997) montré que le potassium provoque la formation d'un système hétérogène où coexistent, au sein d'une même particule, des feuillets de smectite hydratés et des feuillets collapsés (distance à 10 Å). De plus, d'autres auteurs ont montré que la présence de certains métaux ou cations d'un grand rayon ionique pouvaient diminuer le gonflement interfoliaire [Bereket *et al.* (1997) ; Auboiroux (1998) ; Kozaki *et al.* (1999) ; (1999)].

## 1.9 Interactions dans une suspension aqueuse de bentonite

Pour bien comprendre le comportement de la bentonite en suspension aqueuse ainsi que l'interaction entre les particules argileuses, il est intéressant d'étudier de près les interactions entre les feuillets et les différents paramètres influant la stabilité colloïdale du système

bentonite-eau. Dans la littérature, le terme colloïde désigne tout système dispersé dont les dimensions varient de 1 à 100 nm. L'utilisation de ce terme n'est cependant pas aussi restrictive ; il est appliqué pour des structures plus "grossières" résultant d'assemblages d'éléments colloïdaux comme les suspensions argileuses de bentonite qui peuvent avoir une distribution granulométrique de l'ordre du micron [Bonifas (1998) ; Besq (2000) ; Corvisier (2001)]. La stabilité des dispersions des suspensions colloïdales dépend fortement de la charge électrique existant à l'interface entre la particule et le milieu liquide. Les particules argileuses présentant une charge négative sur leurs surfaces extérieures [Caillère *et al.* (1982)], le scénario "idéal", où les particules argileuses sont dispersées dans l'eau, semble évident. Dans ce cas, les particules se repoussent entre elles à cause des forces électrostatiques. Elles n'ont donc aucune tendance à s'agglomérer et, par conséquent, la suspension demeure stable. Cependant, la réalité est beaucoup plus complexe, le caractère stable ou instable des suspensions aqueuses de bentonite étant lié à la nature des cations compensateurs et aux dimensions et interactions entre les "doubles couches électriques" existant autour de chaque particule. Dans la littérature, la stabilité colloïdale des particules chargées se résume, en grande partie, à l'étude de la distribution des charges électriques sur les surfaces des particules argileuses hydratées (la double couche électrique) et à l'étude des différentes conditions de stabilité ou d'agrégation à travers la combinaison entre toutes les forces d'attraction et de répulsion dans le système (la théorie DLVO) [Luckham et Rossi (1999)]. Ces modèles (double couche électrique et la théorie DLVO) sont nécessaires à la compréhension des interactions entre feuillets qui vont permettre, à leur tour, la compréhension de la rhéologie des suspensions aqueuses de bentonite.

### **1.9.1 Double couche électrique**

Les premières études sur la distribution de charges et le potentiel de l'interface solide/liquide ont été menées par Gouy (1910) et Chapman (1913). Ce modèle a été amélioré significativement par Stern (1924) et Grahame (1947). Ils considèrent que les ions ne sont plus des charges ponctuelles et que l'électrolyte n'est plus assimilé à un diélectrique homogène et ils ont introduit le concept d'adsorption des ions à la surface des particules. La théorie de Gouy-Chapman prévoit une décroissance exponentielle du potentiel électrique  $\Psi$  en fonction de la distance  $x$  (fig. 1.9) suivant l'équation 1.1 :

$$\Psi = \Psi_0 \exp(-\kappa x)$$

Avec :  $\Psi_0$ , le potentiel à la surface et  $\kappa^{-1}$  l'épaisseur de la double couche où :

$$\frac{1}{\kappa} = \sqrt{\frac{\varepsilon_0}{F^2 \sum_{i=n} c_i z_i^2} RT}$$

F constante de Faraday,  $c_i$  la concentration en électrolyse,  $z_i$  la valence des ions,  $\varepsilon_0$  la constante diélectrique du milieu,  $R$  la constante des gaz [1 atm/mol K] et  $T$  la température absolue [K].

On note que l'expression (1.1) est valable uniquement pour une certaine distance de la surface chargée. Dans ce cas, le potentiel est relativement faible et diminue exponentiellement. On remarque, à partir de l'expression (1.2), que l'épaisseur de la couche électrique est régie principalement par la concentration en électrolyte de la solution et par la valence des ions présents. Plus la force ionique est élevée, plus la double couche sera comprimée. Ce phénomène est schématisé sur la Figure 1.11 [Luckham et Rossi (1999)].

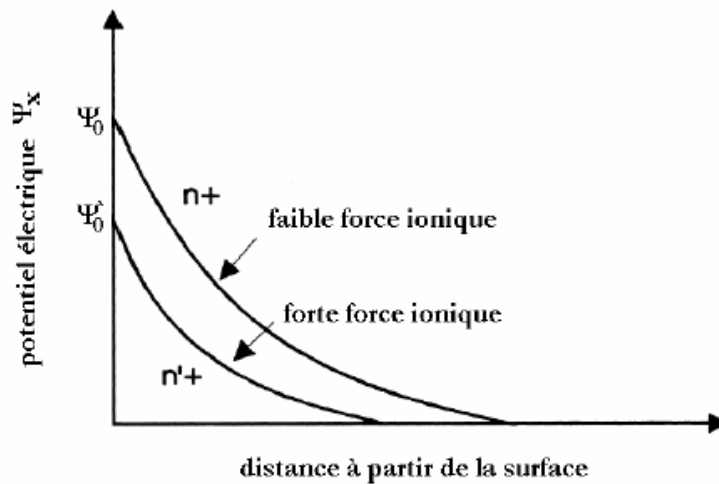


Fig. 1.11 : Représentation schématique de la chute du potentiel de surface et de la contraction de la double couche électrique, dues à une augmentation de la force ionique [Luckham et Rossi (1999)].

Les études qui ont succédé les travaux de Stern (1924) et Grahame (1947) n'ont que peu modifié la modélisation de la couche électronique. La figure 1.12 représente une schématisation de la structure multicouche de l'interface eau-argile. Il s'agit d'une reproduction du diagramme proposé par Li *et al.* (2003) que nous avons modifié en tenant compte de la description proposée par Güven et Pollastro (1992). C'est une représentation de synthèse de la double couche électronique décrite en terme de plans de molécules d'eau et de contre-ions. On remarque sur la même figure (fig. 1.12) que la présence des charges négatives

à la surface d'une particule argileuse affecte la distribution ionique dans la région interfaciale entre la particule et l'eau. Il en résulte une augmentation de la concentration en contre-ions près de la surface ainsi que l'apparition d'une double couche électrique autour de chaque particule. La couche de liquide qui entoure la particule peut donc être modélisée sous la forme de deux couches : (i) La première couche correspond à la région la plus proche de la surface et comporte des ions solidement liés à cette dernière. Cette couche de cations immobiles liés à la surface est appelée couche de Stern. (ii) La seconde est plus mobile et présente une distribution ionique déterminée par les forces électriques mais aussi par les mouvements thermiques aléatoires (couche diffuse) [Güven et Pollastro (1992) ; Luckham et Rossi (1999)]. La limite entre la couche de Stern et la couche diffuse est appelée plan externe de Helmholtz. Le plan qui suit est le plan de cisaillement ou encore plan de glissement [Güven et Pollastro

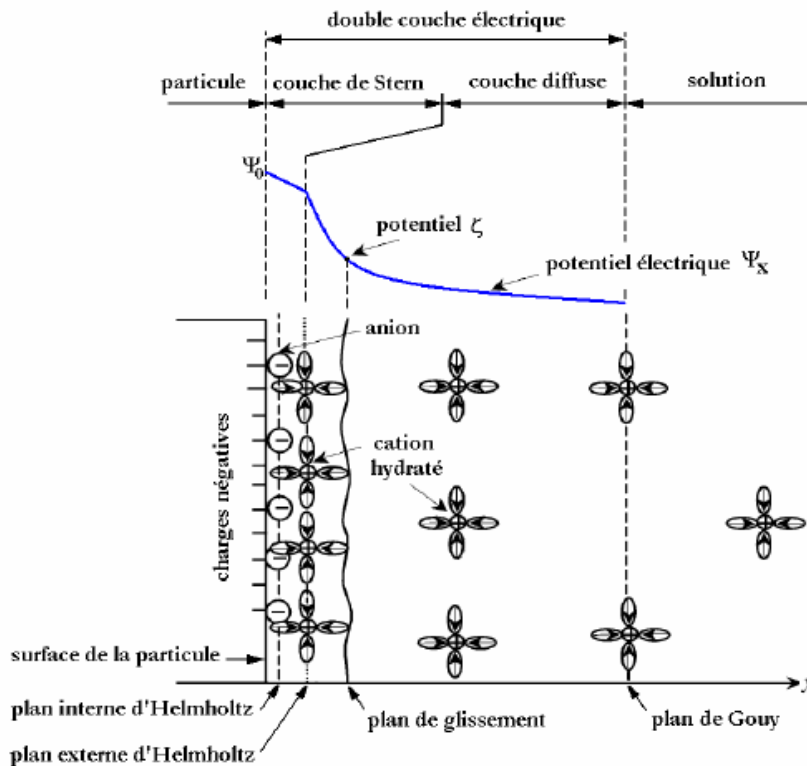


Fig. 1.12 : Sémantisation de la structure multicouches de l'interface eau-argile. La double couche électrique et l'évolution du potentiel électrique en fonction de la distance à la particule [suivant Güven et Pollastro (1992) et Li *et al.* (2003)].

1992) ; Besq (2000)]. L'ensemble de la couche de Stern et la couche diffuse constitue la double couche électrique de la particule en suspension. La concentration en ions positifs est donc importante au voisinage de la surface et décroît progressivement lorsqu'on s'éloigne de la particule. Au voisinage de la surface, il y a également un déficit en anions, repoussés de la

surface par les forces électrostatiques. Cette différence de concentration entre anions et cations va créer un potentiel électrique. Nous avons représenté schématiquement l'évolution de la concentration en ions, et celle du potentiel électrique ( $\Psi_0$ ), en fonction de la distance à la surface de la particule sur la figure 1.10 [Güven et Pollastro (1992) ; Li *et al.* (2003)]. Le potentiel électrique vaut  $\Psi_0$  à la surface de la particule et décroît linéairement dans la couche de Stern. La valeur du potentiel au plan de glissement est appelée "potentiel  $\xi$ " (potentiel Zêta). C'est la seule valeur accessible expérimentalement (zêtamètre). Dans la pratique, on confond souvent le potentiel  $\xi$  (localisé au niveau du plan de glissement) avec le potentiel de Stern ( $\Psi_0$ ) qu'on localise au plan externe de Helmholtz (figure 1.10) [Grahame (1947) ; Luckham et Rossi (1999) ; Le Pluart (2002)]. Au-delà du plan de Helmholtz, le potentiel électrique décroît exponentiellement selon la théorie de Gouy (1910)-Chapman (1913). A une distance infinie du feuillet, le potentiel électrique peut s'annuler pour que l'électroneutralité soit respectée dans la solution. Du point de vue pratique, c'est au potentiel zêta qu'on s'intéresse le plus (coulomb/m<sup>2</sup>). À l'inverse d'autres caractéristiques physiques (forme, taille, surface spécifique) ou chimiques (formule, ...), le potentiel zêta n'est pas figé. Il présente la particularité de varier en fonction de l'environnement de la particule. Dans la littérature [Luckham et Rossi (1999)], ce potentiel électrique est lié au plan de glissement (fig. 1.10). Lorsque la particule bouge dans le milieu (sous l'influence d'un flux provoqué ou du mouvement Brownien), on considère que la structure de la couche de Stern restera stable. C'est au niveau du plan de glissement que les particules interagissent réellement entre elles et c'est à ce niveau que l'on mesure le potentiel zêta. En fait, la littérature contient des articles très divergents concernant la position du plan de glissement (plan du potentiel zêta) dans la couche diffuse du colloïde. Le point de vue général est que la position du potentiel zêta est limitée dans la double couche diffuse et est très près du plan externe de Helmholtz (appelé aussi plan de Stern) [Besq (2000)]. Récemment, Li *et al.* (2003) ont mis en cause cette définition en se basant toujours sur la théorie de Gouy-Chapman mais également sur des résultats expérimentaux de la littérature. D'après ces auteurs, la position réelle du potentiel zêta est limitée dans la couche diffuse sur le plan de Gouy.

## **1.9.2 L'Adsorption**

L'adsorption est un phénomène physico-chimique interfacial et réversible provoquant l'accumulation des molécules de soluté dans l'interface solide-liquide (ou solide-gaz). Très souvent l'adsorption de molécules organiques par les sols est caractérisée au laboratoire à l'aide de la technique appelée en "batch" qui consiste à agiter des suspensions d'adsorbants dans des solutions aqueuses contenant l'adsorbât dans des récipients fermés jusqu'à atteindre l'équilibre d'adsorption. Les quantités adsorbées sont classiquement calculées par la différence des concentrations entre la solution initiale et celle à l'équilibre [Robert, 1989]. Cette technique permet de mesurer une disparition des molécules de la phase liquide, mais elle ne permet pas d'identifier les phénomènes mis en jeu. L'adsorption est certainement impliquée, mais on ne peut pas écarter les autres phénomènes de rétention

### **1.9.2.1 Types d'adsorption**

Une distinction entre deux catégories de forces attractives doit cependant être faite, ce qui permet de définir deux types d'adsorption :

#### **a) L'adsorption physique**

L'adsorption physique est un phénomène réversible qui résulte de l'attraction entre les molécules d'adsorbant composant la surface du solide et les molécules du soluté de la phase fluide, ces forces attractives sont de nature physique, comprenant les forces dites de Van der Waals ne détruisant pas l'individualité des molécules et lorsqu'elles opèrent, correspondent à des énergies faibles qui sont de l'ordre de quelques Kilocalories par mole. Ce phénomène consiste essentiellement dans la condensation de molécules sur la surface du solide et il est favorisé en conséquence par un abaissement de la température.

#### **b) L'adsorption chimique**

Elle résulte d'une interaction chimique entre les molécules d'adsorbant composant la surface du solide et les molécules de soluté. Ces forces attractives de nature chimique provoquent un transfert ou mise en commun d'électrons et en conséquence, destruction de l'individualité des molécules et formation d'un composé chimique à la surface de l'adsorbant. Ce type d'adsorption se développe à haute température et met en jeu une énergie de transformation élevée.

A titre d'exemple, nous donnons les enthalpies de transformation accompagnant la condensation d'azote sur du fer divisé [Slejko, Dekker, 1985]:

|                         |  |
|-------------------------|--|
| - Liquéfaction normale. | $\Delta H = -1361 \text{ Kcal / Kmole}$  |
| - Adsorption physique   | $\Delta H = -2000 \text{ Kcal / Kmole}$  |
| - Adsorption chimique   | $\Delta H = -35000 \text{ Kcal / Kmole}$ |

### 1.9.2.2 Les modèles d'adsorption

D'assez nombreux auteurs ont proposés des modèles, théoriques ou empiriques, pour décrire la relation entre la masse d'adsorbat fixée à l'équilibre et la concentration sous laquelle elle a lieu [Slejko, Dekker, et Rorrer, Hsein, 1992]. Il s'agit de relations non cinétiques, que l'on nomme *isothermes*.

Soit :

- x masse adsorbée en mg/l ( à l'équilibre ) ;
- m masse d'adsorbant (g) ;
- x/m concentration dans la phase solide (mg/g) ;
- c concentration dans la phase liquide en mg/l ( à l'équilibre ).

En pratique, on observe qu'une masse d'adsorbant ne peut fixer une quantité illimitée de substance : elle se sature. Ce phénomène de saturation n'est pas expliqué par toutes les formules, dont nous n'exposerons que les plus communes.

#### a) Isotherme de Langmuir

L'isotherme de Langmuir est donnée par la relation suivante [Robert, 1989 et Weber, Mc Ginley, Ktz, 1991]

$$\frac{x}{m} = \frac{ac}{1 + bc}$$

C'est un modèle conceptuel: on suppose que les molécules adsorbées forment une monocouche et occupent une portion  $\alpha S$  de la surface totale S.

La théorie de Langmuir implique en fait :

- L'existence de sites définis d'adsorption ;
- Chacun de ses sites peut adsorber une seule molécule ; par conséquent, une seule couche de molécules peut être absorbée par le charbon activé;
- Chacun de ses sites a la même affinité pour les impuretés en solution (Une énergie d'adsorption constante);
- L'activité à un site donné n'affecte pas l'activité aux sites adjacents (l'absence d'interaction entre molécules absorbées).

La portion restée libre vaut  $(1-\alpha)S$ . La vitesse d'adsorption sera proportionnelle à la concentration  $c$  et à la surface libre  $(1-\alpha)S$ . D'autre part, la vitesse de désorption sera proportionnelle à la surface occupée  $\alpha S$ .

A l'équilibre on a, puisque  $x/m$  est proportionnel à  $\alpha$  :

$$Kc(1-\alpha)S = K'\alpha S$$

D'où on tire

$$\alpha = \frac{Kc}{K' + Kc} \quad \text{et enfin} \quad \frac{x}{m} = \frac{ac}{1+bc}$$

Ce modèle est compatible avec la saturation. Son point faible est de supposer une monocouche, ce qui n'est pas toujours vrai. L'équation est linéarisable par  $1/c$  vs  $m/x$ . On voit que si  $c \rightarrow \infty$ , alors  $m/x \rightarrow b/a$  : c'est la saturation. Donc on peut l'écrire sous sa forme linéaire :

$$\frac{m}{x} = \frac{1}{b} + \frac{1}{abC}$$

On a compilé de nombreuses isothermes de *Langmuir* et constaté qu'ils présentaient 4 types, qui ont été reliés assez précisément à divers modes de fixation (figure 1.13).

### **Type S**

Indique une adsorption *verticale* de molécules monofonctionnelles polaires, sur un adsorbant polaire et dans un solvant polaire (ex : phénol sur alumine).

### **Type L**

*Langmuir normal*, indique l'adsorption à plat de molécules bifonctionnelles

### **Type H**

Ne commence pas à zéro mais à une valeur positive, indique une *haute affinité*, souvent observé pour des solutés absorbés sous forme de micelles. Signifie qu'aux faibles concentrations l'adsorption est totale.

### **Type C**

Ligne droite. Signifie qu'il y a compétition entre le solvant et le soluté pour occuper les sites, avec toujours le même partage (*partage constant*). Concerne des molécules *flexibles* pouvant pénétrer loin dans les pores pour y déplacer le solvant.



Seul l'isotherme de Langmuir a pu être généralisé au cas d'une adsorption compétitive dans des systèmes à plusieurs solutés.

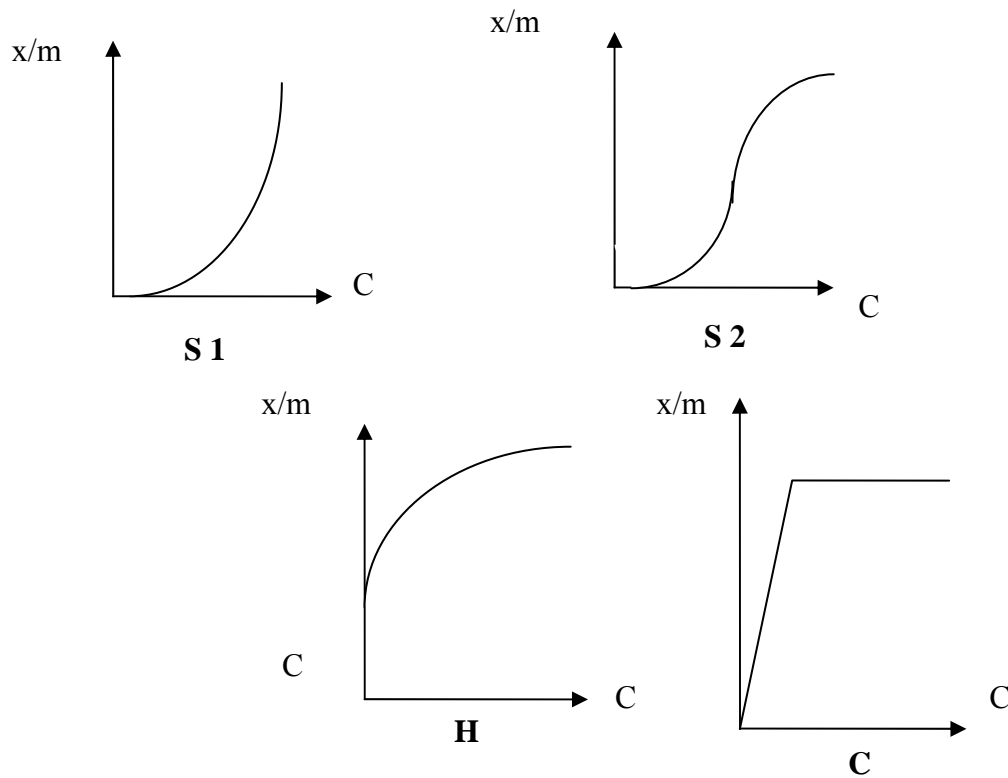


Figure.1.13 Typologie des isothermes

### b) Isotherme de Freundlich

L'isotherme de Freundlich [Slejko, Dekker, 1985 ; Weber, Mc Ginley, Ktz, 1991 et Yu and al, 2000], présentée en 1926, repose sur l'équation empirique suivante :

$$\frac{x}{m} = K \cdot C^{\frac{1}{n}}$$

Où K et n sont des constantes qu'il faut évaluer pour chaque solution et pour chaque température.

Ce modèle est très valable pour les solutions diluées, mais il est incompatible avec la saturation, car x croît sans limite si c croît. Il est linéarisable en coordonnées logarithmique sous la forme suivante :

$$\log \frac{x}{m} = \log K + \frac{1}{n} \log C$$

### 1.9.3 La théorie DLVO

Les forces d'attraction, de répulsion et de friction interparticulaires en milieu aqueux sont les composantes de base du comportement mécanique, macroscopique, des suspensions colloïdales. Nous reprenons ici l'inventaire réalisé par Güven et Pollastro (1992) et résumé par Besq (2000) et Leyama (2001) dans le cadre de la compréhension des différents types d'interactions entre les feuillets de smectites :

*i) Mouvement Brownien et diffusion* : Ce type de force est caractérisé par l'ensemble des mouvements aléatoires qui tendent à éloigner de leur position initiale les particules solides en suspension dans un fluide. Ce phénomène est issu de l'agitation thermique des molécules du fluide qui entrent en collision avec les particules solides.

*ii) Forces de répulsion de Born* : Elles proviennent lorsque les particules sont séparées par de courtes distances (0.1 nm). Elles résultent de l'impossibilité de recouvrement des nuages électroniques et ont pour rôle d'empêcher un contact trop étroit entre les particules et, de ce fait, génèrent un potentiel d'interaction assez important.

*iii) Forces de Van der Waals* : Ces forces d'attraction résultent des fluctuations thermodynamiques du champ électromagnétique à l'intérieur et autour des particules. Elles sont liées aux interactions entre dipôles fluctuants. Même les atomes ou les molécules non polaires possèdent un dipôle instantané créé par le mouvement des électrons. Ce dipôle génère un champ électrique qui polarise n'importe quel atome environnant devenant alors un dipôle induit. L'interaction entre ces deux dipôles crée une force attractive instantanée dont la moyenne temporelle n'est pas nulle. La portée de ce type de force est relativement grande (~10nm).

*iv) Forces osmotiques (répulsion de la double couche)* : Ce sont les forces de répulsion provenant du rapprochement de deux surfaces chargées de même signe (leur double couche est de même signe également). Les principaux paramètres de cette force sont le potentiel de surface ( $\Psi_0$ ), la concentration en électrolyte et la valence des ions. L'énergie répulsive définie par ces paramètres conduit à une barrière d'énergie limitant l'agrégation des particules.

*v) Forces de solvation et d'interactions stériques* : Puisque les modèles classiques utilisés pour décrire les forces de Van der Waals et les forces osmotiques ne tiennent pas compte de la taille des molécules du solvant et donc, de la nature discrète du milieu de séparation des particules aux courtes distances, le solvant (l'eau) ne peut être considéré simplement comme

une phase continue. Par sa structure spécifique et ses propriétés, l'eau interagit spécifiquement avec la surface et les ions (effet stériques et physicochimiques) [Güven et Pollastro (1992)]. Il s'agit de particules argileuses ayant adsorbé des polymères. La courbe force-distance entre deux particules résulte de la combinaison de toutes les forces précitées. Elle permet de connaître les conditions de stabilité ou d'agrégation irréversible. Une analyse théorique des interactions entre particules colloïdales a été développée par Derjaguin et Landau (1941) et Verwey et Overbeek (1948). Le modèle développé ("DLVO" comme initiales des noms des auteurs) décrit les interactions entre colloïdes comme une compétition des forces répulsives développées par les doubles couches électriques et les forces attractives de Van der Waals. Il permet de rendre compte quantitativement de la stabilité d'un grand nombre de systèmes colloïdaux dont les systèmes eau-bentonite. Nous avons reproduit sur la figure 1.13 une représentation typique de l'énergie potentielle totale d'interaction en fonction de la distance entre particules [Luckham et Rossi (1999)]. Le potentiel répulsif ( $V_R$ ) est créé par les interactions entre les doubles couches électriques de deux particules s'approchant l'une de l'autre.

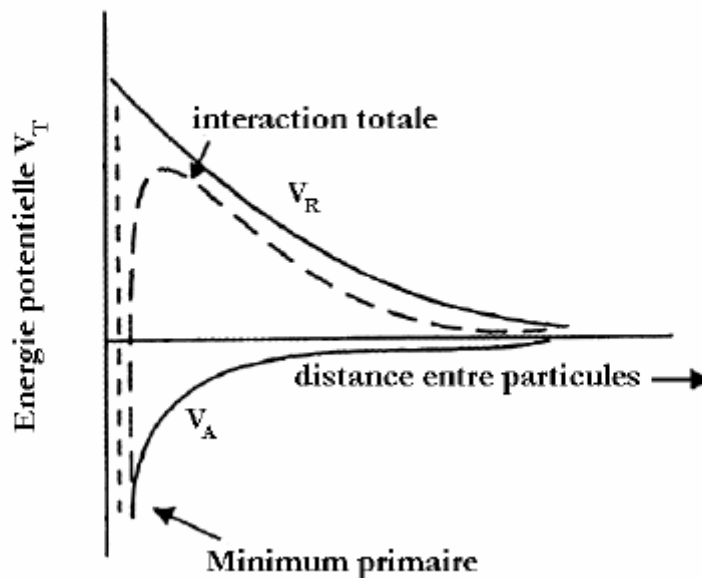


Fig. 1.14 : Energie d'interaction totale en fonction de la distance interparticulaire [Luckham et Rossi (1999)].

Suivant la théorie de la double couche diffuse, le potentiel répulsif  $V_R$  décroît exponentiellement lorsqu'on augmente la distance entre particules suivant la relation [Luckham et Rossi (1999)] :

$$V_R = \frac{64\rho k_B T}{\chi} \left( \tanh \frac{ze\Psi_S}{4k_B T} \right) e^{-\kappa H}$$

$$\kappa = \sqrt{\frac{2e^2 \rho z^2}{\varepsilon_0 k_B T}}$$

où  $\rho$  est la densité de contre-ions,  $k_B$  la constante de Boltzman,  $T$  la température absolue,  $\Psi_0$  le potentiel de Stern,  $H$  la distance entre les centres des deux particules,  $e$  la charge de l'électron et  $\chi$  la longueur réciproque de Debye.

On note que cette théorie considère que les particules ne sont pas hydratées et qu'il n'y a donc pas de force répulsive additionnelle quand deux particules s'approchent en milieu aqueux. Il semble cependant que pour des montmorillonites sodiques par exemple, l'expression de l'interaction totale entre les feuillets doit prendre en compte une force de répulsion à faible distance due aux cations hydratés partiellement liés et une force répulsive à plus grande distance due aux ions hydratés de la double couche [Keren *et al.* (1988)]. Le deuxième potentiel est attractif ( $V_A$ ). Il est dû aux forces de Van der Waals. Dans les systèmes colloïdaux, les forces de dispersion de London (forces attractives dues à des dipôles instantanés que créent les fluctuations des nuages électroniques des atomes) représentent la quasi-totalité des forces attractives de Van der Waals [Luckham et Rossi (1999)] :

$$V_A = \frac{A}{12\pi} \left( \frac{1}{H^2} + \frac{1}{(H+2t)^2} - \frac{1}{(H+t)^2} \right)$$

Où  $A$  est la constante de Hamaker qui dépend de la nature du matériaux des particules,  $H$  la distance entre les surfaces et  $t$  l'épaisseur du feuillet d'argile. La somme des potentiels attractifs ( $V_A$ ) et répulsifs ( $V_R$ ) est donnée par l'équation suivante :

$$V_T = V_B + V_A \quad (1.6)$$

Le potentiel total  $V_T$  peut avoir différents profils en fonction de la concentration en électrolyte et de la température de la suspension. Ces deux paramètres vont conditionner la stabilité de la suspension et son mode de floculation ou de coagulation. L'évolution du potentiel d'interaction en fonction de la distance interparticulaire pour trois cas typiques est

schématisée sur la figure 1.14 [Yang *et al.* (1997) ; Luckham et Rossi (1999)]. Sur cette figure,  $a$  représente le rayon d'une particule et  $r$  la distance au centre de la particule. On a représenté les trois paramètres qui permettent de définir la stabilité de la suspension. Ces paramètres sont :

$\Psi_{\max}$  potentiel primaire maximum,  $\Psi_{\min}$  potentiel primaire minimum et  $\Psi_{\text{sec}}$  potentiel secondaire minimum. La hauteur de la barrière énergétique ( $\Psi_{\max} - \Psi_{\text{min}}$ ) détermine la stabilité de la suspension. Sur la Figure 1.14, on distingue trois cas de stabilités suivant l'intensité des forces ioniques : (i) *Pour de faibles forces ioniques* (cas A) et pour un potentiel de surface élevé, le potentiel répulsif est supérieur au potentiel attractif. Les particules se repoussent mutuellement et la suspension est dans un état de dispersion stable. Plus le maximum primaire  $\Psi_{\max}$  est élevé, plus la suspension est stable. (ii) *Pour des forces ioniques modérées* (cas B), la courbe présente un maximum primaire  $\Psi_{\max}$  et un minimum secondaire  $\Psi_{\text{sec}}$ . Lorsque les particules sont localisées dans ce minimum secondaire, elles sont en équilibre et sont floclées. L'état de flocculation est réversible lorsque le minimum secondaire n'est pas très profond :  $(-\Psi_{\text{sec}} / k_B T) \sim 1$ . Par contre, si  $(-\Psi_{\text{sec}} / k_B T) > 20$ , le minimum secondaire est beaucoup plus profond et la suspension est fortement floclée. (iii) *Pour des forces ioniques élevées* (cas C), La courbe ne présente plus de maximum. Les particules floclent très rapidement et de façon irréversible. La distance entre particules correspond alors au minimum primaire  $\Psi_{\min}$ . La suspension est dans un état de coagulation.

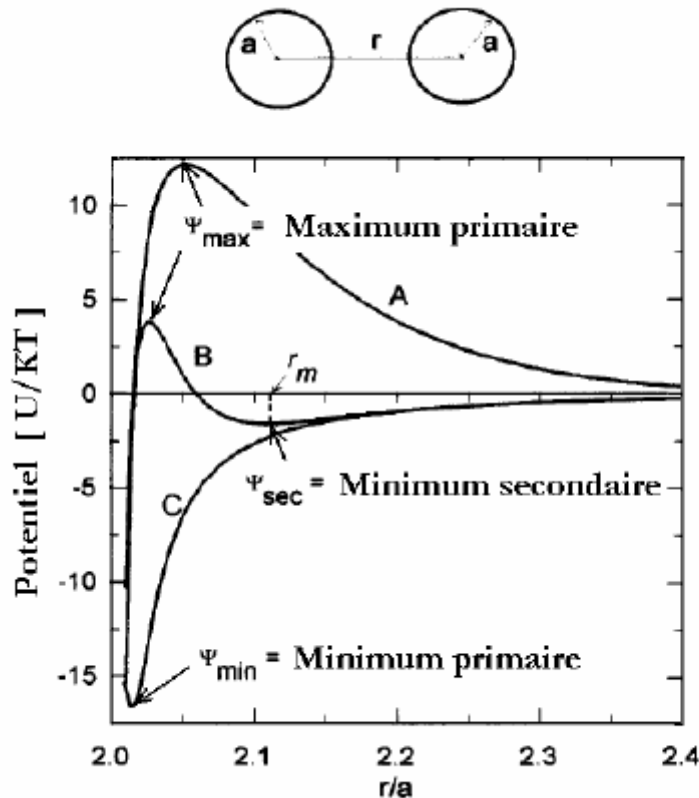


Fig. 1.15: Schématisation de l'évolution du potentiel d'interaction en fonction de la distance interparticulaire pour des dispersions : stable (A), floculé (B) et coagulé (C) [Yang *et al.* (1997)].

#### 1.9.4 Types d'associations des particules

Après avoir détaillé les paramètres gérant l'état des particules de bentonite en milieu aqueux en tant que colloïdes, nous allons maintenant détailler les modes d'associations adoptés par ces particules argileuses dans les états d'agrégation et de floculation. A la différence d'autres particules en suspension qui adoptent soit un état aggloméré soit un état dispersé, les particules de bentonite présentent un comportement plus complexe et aucune théorie reliant les interactions inter-particulaires à la structure de la suspension ne fait l'unanimité [Le Pluart (2002)]. Dans la littérature, on considère deux paramètres décisifs pour définir le type et la force d'association et, par conséquent, la formation du gel. Ces paramètres sont la concentration des particules argileuses et la salinité du milieu [Luckham et Rossi (1999)]. En terme de concentration d'argile et lorsque cette dernière est faible (suspension très diluée), les particules de bentonite ne se présentent pas associées. Cet état stable est expliqué par l'absence d'interaction entre les particules car les doubles couches électroniques des feuillets se repoussent mutuellement. La dispersion stable, correspondant à un minimum d'énergie

libre, se présente sous forme de feuillets individuels ou de très fines particules primaires [Callaghan et Ottewill (1974)]. Pour de plus fortes concentrations en argile, trois différentes formes

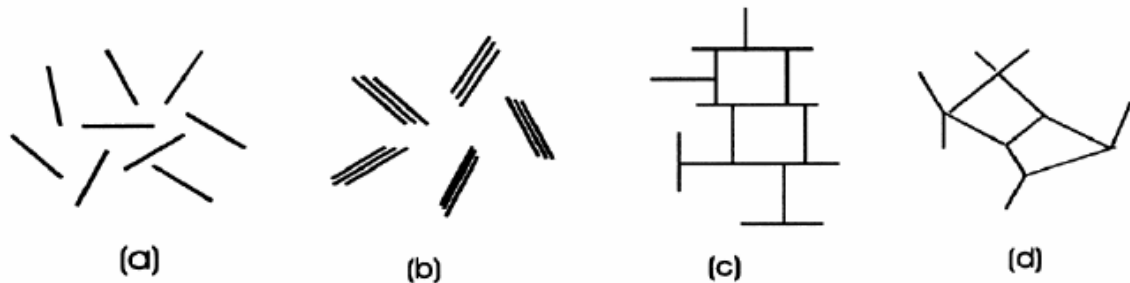


Fig. 1.16 : Modes d'associations supposés des feuillets de montmorillonite en suspension : (a) dispersion, (b) agrégation face-face, (c) association bord-face, (d) association bord-bord [d'après Van Olphen (1964)]

d'association des particules peuvent prendre place lors de la floculation de la suspension. Ces différents modes d'organisation ont été décrits par Van Olphen (1964). Ils sont reproduits schématiquement sur la figure 1.15. Pour avoir un ordre de grandeur en terme de concentration où une suspension de bentonite peut former un gel, on cite le travail de Darley et Gray (1988). Ces auteurs ont montré qu'à des concentrations de montmorillonite sodique supérieures à 3%, la floculation des feuillets et des particules primaires peut entraîner la formation d'un gel tridimensionnel. De nombreux auteurs se sont intéressés à ce phénomène. Ils ont essayé de mettre en évidence expérimentalement, et de comprendre à travers la théorie de DLVO, la nature des interactions entre particules et la structure de la suspension lors du gel. Cependant, aucune théorie ne semble encore unanimement acceptée [Le Pluart (2002)]. Sur la figure 1.15, Van Olphen (1964) a distingué quatre différents modes d'association de particules argileuses :

a) *Etat dispersé* : c'est le cas d'une argile très diluée.

b) *Organisation face à face* : Elle est due aux interactions des doubles couches électriques de deux feuillets. Elle peut entraîner l'agrégation des feuillets lorsque les deux doubles couches coalescent et que les feuillets ne sont plus séparés que par une couche médiane de cations positifs. Ce type d'association peut conduire à l'obtention d'agrégats de feuillets parallèles distants de moins de 20 Angströms [Mering (1946)]. Dans ce cas, les unités structurales

pouvant s'associer pour former un gel sont moins nombreuses du fait que la surface d'interaction entre l'argile et la solution diminue [Luckham et Rossi (1999)].

*c) et d) Organisations bord-face et bord-bord* : Les bords des feuillets de montmorillonite sont des liaisons rompues de silice et d'alumine. Ils présentent un caractère amphotère, c'est à dire que selon le pH de la solution, ils peuvent être chargés positivement ou négativement. Sous certaines conditions de pH, les bords des feuillets et les faces présentent des polarités opposées et développent des forces électrostatiques attractives. Elles permettraient la construction d'organisations de type "château de cartes". Cette organisation permet de piéger beaucoup plus d'eau que l'agrégation face-face et conduit à une structure continue similaire à un gel [Van Olphen (1977) ; Luckham et Rossi (1999)]. Dans la littérature, l'organisation en "château de cartes", avancée pour expliquer le gel des suspensions de smectites, ne fait pas l'unanimité [Luckham et Rossi (1999)]. D'autres théories sur les modes d'association des particules conduisant au gel ont été développées. La théorie du château de cartes présente deux principales limites, liées à l'existence controversée des interactions bords-face. La première de ces limites est la faible probabilité de la prédominance d'une interaction bord-face sur la répulsion face-face étant donné la faible surface des bords par rapport aux faces dans le cas de la montmorillonite [Callaghan et Ottewill (1974)]. L'autre limite de cette théorie est liée au fait qu'elle décrit le gel à des valeurs élevées de pH, valeurs pour lesquelles les charges portées par les bords et les faces des feuillets sont négatives. Pour expliquer la structure conduisant au gel sans se baser sur le modèle château de carte, Callaghan et Ottewill (1974) attribuent la formation du gel à des interactions répulsives à grandes distances entre les doubles couches électriques. Ces propos ont été renforcés par le travail de Rand *et al.* (1980) qui n'ont pas observé les associations bord-face pour des gels formés de montmorillonite à des valeurs de pH supérieures à 4, ce qui écarte l'hypothèse d'association en château de carte. Par contre, ces auteurs ne remettent pas en question l'existence des interactions bord-bord. Selon Norrish (1954), ces bords de feuillets sont des zones qui présentent un potentiel électrostatique minimal, ce qui favorise la floculation. M'Ewen et Pratt (1957) utilisent cette explication pour proposer une structure en trois dimensions où les feuillets sont liés par les bords et où les faces se repoussent. Cette structure, présentée sur la Figure 1.16.a permet, selon ces auteurs, de retenir une grande quantité d'eau (à base d'interactions bord-bord) et de valider les résultats expérimentaux observés en gonflement. A côté de cela, d'autres auteurs, tels Vali et Bachmann (1988) défendent le modèle de bandes initialement proposé par Weiss et Frank (1961). A partir d'observations en microscopie électronique et de caractérisations rhéologiques, l'existence d'un réseau



tridimensionnel d'agrégats en forme de feuillets a été mise en évidence. Ces agrégats seraient composés de feuillets agglomérés par des interactions face-face mais avec un recouvrement partiel de leurs surfaces respectives. La flexibilité des feuillets permet dans ce cas d'obtenir un réseau



Fig. 1.17. Représentation schématique a) de l'organisation proposée par M'Ewen et Pratt (1957) ; b) en deux dimensions du "modèle de bandes" proposé par Weiss et Frank (1961).

tridimensionnel. Ce type d'organisation est représenté schématiquement sur la figure 1.17.b. En même temps, Brandenburg et Lagaly (1988) ont confirmé la probabilité de l'existence d'une telle structure pour des pH alcalins, mais ils n'ont pas remis en cause l'existence de la structure en château de cartes pour des valeurs de pH acides. Keren *et al.* (1988) proposent encore une autre structure basée sur des interactions face-face pour représenter les gels à des pH qui ne permettant pas les interactions bord-face. Tout comme dans le modèle de bandes, la flexibilité des feuillets y joue un rôle important. Au lieu de proposer un recouvrement partiel des feuillets, ils proposent, à partir de l'hétérogénéité de répartition des charges à la surface des feuillets, un modèle postulant l'existence de zones ponctuelles non chargées à la surface du feuillet où les forces de répulsion entre feuillets ne s'exerceraient pas. Keren *et al.* (1988) ont également déterminé les valeurs critiques de floculation de 0,1% de Na-montmorillonite en suspension aqueuse à différentes valeurs de pH. Ils ont trouvé pour 10, 13, 31 et 44 mol/l de NaCl, les valeurs de pH de 5, 7,5, 8,5 et 9,8, respectivement. Les auteurs ont détecté un volume de gel relativement important pour une suspension de Na-montmorillonite diluée (0,1%) à un pH~9,8. D'après ces auteurs, cela indique l'existence d'une structure tridimensionnelle ouverte, où l'association de type face-face est prédominante. Dans ce cas, la capacité pour emprisonner plus d'eau entre les couches de montmorillonite est plus importante que pour des faibles valeurs de pH où les associations bord-bord et bord-face règnent.

Concernant la structuration des suspensions de montmorillonite, De Kretser *et al.* (1998) concluent à une orientation aléatoire des feuillets en association bord-bord lors de la floculation et en association face-face lors de l'agrégation. Selon eux, l'association bord-face ne se produit pas. Pignon *et al.* (1998) ont caractérisé, en combinant différentes techniques d'analyse, la structure de gel de kaolinite à différentes échelles. Ils ont montré l'existence de zones organisées de quelques dizaines de nanomètres qui se combinent pour former des tridimensionnel. Ce type d'organisation est représenté schématiquement sur la figure 1.17.b.

En même temps, Brandenburg et Lagaly (1988) ont confirmé la probabilité de l'existence d'une telle structure pour des pH alcalins, mais ils n'ont pas remis en cause l'existence de la structure en château de cartes pour des valeurs de pH acides. Keren *et al.* (1988) proposent encore une autre structure basée sur des interactions face-face pour représenter les gels à des pH qui ne permettant pas les interactions bord-face. Tout comme dans le modèle de bandes, la flexibilité des feuillets y joue un rôle important. Au lieu de proposer un recouvrement partiel des feuillets, ils proposent, à partir de l'hétérogénéité de répartition des charges à la surface des feuillets, un modèle postulant l'existence de zones ponctuelles non chargées à la surface du feuillet où les forces de répulsion entre feuillets ne s'exerceraient pas. Keren *et al.* (1988) ont également déterminé les valeurs critiques de floculation de 0,1% de Na-montmorillonite en suspension aqueuse à différentes valeurs de pH. Ils ont trouvé pour 10, 13, 31 et 44 mol/l de NaCl, les valeurs de pH de 5, 7,5, 8,5 et 9,8, respectivement. Les auteurs ont détecté un volume de gel relativement important pour une suspension de Na-montmorillonite diluée (0,1%) à un pH~9,8. D'après ces auteurs, cela indique l'existence d'une structure tridimensionnelle ouverte, où l'association de type face-face est prédominante. Dans ce cas, la capacité pour emprisonner plus d'eau entre les couches de montmorillonite est plus importante que pour des faibles valeurs de pH où les associations bord-bord et bord-face règnent.

Concernant la structuration des suspensions de montmorillonite, De Kretser *et al.* (1998) concluent à une orientation aléatoire des feuillets en association bord-bord lors de la floculation et en association face-face lors de l'agrégation. Selon eux, l'association bord-face ne se produit pas. Pignon *et al.* (1998) ont caractérisé, en combinant différentes techniques d'analyse, la structure de gel de kaolinite à différentes échelles. Ils ont montré l'existence de zones organisées de quelques dizaines de nanomètres qui se combinent pour former des

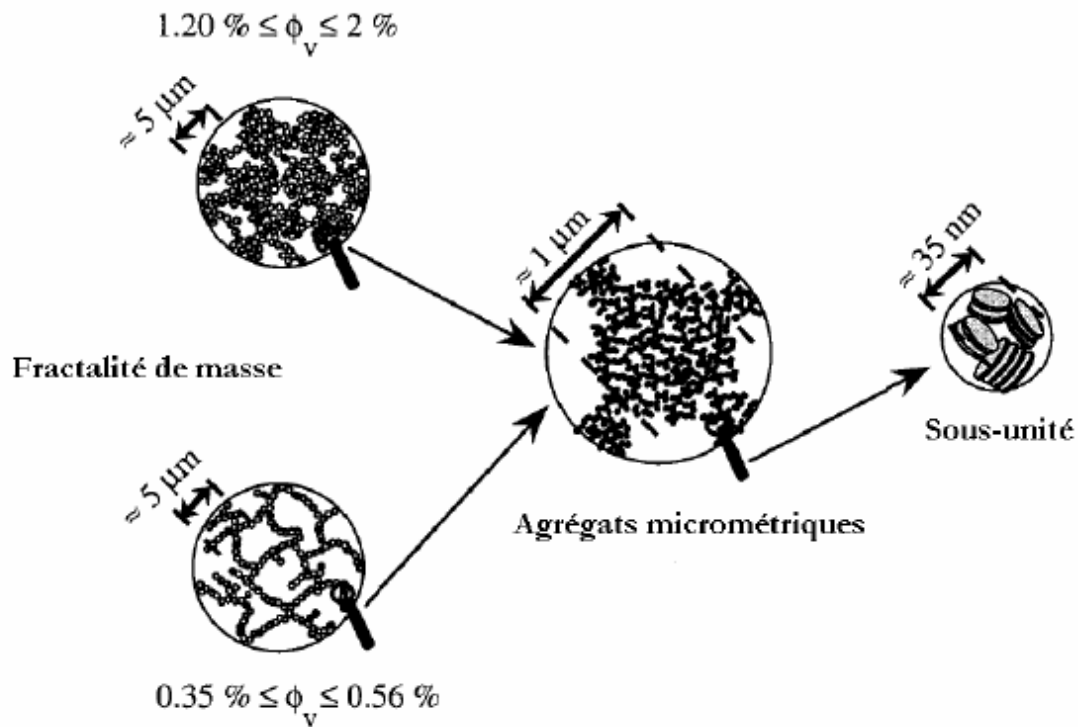


Fig. 1.18 : Représentation schématique multi-échelle de la structure fractale des gels de kaolinite, d'après Pignon *et al.* (1998)

agrégats denses de tailles micrométriques. À plus grande échelle, ces agrégats micrométriques sont liés et forment une structure tri-dimensionnelle continue, qui présente un comportement fractal et qui donne à ces gels leur structure. L'approche fractale de cette structure multi-échelle est représentée schématiquement sur la figure 1.17. Ces auteurs ont montré qu'aux alentours de la transition sol-gel, c'est-à-dire entre un taux volumique de 0,35 et 0,56% pour la kaolinite, le gel adopte une structure fibreuse et, pour des concentrations supérieures, au-dessus de 1,2% en volume, la structure du gel est hétérogène et comporte des zones denses et des zones moins denses en agglomérats. En faisant référence à des travaux récents [Brandenburg et Lagaly (1988); Khandal et Tadros (1988) ; Benna *et al.* (1999) ; Abend et Lagaly (2000) ; Durán *et al.* (2000) ; Ramos-Tejada *et al.* (2001) ; Tombácz et Szekeres (2004)] et pour des pH élevés, on peut adopter l'hypothèse de la formation d'une structure tri-dimensionnelle ouverte, où les liaisons face-face sont favorisées. Comme nous le verrons dans les prochains chapitres, nous avons nous même adopté ce point de vue pour expliquer la structure gel de la bentonite en solution aqueuse puisque le pH de nos suspensions varie autour de 10 [Bekkour *et al.* (2005) ; Benchabane et Bekkour (2006)].





## 2.1 Introduction

Tout un chacun à une idée de ce que représente une « décharge », car toute société a toujours eu besoin, pour se défaire de ses déchets, d'un moyen, d'un lieu, faisant office de « dépotoir ». Les plus initiés savent que les vieilles habitudes de jeter les ordures, et plus généralement tous les déchets, sans précaution, dans le premier trou venu, ont bien changé au cours des dernières décennies. Durant cette période, le domaine des décharges s'est modernisé par l'application des principes de précaution et de prévention pour protéger l'environnement. Il est devenu technique, économique, et continue pourtant de faire l'objet de « passions » diverses et pour le moins controversées. En Algérie, comme dans bon nombre d'autres pays, les sites les plus modernes côtoient encore les dépôts de déchets « abandonnés ». Laisser quelques déchets, débris ou objets encombrants au coin du bois ou à peine dissimulés dans n'importe quelle excavation constitue une décharge sauvage. On considère que l'Algérie doit faire face à environ trois mille dépôts sauvages de plus ou moins grande taille dont 350 au niveau des 40 grandes villes du pays. Choisir délibérément un endroit, non caché, où l'on entasse les déchets sans précaution particulière pour protéger l'environnement et sans autorisation constitue une décharge brute. Pour lutter contre ces deux mauvaises façons de jeter, la réglementation s'est intéressée à ce mode d'élimination et la décharge est devenue contrôlée [loi 01/19]. C'était bien l'expression d'une volonté et d'une nécessité de surveiller les effets et impacts sur l'environnement. Progressivement, des règles techniques ont été édictées concernant le choix des sites de confinement ; la récupération des effluents gazeux et aqueux aux fins de traitement avant rejet, la sélection des déchets admis, le contrôle et la surveillance des exploitations, etc. Pour refléter cette modernisation, la décharge s'est alors appelée centre d'enfouissement technique (1980 à 1990).

Depuis les années 1990, des dispositions techniques très importantes, et radicales, ont été prises :

- choix de sites imperméables pour le confinement des déchets ;
- étanchéité et drainage des fonds, des côtés et de la couverture des sites ;
- forte sélection dans les catégories de déchets admis ;
- conditions de rejet fixées en teneurs et en flux pour le biogaz et les lixiviats, ce qui nécessite obligatoirement des systèmes performants de collecte et traitement avant rejet ;
- surveillance des sites au moins 30 ans après leur fermeture pour gérer la période post exploitation. Pour marquer cette « révolution » dans le domaine, la réglementation a rompu

avec le passé en donnant un nouveau nom : les centres de stockage de déchets. Cela sous-entend que les déchets sont entreposés dans un lieu confiné, sans échange avec les milieux environnants (eaux souterraines, sol et atmosphère). Entre le stock de déchets et ces différents milieux, des dispositifs de sécurité et de protection sont aménagés sous forme de « barrières ».

On distingue :

— la barrière passive, généralement constituée d'une couche de sol imperméable plus ou moins épaisse (1 à 5 m) selon la nature des déchets, qui est l'écran, non sollicité pendant la vie normale de l'exploitation, mais qui sert de « rempart extrême » et qui minimise les effets sur l'environnement en cas de défaillance des dispositifs d'étanchéité et de drainage (d'où l'appellation de système passif) ;

— la barrière active, ou dispositifs sur lesquels il est possible d'agir pour prévenir tout accident ou pour minimiser par une action volontaire toute sollicitation de la barrière passive. Elle est constituée d'un écran étanche généralement à base d'un matériau géosynthétique ou membrane et d'un réseau de drainage composé d'un réseau de canalisations de collecte, disposées dans une couche de matériaux drainants. De plus, dans la masse des déchets, si ceux-ci sont évolutifs et fermentescibles, un réseau de collecte des gaz formés (biogaz) est aménagé, de même qu'en superficie, sous la barrière passive de couverture. Les barrières de confinement et de drainage ceinturent en principe la totalité du stock de déchets (le fond, les flancs et en couverture finale).

En complément de cette forte évolution dans la conception des aménagements de sites de stockage, l'application des principes de précaution et de prévention a porté aussi sur les déchets eux-mêmes. La sélection des déchets admis a été régulée en fonction de la capacité des différentes barrières à endiguer leur possible réactivité et leur comportement à long terme. Le concept général qui a présidé à ces choix d'aménagement et d'admission des déchets a été en définitive celui de permettre un stockage permanent et définitif de déchets peu évolutifs ou dont il est possible de maîtriser l'évolution et les impacts sur l'environnement, même en cas de défaillance à long terme des dispositifs de sécurité. Les stockages peuvent dès lors être qualifiés d'éco- compatibles.

## **2.2 Principes des centres de stockage de déchets ou CET**

La maîtrise de l'élimination de déchets passe nécessairement par la création de centres de stockage (complémentaires des autres filières de traitement : tri, valorisation, incinération, compactage). Une installation de stockage est un lieu d'élimination de déchets par dépôt ou enfouissement, sans intention de reprise ultérieure.

Le perfectionnement de la sécurité de ces installations de stockage passe nécessairement par l'optimisation de l'aménagement du fond et des flancs des sites de stockage de déchets.

L'étanchéité totale d'une décharge repose sur trois "piliers":

- un fond étanche;
- le drainage des lixiviats au-dessus du fond
- l'étanchéité de la couverture

Le fond de décharge doit permettre l'évacuation permanente des lixiviats et des eaux météoriques. L'étanchéité du fond et des parois doit être maximale. Le confinement de produits polluants dans le centre de stockage est réalisé au moyen de deux barrières, l'une passive (géologique) et l'autre active (artificielle). Les aménagements (couches drainantes, imperméabilisation du fond et des flancs, barrières, etc) permettent la collecte des flux en vue de leur traitement. Il n'y a pas d'isolation totale par rapport aux précipitations météoriques afin de permettre l'évolution du déchet et l'atteinte d'un objectif d'un flux résiduel, (Guyonnet et al 1998). Les CSD sont aujourd'hui de véritables ouvrages de génie civil (figure.2.1).

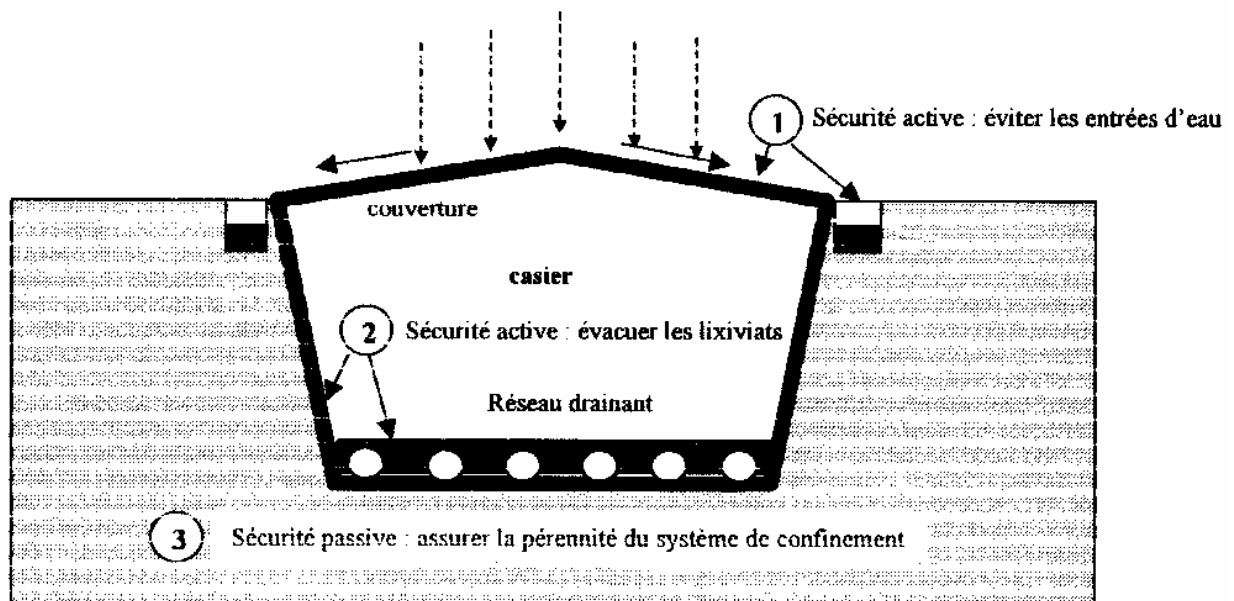


Figure2.1. Coupe schématique d'un CSD, avec son dispositif d'étanchéité- drainage

### 2.3 Cadre réglementaire



La constitution du fond d'un site de stockage de déchets a considérablement évolué depuis une vingtaine d'années : partant de la simple barrière argileuse du sol existant, nous sommes arrivés à un ensemble complexe multicouches et comprenant plusieurs types de matériaux, dont les propriétés et les fonctions sont très complémentaires. Un exemple, parmi les plus sophistiqués, est présenté figure 2.2. La réglementation Algérienne n'impose pas une telle complexité et nous verrons que les réglementations diffèrent considérablement d'un pays à l'autre avec une complexité plus ou moins grande et parfois le recours obligatoire à certains matériaux. Il faut mentionner également qu'il est souvent dangereux d'extrapoler des observations ou relevés de conclusion d'un pays à un autre.

Le confinement prévu par les réglementations Algériennes, loi du 12 décembre 2001 relative à la gestion, au contrôle et à l'élimination des déchets a été établi en réponse à certaines préoccupations liées à l'expérience passée sur les décharges, il a pour objectifs d'assurer :

- la réduction des entrées et sorties d'eaux du site.
- un drainage efficace des lixiviats afin de réduire les percolations à travers le sol.
- la pérennité du système de confinement pendant plusieurs dizaines d'années correspondant à la lente évolution des déchets.

Afin d'atteindre ces trois objectifs, la réglementation sur l'aménagement des centres de stockages dans plusieurs pays impose l'existence d'une double barrière de sécurité:

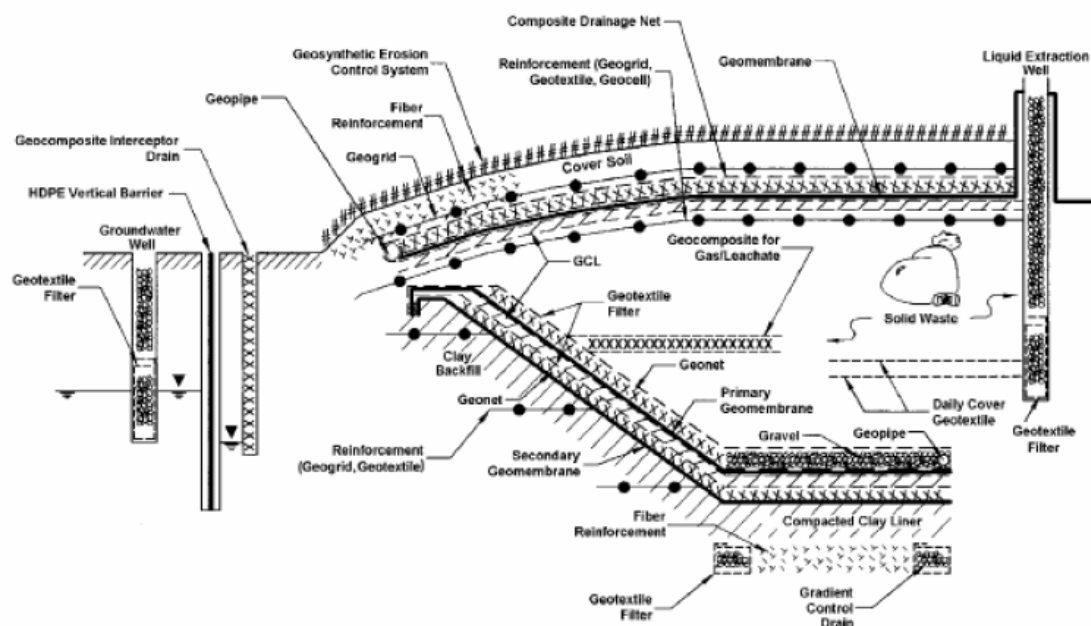


Figure 2.2 – Les différents usages des géosynthétiques dans les centres de stockage de déchets (Zornberg-Australie, Christopher-USA)

## 2.4 Etanchéité naturelle

L'étanchéité de base, en fond de décharge, est assurée par des matériaux naturels. On utilise l'argile du site où est implantée la décharge, afin de limiter les coûts de transport. Le matériau est malaxé, à l'aide d'une fraiseuse par exemple, pour éviter des anisotropies et des hétérogénéités. Ensuite l'argile est compactée en couches à un taux d'humidité optimal. Si la qualité de l'étanchéité n'est pas suffisante, un matériau de meilleure qualité doit être rapporté, ou on ajoute certains composants minéraux au sol.

Dans certains pays, la réglementation précise les exigences physiques, chimiques et minéralogiques pour une barrière minérale étanche (par exemple en Allemagne : Landesamt für Wasser und Abfall NRW, 1990). Les paramètres importants qui caractérisent la barrière en argile sont le type d'argile, la distribution de la granulométrie, la teneur en eau, la densité Proctor, la plasticité et enfin la perméabilité. Les études sur les argiles sont nombreuses. Elles concernent le transport, la perméation, les charges, les fissurations, le séchage, la déformation, la capacité d'auto réparation etc. La barrière minérale a une certaine plasticité ce qui permet de suivre certains mouvements du terrain. Ces mouvements peuvent être d'origine naturelle ou provoqués par le poids des déchets. L'avantage de l'argile est sa capacité d'auto réparation en cas de fissuration. On fait la distinction entre des fissurations dues à une trop grande charge ou dues à un séchage (Savidis, 1993).

L'utilisation d'une seule étanchéité minérale est remise en question de plus en plus. Une couche minérale épaisse peut absorber une grande partie des polluants polaires. Mais la capacité d'absorption de l'argile est infime par rapport aux charges relarguées dans les déchets solides dans les sites d'enfouissement techniques. Au cours du temps un écoulement stationnaire s'installe et les nappes phréatiques peuvent être alimentées par les polluants August (1992) compare la capacité d'absorption de la barrière minérale à une éponge qui se sature et gonfle avec l'eau, l'éponge saturée en eau, laisse passer celle-ci, si on continue l'alimentation. Ainsi la couche minérale peut désorber aussi les polluants après saturation. Il s'agit d'une migration retardée.

La capacité de gonflement joue un rôle important dans l'étanchéité de l'argile. Le gonflement provoque une réduction des pores libres et diminue ainsi le transport à travers l'argile. La montmorillonite (bentonite) a une capacité de gonflement particulièrement importante. On en ajoute souvent au sol pour en améliorer l'étanchéité. Le gonflement joue également un rôle

important dans la fermeture des fissurations .Il est évident que la charge statique des déchets doit être plus élevée que la pression due au gonflement, sinon il n'y a pas de diminution du volume des pores libres.

## **2.5. Etanchéité artificielle**

L'étanchéité artificielle est réalisée à l'aide de membranes souples et fines appelées géomembranes .Les matériaux suivants ont été utilisés pour étancher le fond de sites d'enfouissement techniques (Schneider, 1992) : polyéthylène haute densité (PEHD), polyéthylène basse densité (PEBD), copolymère d'éthylène bitume (CEB ou ECB), polyéthylène chloré (PEC), polychlorure de vinyle souple (PVC), polypropylène et bitume. Aux Etats-Unis et en Allemagne, on utilise surtout des géomembranes en PEHD comme élément d'étanchéité de fond.

L'avantage principal qui justifie l'utilisation des géomembranes pour étancher les sites d'enfouissement technique est la faible perméabilité .Malgré un dispositif permettant de mesurer des flux de l'ordre de  $10E-16$  m/s (obtenu pour le PVC), Pelte (1993) n'a pas pu mesurer le flux d'eau à travers des géomembranes en PEHD sous l'effet d'une différence de pression. August (1992) a montré que les géomembranes en PEHD sont étanches pour les substances inorganiques. Par contre les substances organiques comme les hydrocarbures ont plus d'affinité avec le PEHD. La sensibilité aux contraintes mécaniques est un des inconvénients des géomembranes. Les géomembranes doivent suivre les mouvements du terrain (pour le PEHD, la déformation ne doit pas dépasser 2%).Dés que la géomembrane est endommagée, la fuite à travers celle-ci est permanente. Le poinçonnement par le matériau de drainage ou d'autres objets pointus peuvent aussi endommager la géomembrane. Les engins roulants sur la décharge peuvent enfoncer le gravier dans l'étanchéité. Les déchets eux-mêmes avec une densité jusqu'à  $1 \text{ tonne/m}^3$  et une hauteur de 30 mètres peuvent créer une pression statique jusqu'à 300 kPa (Heerten, 1994). La protection antipoinçonnement doit être étudiée pour de telles charges. Le risque de perforation et d'endommagement des géomembranes est très élevé. De ce fait, l'utilisation de la géomembrane comme étanchéité seule est inadmissible.

La pose et la soudure sont des étapes délicates dans la réalisation du système d'étanchéité. La soudure doit être adaptée au matériau utilisé. Les paramètres de soudure (température, vitesse) sont particulièrement importants. On a constaté l'effet de stress cracking au niveau des zones de soudures pour les géomembranes en PEHD : le chauffage et le refroidissement

partiel peuvent créer des contraintes dans le matériau, ce qui cause des micro fissurations à long terme. De plus, chaque endroit de la géomembrane qui est mise sous tension à long terme, est sensible aux effets de 'fissuration sous contraintes' (Carson, 1992).

Le vieillissement est un facteur très important des matières plastiques. L'altération est généralement due à une oxydation, au rayonnement solaire ou au milieu qui attaque le matériau. L'ajout de stabilisants peut rendre le polymère résistant au milieu dans lequel il est utilisé (par exemple PVC). Cependant si les stabilisants partent au cours du temps par diffusion ou migration, le polymère n'est plus protégé. Ainsi, il est nécessaire de connaître les réactions physiques et chimiques du polymère avec le milieu. La durée de vie n'est pas indiquée pour les géomembranes dans les fiches techniques des producteurs. En effet, c'est un paramètre inconnu qui demande à être étudié.

## 2.6 Etanchéité combinée

Comme décrit au-dessus, l'étanchéité minérale et l'étanchéité artificielle possèdent chacune leurs avantages et leurs inconvénients spécifiques. En associant les deux étanchéités, on peut profiter des avantages des deux barrières (figure 2.3).

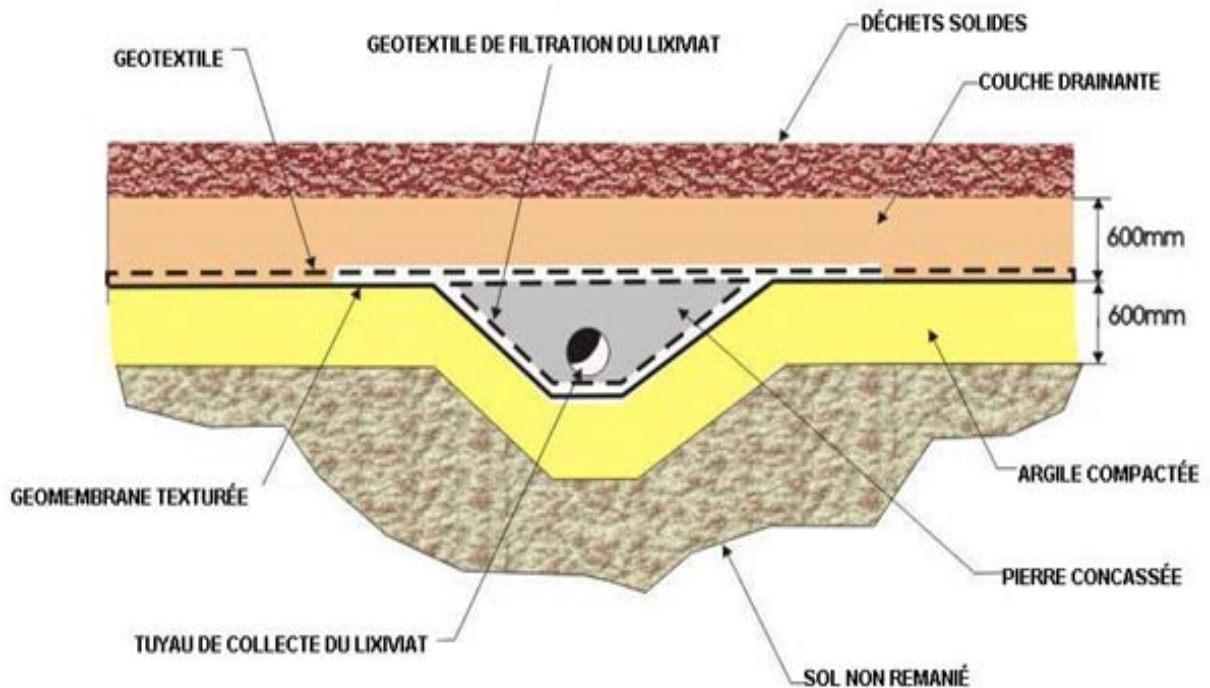


Figure 2.3 Exemple d'une étanchéité combinée

Le tableau 2.1 suivant montre la complémentarité de l'étanchéité par couche d'argile et par géomembrane. Il présente certains avantages et inconvénients évoqués dans les deux paragraphes précédents

|                                     | <b>Géomembrane</b>  | <b>Argile</b>  |
|-------------------------------------|---|--|
| épaisseur                           | < 0.5 cm<br>donc sensible aux perforations  | > 60 cm  |
| soudures                            | oui   | non  |
| Coefficient de perméabilité         | 10-15 m/s (d'après Rigo, 1992, entre 10-13 et 10-15 pour une hauteur de 5 mètres d'eau).permeation contrôlée par la loi de Fick.        | $10^{-9}$ m/s,<br>permeation contrôlée par la loi de Darcy ( $Q = KiA$ ) |
| Sensibilité à l'humidité            | non   | oui (risque de fissuration par dessiccation)                             |
| Perméabilité aux composés polaires  | très faible   | plus élevée  |
| Perméabilité aux composés apolaires | plus élevée   | risque de détérioration du matériau                                      |
| Sensibilité mécanique               | Elevée : risque de déchirement sous traction, poinçonnement, stress cracking, plis, ondes, glissement sur le support.                   | faible   |
| Durabilité, vieillissement          | suisant les matériaux, une altération du produit probable au cours du temps avec perte de l'étanchéité, paramètre inconnu et à étudier. |  |

Tableau2.1 : complémentarité de l'étanchéité par couche d'argile et par géomembrane

A travers la barrière minérale, le transport est de type convectif. Il peut être décrit par la loi de Darcy .La géomembrane empêche ce transport qui devient maintenant diffusif. La stimulation du transport diffusif vient de la différence de concentration (loi de Fick).Ce transport diffusif

est beaucoup plus lent que le transport convectif .Ainsi l'utilisation des deux barrières d'étanchéité est plus qu'une simple superposition des deux avantages.

En ce qui concerne la mise en place, le contact entre la géomembrane et l'argile de la couche minérale doit être plan et continu. La hauteur de charge de liquide sur la couche d'argile influence sa performance en terme d'étanchéité. Avec la géomembrane sur l'argile, on limite la hauteur de charge de liquide théoriquement à zéro. Mais en cas de défaut dans la géomembrane et s'il y a un volume libre entre la géomembrane et l'argile, le liquide passant à travers le défaut peut se répandre et pénétrer sur une grande section a travers l'argile (figure) ce qui accroît le flux de fuite dans l'argile par rapport au cas où le contact entre géomembrane et argile est meilleur. Pour réaliser ce bon contact, d'après Schneider (1999), la pression statiques par les déchets sur la géomembrane doit au moins dépasser la pression hydraulique résultant de la hauteur de lixiviats (critère important pour les bassins de rétention car il n'y a pas le poids des déchets). La figure 2.4 présente la configuration de bonne pose, plan continu, de la géomembrane sur l'argile et la configuration de volume libre entre la géomembrane et l'argile.

Les diverses conditions de mise en œuvre sont les suivantes :

- contact parfait entre la géomembrane et l'argile (cas irréal).
- excellent contact : argile bien compactée, plane, lisse, pas de trace de trafic du chantier, la géomembrane est flexible et sans pli
- mauvais contact : le sol est mal compacté, avec une surface irrégulière, la géomembrane est rigide et présente des plis.
- le cas bon contact et pauvre contact sont intermédiaires aux deux cas précédents.

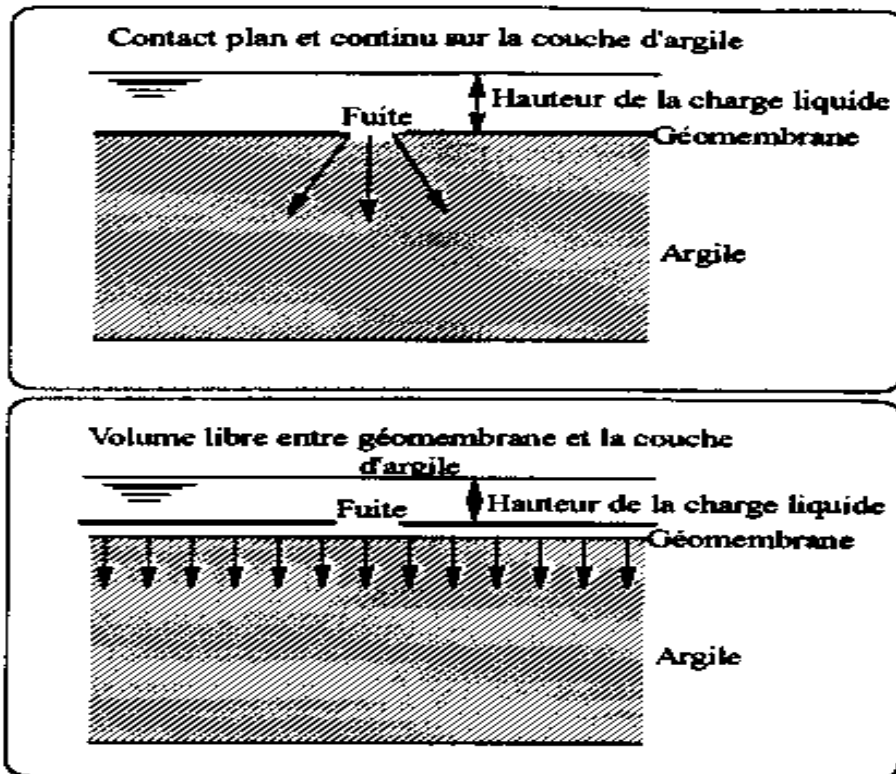


Figure 2.4. Configuration géomembrane posée plan et continu sur l'argile et configuration volume libre entre géomembrane et argile

On a montré que la barrière minérale est nécessaire dans la construction de système d'étanchéité. En effet elle a une fonction primordiale dans l'enfouissement technique. Sa construction et sa mise en place doivent tenir compte de ses sensibilités mécaniques et chimiques.

## 2.7 Les nouveaux sites d'enfouissement : les bioréacteurs

Techniquement, un bioréacteur est un site d'enfouissement de déchets, à ceci près que les lixiviats formés sont mis en recirculation dans les déchets. Cela entraîne à la fois un traitement partiel des polluants qu'ils contiennent et une accélération de la dégradation des matières putrescibles contenues dans les déchets par les micro-organismes. En parallèle, les biogaz formés sont captés et peuvent être utilisés comme ressource énergétique. La seule différence repose sur le fait que les lixiviats générés ne sont pas traités en dehors du site, mais ils sont mis en recirculation dans les résidus. Cette recirculation permet d'accélérer la dégradation des matières organiques (matières putrescibles) en maintenant un fort taux d'humidité (Chugh et al. 1999). Selon certains scientifiques, il s'agit toutefois d'un retour en

arrière dans le cadre de la gestion des matières résiduelles (Allen, 2001). En effet, après avoir préconisé un apport minimal de liquides et réduit au maximum les infiltrations d'eau dans les volumes de déchets afin de limiter la décomposition organique pour diminuer tous les rejets qui y sont associés, notamment lixiviats et biogaz, les technologies en matière de gestion des déchets cherchent maintenant à augmenter le taux d'humidité pour accélérer cette dégradation. Enfin, les bioréacteurs peuvent profiter des technologies de captation des biogaz existants pour récupérer le méthane formé et le transformer en énergie électrique.

De plus, le terme « bioréacteur » ne s'applique pas seulement à la gestion des déchets. Il s'agit d'un principe simple, utilisé dans plusieurs domaines industriels, qui consiste à faire développer une masse de micro-organismes dans un volume donné, sous un flux de liquide contrôlé, pour qu'elle dégrade un substrat particulier. Ainsi, les stations d'épurations des eaux usées utilisent des bioréacteurs pour traiter les boues depuis longtemps déjà. Le terme « bioréacteur » appliqué à une technologie d'enfouissement des déchets n'est en fait qu'une appellation moins rébarbative, utilisée par certains promoteurs, pour qualifier un lieu d'enfouissement, en vertu du seul fait que ceux-ci appliquent une recirculation des lixiviats dans la masse de déchets, pour que les bactéries dégradent certains composés. Ainsi, plusieurs procédés ont été développés afin de venir à bout des longues périodes d'initiation de dégradation dans les déchets solides. L'un d'entre eux est le recyclage des lixiviats qui fournissent les micro-organismes, l'humidité et les nutriments nécessaires à une conversion rapide des déchets organiques et enlèvent, en partie, les produits de fermentation qui inhibent cette initiation (Nopharatana et al. 1998). En cela, ils reprennent le principe du compostage, sans toutefois profiter des avantages de cette stratégie de récupération des matières putrescibles. De plus ils créent des impacts environnementaux par le rejet de gaz à effet de serre ou la production de lixiviat, tout en gâchant des ressources.

### **2.7.1 Les bioréacteurs aérobies**

Parmi les projets de bioréaction déjà entrepris (Hudgins and Green, 1999 ; Johnson and Baker, 1999 ; Reinhart et al. 2000), une des options choisies par les promoteurs est le recours à des dégradations aérobies. Ces sites nécessitent la présence de puits d'injection d'air dans les déchets. Ainsi, les métabolismes bactériens impliqués sont dominés par des voies aérobies avec dégradation des mêmes molécules organiques que celles des sites anaérobies, mais en consommant du dioxygène pour former du dioxyde de carbone. Les espèces mises à contribution sont très différentes de celles rencontrées dans les milieux anaérobies. Les bioréacteurs aérobies permettent ainsi d'éviter la production de méthane, et limitent en cela



les impacts atmosphériques de ces sites d'enfouissement. Il est à noter également que les métabolismes aérobies peuvent être utilisés avant de procéder à des bioréactions anaérobies, dans des bioréacteurs dits « hybrides », mais les travaux dans ce domaine sont très rares (O'Keefe and Chynoweth, 2000). Dans le principe, les sites aérobies fonctionnent de la même façon qu'un site de bioréaction anaérobie. Les lixiviats formés sont mis en recirculation et entretiennent une humidité permettant une activité bactérienne accrue. Les matières organiques sont rapidement dégradées, selon des mécanismes identiques à ceux retrouvés au cours du compostage (Park et al. 2002). Si quelques études se penchent sur ces voies de dégradation aérobies (Liwarska-Bizukojc and Ledakowitch, 2003), il est à noter qu'ici aussi, seules les matières putrescibles sont dégradées et que les problèmes de gâchis des ressources sont similaires à ceux des bioréacteurs anaérobies. En effet, les matières plastiques, les métaux, les verres ou tout autre matière non putrescible ne sont pas décomposées. Ces bioréacteurs aérobies sont donc de mauvais composteurs puisqu'ils réalisent les mêmes stabilisations des résidus dégradables sans pouvoir permettre une utilisation ultérieure, à moins d'un tamisage final long, difficile et coûteux (Das et al. 2002). Au final, il apparaît que les bioréacteurs aérobies ont fait l'objet de peu d'études en comparaison aux bioréacteurs anaérobies. En tout état de fait, ils ne résolvent en rien la plupart des problèmes des sites d'enfouissement traditionnels. Premièrement, les puits enchâssés dans la masse de déchets permettent aux odeurs de se répandre plus facilement dans l'air avoisinant. Aussi, la décomposition accélérée laisse présager des émissions encore plus grandes dans les premières années d'utilisation de la bioréaction. Au niveau de l'utilisation des déchets stabilisés, les débouchés sont les mêmes que ceux des bioréacteurs anaérobies, en raison de la contamination des matériaux putrescibles par des composés plastiques ou métalliques, c'est-à-dire presque nuls. Les systèmes de confinement sont de la même façon agressés par les lixiviats et les températures élevées et laissent donc des risques très grands de pollution des réseaux hydrauliques souterrains et des sols. Les problèmes d'hétérogénéité des déchets sont, là aussi, très contraignants et le recours aux réactions aérobies augmente sensiblement les risques d'incendies, car les températures sont bien plus importantes (Das et al. 2002). Par contre, un des avantages des sites aérobies par rapport aux sites anaérobies est la stabilisation des métaux lourds, notamment sous la forme d'hydroxydes (Bramryd and Binder, 2001) et la production de gaz ayant un moins grand potentiel de réchauffement climatique.

### 2.7.2 Les bioréacteurs anaérobies

Les bioréacteurs anaérobies font l'objet de nombreuses études. Ils utilisent le principe de dégradation accélérée des déchets organiques grâce à une recirculation des lixiviats en instaurant un fort taux d'humidité. Ceci permet en même temps de « traiter » ces lixiviats *in situ*, c'est-à-dire d'utiliser les propriétés des micro-organismes présents dans les matières résiduelles pour décomposer la plupart des polluants organiques rencontrés dans les déchets. Les entrepreneurs dans le domaine de la gestion des déchets présentent également la bioréaction comme un moyen d'enfouir plus de déchets dans une même cellule en raison du tassement observé lors de la dégradation rapide des matières enfouies. Les bioréacteurs anaérobies produisent de grandes quantités de biogaz, dont le méthane, qu'ils captent et peuvent utiliser pour produire de l'énergie. Bien que les connaissances soient avancées dans les mécanismes anaérobies, elles ne le sont que pour des systèmes aux paramètres contrôlés et constants. Or les sites d'enfouissement subissent d'importantes variations de substrats dans le temps et ne présentent pas des conditions optimales de développement bactérien (El-Fadel et al. 1997). La recirculation des lixiviats permet toutefois d'augmenter la dégradation bactériologique des matières biodégradables (Yuen et al. 2001). Elle permet d'appréhender les sites d'enfouissement comme des « filtres » anaérobies qui traitent les lixiviats en réduisant leurs volumes par évaporation. Il faut toutefois choisir un mode de recirculation optimal et il est recommandé de commencer par un ajout lent pour laisser le temps à la flore bactérienne de s'adapter. Un flux plus important est envisageable par la suite, une fois que la production de méthane a commencé. De plus, un apport d'eau complémentaire augmente le taux d'humidité et dilue les produits inhibiteurs. Finalement, tous ces liquides doivent être bien répartis pour homogénéiser la dégradation. Un ajout supplémentaire de nutriments peut aussi améliorer cette dégradation (San and Onay, 2001). Par contre, une grande quantité d'ammoniaque (produit toxique à forte concentration) est produite durant les processus de bioréaction et il est indispensable de les traiter (Reinhart et al. 1996). Le taux d'humidité et la stabilisation des conditions d'anaérobie sont essentiels à cette technologie de biodégradation. Aussi, les plastiques peuvent permettre de diminuer la pénétration d'air notamment les polystyrènes et les plastiques durs mais ils contribuent à la non uniformité de la masse des déchets. Si l'humidité diminue et que des hétérogénéités de structures apparaissent, cela crée des zones de faible capacité de drainage. Là, les acides organiques formés diminuent le pH et ralentissent la formation de méthane. De plus, des zones d'accumulation d'eau empêchent la circulation des gaz de fermentation (Bramryd and Binder, 2001). En principe, les conditions

anaérobies et la présence de nombreuses molécules organiques entraînent une fixation des métaux lourds, notamment en formant des sulfures métalliques insolubles ou en formant des colloïdes organiques. Aussi, dans le long terme, des carbonates se forment et immobilisent également ces constituants. Cependant, dans un bioréacteur anaérobie, l'extraction du méthane peut s'étaler sur une période de 10 à 15 ans, après quoi, la majeure partie des déchets enfouis est sous forme réduite. L'excavation des cellules de bioréaction, proposée par certains promoteurs, pour retirer les nutriments, entraînerait l'oxydation des sulfures métalliques, ce qui diminuerait l'immobilisation des métaux, créant des risques importants de grandes concentrations métalliques dans les lixiviats. Donc les résidus issus de la dégradation des matières organiques doivent être laissés dans les sites (Bramryd and Binder, 2001). Dès le départ, la bioréaction anaérobie s'annonce problématique, car, si la dégradation est effectivement accélérée, l'hétérogénéité des déchets et leur variabilité dans le temps va créer des zones de mauvaise décomposition. Les gains environnementaux ne s'annoncent pas non plus très convaincants.

## **2.8. Les matériaux composants de l'étanchéité du fond et des parois**

### **2.8.1 Argile compactée**

L'argile compactée est le matériau utilisé en fond de décharge. C'est le composant important de l'étanchéité des CDS. Le substratum du site doit présenter de haut en bas une faible perméabilité. Lorsque la perméabilité naturelle du substratum n'est pas inférieure à  $10^{-6}$  m/s, il est possible de reconstituer la barrière de sécurité passive par l'apport complémentaire d'un matériau naturel ou artificiel de substitution sur une épaisseur d'au moins 1m. Cela peut être obtenu par des techniques de remaniement de sol (figure 2.5). Ce sont des traitements mécaniques (décapage, réglage, compactage...) qui peuvent être employés seuls ou conjointement à un apport de matériaux possédant des propriétés d'imperméabilité, en surépaisseur ou en tant qu'adjuvant.

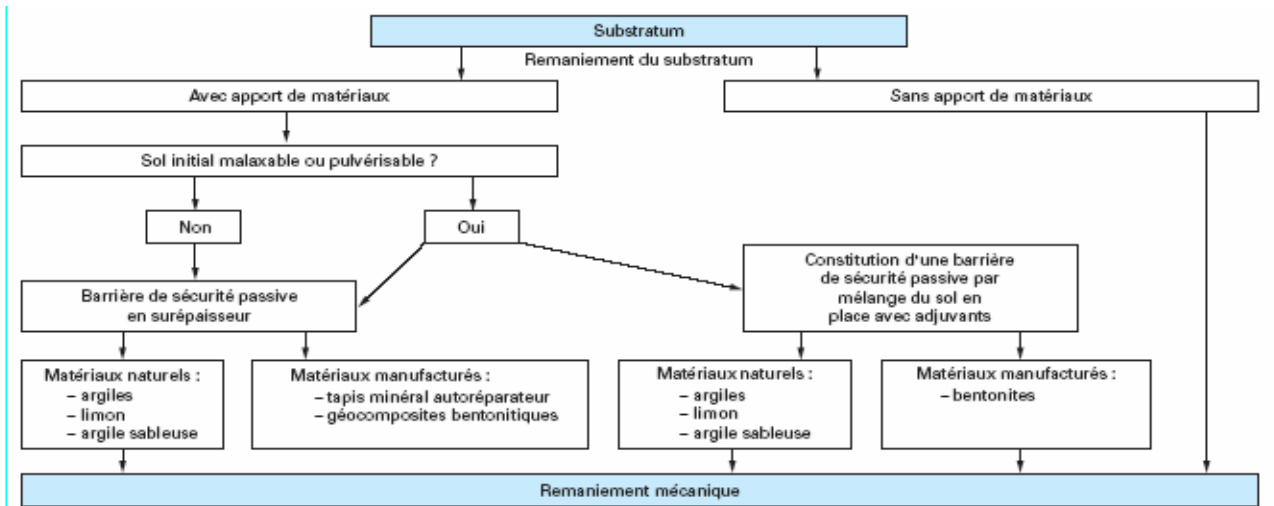


Figure 2.5 Différentes techniques de remaniement des sols

Une barrière doit présenter aussi une forte capacité de rétention. A cet égard, le meilleur matériau est une bentonite base de montmorillonite-Na. Malgré des propriétés de gonflement moins performantes la bentonite-Ca est aussi assez utilisée. Elle a l'avantage d'être moins sensible concernant les attaques de cations polyvalents organiques ou inorganiques (Koch, 2002).

### 2.8.2 Matériaux géocomposites

A l'heure actuelle, les géosynthétiques bentonitiques (GSB) peuvent complètement remplacer les barrières d'argiles ou compléter une barrière compactée. Ils constituent la plus récente technologie utilisée dans les dispositifs d'étanchéification de fond mis en oeuvre en CET. Les GSB sont des produits manufacturés en forme de nappe associant des géosynthétiques à de la bentonite, selon la définition du Comité Français des Géosynthétiques. Pratiquement ils sont constitués d'une couche mince d'argile bentonitique maintenue en sandwich entre deux couches de géotextile. Les GB existant peuvent être classés en 2 catégories. Les géotextiles bentonitiques, composée par au moins un géotextile et de la bentonite. Les géofilms bentonitiques, composés d'un film d'une couche de bentonite, et d'un géotextile. La bentonite sodique prédomine dans les GSB fabriqués aux Etats Unis, tandis que de la bentonite calcique est aussi utilisée en Europe. (Koerner et Daniel, 1995).

Le GSB contiennent approximativement 5 kg/m<sup>2</sup> de bentonite. La bentonite est généralement conditionnée à une très faible teneur en eau (5-10 %) ou à sec. Son fort potentiel de gonflement et aussi sa grande capacité à absorber de l'eau confèrent aux GSB une

conductivité hydraulique de l'ordre de 10-11 m.s-1 Cette propriété fait que les GSB peuvent jouer le rôle de barrières hydrauliques (à un flux advectif) comparable à celui de couches d'argile compactée. Il y a une variation de la réglementation concernant les dispositifs d'étanchéité d'un pays à un autre.

### 2.8.3 Comparaison des GSB avec les couches d'argiles compactées

Les GSB sont naturellement comparés aux couches d'argile compactée dans les systèmes d'étanchéités combinées. Ils sont en effet une alternative, mais il ne faut pas les considérer comme un remplacement définitif de cette solution classique et éprouvée. Koerner et Daniel (1993) donnent quelques éléments de comparaison à l'aide du tableau 2.2

| Caractéristiques              | GSB   | Argile compactée                                       |
|-------------------------------|---|--|
| matériaux                     | Bentonite, géotextiles et géofilms                  | Sol présent ou mélange du sol et bentonite             |
| épaisseur                     | Typiquement 7 à 10mm (hydraté)                      | 300 à 900 mm   |
| Coefficient de perméabilité   | $< (1 \text{ à } 5) \times 10^{-11} \text{ m/s}$    | $< 1 \times 10^{-9} \text{ m/s}$                       |
| Rapidité de construction      | rapide  | lente  |
| Qualité de fabrication        | Fournie par le fabricant                            | Matériaux naturels                                     |
| Qualité de construction       | Procédures relativement simples                     | Personnel qualifié et équipements lourds               |
| Sensibilité à la dessiccation | Pas de dessiccation si pas d'hydratation prématurée | Argile saturée, peut dessécher pendant la construction |
| Disponibilité des matériaux   | Facilement transportable                            | Dépend du site   |
| Coût d'installation           | Très variable                                       | variable   |
| Expérience                    | Produits encore nouveaux                            | Utilisé depuis plusieurs années                        |

Tableau 2.2 Différences entre les couches d'argile compactée et les GSB, d'après Koerner et Daniel (1993)

Le tableau 2.3 indique les avantages et les inconvénients de l'argile compactée par rapport aux GSB au niveau de la conception, de la construction et des caractéristiques pendant le fonctionnement (Stief, 1995 et Trauger et Stam 1993)

|                           | GSB  | Argile compactée                               |
|---------------------------|--|--|
| <b>Conception</b>         |  |  |
| Volume requis             | faible                                       | grand  |
| spécifications            | Données par le producteur                    | Spéciales, relatives au site                   |
| coût                      | Prévisibles et moins élevé                   | variable                                       |
| réglementation            | Pas encore disponible                        | technique approuvée                            |
| tests                     | Pas de tests in situ requis                  | éventuellement planche d'essais                |
| stabilité                 | Interfaces à examiner                        | Variable mais mieux maîtrisé                   |
| <b>Construction</b>       |  |  |
| maniement                 | Produits légers                              | poids des matériaux                            |
| équipement                | Matériel de pose léger                       | Equipement de compactage lourd                 |
| personnel                 | Main d'œuvre qualifiée                       | Encadrement qualifié sur site                  |
| Homogénéité des matériaux | Facile à vérifier                            | Difficile à établir                            |
| Préparation des sols      | Très important                               | Moins exigeant                                 |
| Temps de réalisation      | Installation rapide                          | Mise en œuvre lente                            |
| Influence du climat       | Moins sensible                               | sensible                                       |
| Besoin en eau             | Pas nécessaire                               | requis   |
| épaisseur                 | Produits finis                               | Nécessité d'une épaisseur minimale             |
| pénétration               | Possible (poinçonnement)                     | Pas de problèmes de pénétration                |
| Objectif qualité          | Facilement atteint                           | Difficilement maîtrisable                      |
| Sol de protection         | Facilement installée, avec précaution        | Mise en œuvre difficile                        |
| <b>Caractéristiques</b>   |  |  |
| infiltration              | faible                                       | Généralement importante                        |
| fissurations              | Pas de fissures si l'humidité est suffisante | Possibilité de fissures dues à la dessiccation |
| Sensibilité au gel        | Perméabilité moins sensible au gel           | Oui, augmentation de la perméabilité           |
| réparation                | Facilement réparable                         | Difficultés de réparation                      |
| tassements                | Moins sensible aux tassements                | Sensible aux tassements                        |

Tableau 2.3 Comparaison entre les couches d'argile compactée et les GSB, d'après Stief (1995) et Trauger et Stam (1993)

## 2.9 Lixiviats et Biogaz

### 2.9.1 Les lixiviats

#### a - Rappels généraux

Le lixiviat est le produit liquide riche en matière organique, en sels minéraux et en bactéries, résultant de la réaction de certaines sortes de déchets avec l'eau. Il se forme pendant l'infiltration d'eaux dans le centre de stockage en diluant la fraction liquide initiale du déchet. La quantité de lixiviat produit dépend de la quantité d'eau souterraine dans le centre de stockage (Bell, 1998). La quantité d'eau absorbée par le déchet dépend de l'âge de l'enfouissement du déchet. Les caractéristiques des lixiviats varient très largement d'une décharge à une autre. Cette variation est basée sur la nature des déchets, l'âge des déchets, la teneur en eau, la température, ainsi que d'autres facteurs (Tableau 2.4). La décomposition des déchets génère aussi des gaz comme le méthane (CH<sub>4</sub>) et le dioxyde de carbone (CO<sub>2</sub>). Ces gaz peuvent migrer à travers le sol et s'accumuler dans des espaces confinés pour produire des concentrations explosives, asphyxiantes ou toxiques. Ils peuvent aussi affecter la végétation existante autour de la décharge. Le CH<sub>4</sub> est, en général, récupéré et valorisé (chaleur ou électricité).

Lixiviat signifie 'jus de décharges', c'est-à-dire l'eau qui percolé à travers les déchets en se chargeant de polluants organiques, minérales et de métaux. Nous pouvons schématiser la formation des lixiviats par la réaction : '**Déchets + eau → Lixiviat**'.

L'eau provient des précipitations et de la dégradation des déchets. La formation des lixiviats est fonction d'une grande variété de phénomènes :

- modes de transport par écoulement, par gravité, par diffusion.
- mécanismes chimiques : complexation, solubilisation, oxydo-réduction.
- processus biologique : aérobies, anaérobies.

#### b - Description d'un lixiviat :

En examinant les analyses chimiques des lixiviats, on remarque qu'on utilise en général des paramètres globaux pour décrire les charges du lixiviat. Il se compose en effet d'une si grande variété de composants (ions, produits organiques, non organiques,....biologiques) rencontrés parfois sous forme de traces qu'il est impossible de tous les doser.

| Composition des lixiviats et autre résidus liquides |   |   |
|---|---|---|
|   | Liquides organiques et/ou solides organiques dissous  | Solides inorganiques dissous  |
| eau   | Exemple:<br>Acides organiques<br>Hydrocarbures<br>Bases organiques<br>Hydrocarbures aromatiques<br>Hydrogènes carburés aliphatiques | Exemple:<br>Acides inorganiques<br>Bases inorganiques<br>Sels<br>Traces métalliques |

Tableau 2.4 Composition de lixiviats ou autres liquides de décharge qui peuvent être en contact avec le fond d'une décharge, Extrait EPA (1988)

Les paramètres souvent utilisés pour décrire le lixiviat sont le pH, la conductivité, la DCO ( demande chimique en oxygène), la DBO<sub>5</sub> ( demande biologique en oxygène) , le COT(carbone organique total) ,le MES ( matières en suspension), l'ammonium , les nitrates , les nitrites, les phosphates, les sulfates, les chlorures, le calcium. Des métaux et autres éléments de traces souvent analysés sont le Fer, le Zinc, l'aluminium, le chrome, le cuivre, le nickel, le plomb, le cadmium, l'arsene, le strontium. D'autres paramètres importants sont les hydrocarbures totaux et les AOX (liaisons halogènes adsorbables).

### c - Conductivité

La conductivité peut être mesurée en permanence, Son unité est le mS/cm. La conductivité est étroitement liée à la concentration des substances dissoutes et à leur nature. Les sels minéraux sont, dans l'ensemble de bon conducteur.

L'estimation de la pollution organique est un problème complexe et délicat, qui fait appel à des dosages et à des tests. Du fait même de la nature des matières organiques et des divers stades de dégradation, il n'est pas possible de considérer une seule méthode ou un seul test puisse permettre de saisir l'ensemble du problème.

Demande chimique en oxygène (DCO) : dans les eaux, les DCO correspondent en général au taux de substances organiques et végétales. Par contre dans les eaux qui contiennent beaucoup d'ions de fer ( $Fe^{2+}$ ) ou des eaux très contaminées comme les lixiviats ,la DCO ne correspond



souvent plus uniquement aux liaisons organiques car de nombreuses substances non-organiques se font oxyder par le produit oxydant. Pour mesurer la DCO, on dose une certaine quantité d'un produit oxydant vis à vis du lixiviat comme le  $\text{KMnO}_4$  ou le  $\text{K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$ . La quantité de produit oxydant consommé est un indice de la DCO. On effectue un titrage.

Demande biologique en oxygène ( $\text{DBO}_5$ ) :

La demande biologique en oxygène ( $\text{DBO}_5$ ) est définie comme la quantité d'oxygène consommée dans les conditions de l'essai, c'est à dire après incubation durant 5 jours, à  $20^\circ\text{C}$  et dans l'obscurité, par certaines matières présentes dans l'eau. La mesure de la quantité d'oxygène consommée est suivie dans une solution. L'oxydation des matières organiques n'est pas le seul phénomène en cause; il faut y ajouter l'oxydation des nitrites et des sels ammoniacaux ainsi que les besoins nés des phénomènes d'assimilation et de la formation de nouvelles cellules.

#### **d - Carbone Organique Total (COT)**

Par oxydation catalytique à  $950^\circ\text{C}$ , les éléments carbonés donnent de l'anhydride carbonique qui est dosée dans un analyseur à infrarouge. La détermination porte sur les composés organiques fixes ou volatils, naturels ou synthétiques. Suivant que l'eau aura été préalablement filtrée ou non, on obtiendra le carbone dissous ou le carbone total.

#### **e - Composition**

La composition est influencée par différents facteurs : - composition des déchets stockés,- le bilan hydrique (fonction des conditions géoclimatiques),- le mode d'exploitation de la décharge,-les techniques d'étanchéité (nature de la couverture et du sol),-l'age de la décharge. La composition est variable d'une décharge à une autre, il est pratiquement impossible de prévoir la qualité et la quantité de lixiviat car trop de variables influent sur la solubilisation des composants organiques et inorganiques. Le tableau 2.5 montre la dispersion des principaux paramètres physico-chimiques.

|                         |             |
|-------------------------|-------------|
| pH                      | 3,7 - 8     |
| DCO                     | 40 – 90.000 |
| $\text{DBO}_5$          | 81 – 33.000 |
| COT                     | 350 -28.000 |
| $\text{N}(\text{NH}_3)$ | 0 - 1100    |
| Phosphate total         | 0 - 130     |
| Chlore                  | 45 – 2.500  |
| Sodium                  | 60 – 8.000  |

|                             |                   |
|-----------------------------|-------------------|
| Potassium                   | 30 – 4.000        |
| Calcium                     | 60 – 7.000        |
| Fer                         | 0 – 3.000         |
| Manganèse                   | 0,09 - 125        |
| Zinc                        | 0 - 370           |
| Potentiel d'oxydo-réduction | (- 220) – (+ 163) |

Tableau.2.5 tableau des composants physico-chimiques selon Chian et Dewalle (1977), (valeurs en mg/L sauf le pH et le potentiel d'oxydo-réduction, en millivolts).

Pendant une période de temps assez longue, de l'ordre de quelques années, les lixiviats de décharge sont en constante évolution du fait des faibles cinétiques de dégradation. Suivant leur composition au cours du temps, les lixiviats sont classés en trois catégories (voir tableau 2.6).

|                       | Jeunes (Type I)            | Intermédiaires (Type II)                                    | Vieux (Type III)            |
|-----------------------|----------------------------|---|-----------------------------|
| Age                   | < à 5 ans                  | 5 à 10 ans  | > 10 ans                    |
| pH                    | 6,5                        | 6,5 à 7,5   | > 7,5                       |
| DCO (mg/L)            | DCO > 10.000               | 4.000 < DCO >10.000   | DCO < 4.000                 |
| DBO <sub>5</sub> /DCO | > 0,3                      | 0,1 à 0,3   | < 0,3                       |
|                       | biodégradable              |   | Faiblement biodégradable    |
| Matière Organique     | 80% = acides gras volatils | 5 % à 30 % d'AGV<br>+ acides fulviques<br>+ acides humiques | Acides humiques, fulviques. |
| Métaux Lourds         | Faible à moyenne           |   | Faible                      |

Tableau.2.6 classification des lixiviat en fonction de l'âge de la décharge d'après : Chian (1977), Millot (1986).

Le tableau 2.7 présente les principaux composants de lixiviat de décharges. Les lixiviats se composent d'une phase liquide et de solides en suspension (EPA, 1988)

| COMPOSITION DES LIXIVIATS |  |   |   |   |   |
|---------------------------|--|---|---|---|---|
| Fraction organique        |  |   |   | Fraction minérale   |   |
| < 500 Daltons             |  | 500à1000Daltons   | >10000Daltons   | Sels minéraux   | Métaux lourds                             |
| Acides Gras<br>Volatils   | Amino-volatils,<br>alcools, solvants<br>composés<br>aliphaliqes<br>composés<br>(phénol,toluène...) | Acides fulviques<br>riches en<br>fonctions<br>carboxyliques et<br>aromatiques | Acides<br>humiques<br>riches en<br>fonctions<br>carboxyliques<br>et aromatiques | Hydrogéno-<br>carbonates,<br>Chlorures<br>Nitrates<br>Sodium<br>Calcium<br>Sulfure<br>azote | Fer<br>Plomb<br>Zinc<br>Cuivre<br>Cadmium |
| Forte<br>biodégradabilité | Biodégradabilité<br>moyenne à faible   | Biodégradabilité<br>faible  | Biodégradabilité<br>faible  |   |   |

Tableau.2.7 : Classification des composés présents dans les lixiviats en fonction de leur nature et de leur poids moléculaire d'après Chian (1977), Ehrig (1983), Moulin (1992), Amokrane (1994).

Stegmann, Ehrig (1989) ont analysé la production et la qualité des lixiviats venant à priori de sites d'ordures ménagères. Les auteurs constatent que la quantité et la qualité de lixiviat ne peuvent être calculées par des modèles mathématiques. La qualité organique du lixiviat dépend en effet de l'état de dégradation des ordures. Au cours de la mise en place de la décharge, la dégradation des ordures est aérobie à cause de l'oxygène dans l'atmosphère. Une fois les ordures recouvertes, la dégradation s'effectue en milieu anaérobie. Dans ces conditions, les substances organiques se dégradent principalement en méthane  $CH_4$  et en dioxyde de carbone  $CO_2$ . Pendant cette phase de dégradation, on distingue la phase acétique de la phase méthanogénique. La phase acétique se caractérise par la production d'acides organiques, d'hydrogène et de dioxyde de carbone. Le pH est bas et le lixiviat est chargé en substances organiques. Les bactéries produisant du méthane nécessitent un certain temps pour se développer et produire du méthane. Avec la production du méthane, la charge organique du lixiviat décroît et la valeur du pH augmente (phase méthanogénique). Stegmann, Ehrig (1989)

ont observé que le taux de différentes substances métalliques ne varie pas dans le lixiviat au cours de la dégradation et du changement de phase.

Le tableau 2.8 présente les paramètres qui varient pendant la phase acétique et méthanogénique. Le tableau 2.9 présente les paramètres qui ne varient pas pendant les deux phases, d'après les études sur les lixiviats de Stegmann & Ehrig (1989). Le rapport DBO/DCO est un facteur décrivant la biodégradabilité. Suivant Stegmann & Ehrig (1989), des valeurs supérieures à 0.4, pendant la phase acétique, indiquent une bonne biodégradabilité du lixiviat. Pendant la phase méthanogénique, le rapport DBO/DCO décroît au dessous de 0.2 ce qui indique une mauvaise biodégradabilité des substances organiques.

Stegmann & Ehrig (1989) considèrent une décharge comme un "batch-reactor" (bassin retardateur). Ainsi, le taux de substances émises par la décharge dans le lixiviat doit décroître au cours du temps. Mais leurs observations des décharges montrent que, par exemple, le taux de chlorures ne décroît pas après 20 ans de mise en décharge. Enfin, les auteurs concluent de leurs essais en laboratoire et de leurs observations sur site que les lixiviats seront encore chargés de taux importants de substances polluantes pendant quelques centaines d'années

| <b>Phase acétique</b> | <b>marge</b> | <b>moyenne</b> |
|-----------------------|--------------|----------------|
| pH                    | 4.5-7.5      | 6.1            |
| DBO (mg/L)            | 4000-40000   | 13000          |
| DCO (mg/L)            | 6000-60000   | 22000          |
| DBO/DCO               | -            | 0.58           |
| Sulfates (mg/L)       | 70-1750      | 500            |
| Calcium (mg/L)        | 10-2500      | 1200           |
| Magnésium (mg/L)      | 50-1150      | 470            |
| Fer (mg/L)            | 20-2100      | 780            |
| Manganèse (mg/L)      | 0.3-65       | 25             |
| Zinc (mg/L)           | 0.1-120      | 5              |

| <b>Phase méthanogénique</b> | <b>marge</b> | <b>moyenne</b> |
|-----------------------------|--------------|----------------|
| pH                          | 7.5-9        | 8              |
| DBO (mg/L)                  | 20-550       | 180            |
| DCO (mg/L)                  | 500-4500     | 3000           |
| DBO/DCO                     | -            | 0.06           |
| Sulfates (mg/L)             | 10-420       | 80             |
| Calcium (mg/L)              | 20-600       | 60             |
| Magnésium (mg/L)            | 40-350       | 180            |
| Fer (mg/L)                  | 3-280        | 15             |
| Manganèse (mg/L)            | 0.03-45      | 0.7            |
| Zinc (mg/L)                 | 0.03-4       | 0.6            |

Tableau 2.8 Analyse de lixiviat (paramètre qui montrent des différences entre la phase acétique et méthanogénique), Extrait de Stegmann & Ehrig (1989)

|   | <b>marge</b> | <b>moyenne</b> |
|---|--------------|----------------|
| Chlorure (Cl <sup>-</sup> ) [mg/L]              | 100 -5000    | 2100           |
| Sodium (Na) [mg/L]                              | 50 - 4000    | 1350           |
| Potassium (K) [mg/L]                            | 10 - 2500    | 1100           |
| Alcalinité [mgCaCO <sub>3</sub> /L]             | 300 -11500   | 6700           |
| Ammonium (NH <sup>+</sup> ) [mg/L]              | 30 -3000     | 750            |
| Nitrates (NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> ) [mg/L] | 0.1-50       | 3              |
| Nitrites (NO <sub>2</sub> ) [mg/L]              | 0 -25        | 0.5            |
| AOX [µgCl/L]                                    | 320 -3500    | 2000           |
| Arsenic (As) [µg/L]                             | 5 -1600      | 160            |
| Cadmium (Cd) [µg/L]                             | 0.5 -140     | 6              |
| Cobalt (Co) [µg/L]                              | 4 - 950      | 55             |
| Nickel (Ni) [µg/L]                              | 20 -2050     | 200            |
| Plomb (Pb) [µg/L]                               | 8 -1020      | 90             |
| Chrome (Cr) [µg/L]                              | 30 -1600     | 300            |
| Cuivre (Cu) [µg/L]                              | 4 -1400      | 80             |
| Mercure (Hg) [µg/L]                             | 0.2 -50      | 10             |

Tableau 2.9 Analyse de lixiviat (paramètres ne variant pas entre la phase acétique et méthanogénique); Stegmann, Ehrig (1989)

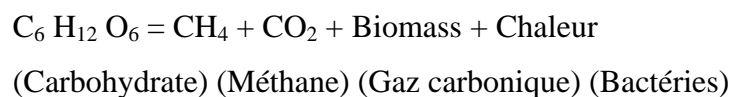
## **f - Risques environnementaux et sanitaires liés aux lixiviats**

Les lixiviats représentent une grande part de la pollution liée à une décharge. Contrairement aux biogaz, qui aisément dispersé dans l'atmosphère, les lixiviats, de part leur nature liquide, est une source concentrée de polluants. Le plus grand risque lié à la production de lixiviats est la contamination de la nappe phréatique. Cela aurait pour conséquence de polluer les puits d'eau de consommation et donc de priver la population d'un élément vital à sa survie. Dans le même ordre d'idée, il est nécessaire de ne pas utiliser les lixiviats comme eau de consommation. En cas de consommation d'eau polluée par les lixiviats, les risques encourus sont de graves intoxications pouvant entraîner des maladies irréversibles et la mort. Signalons également que la pollution des réserves d'eau potable par des micro-organismes pathogène peut provoquer des épidémies. Au-delà de ces considérations, les lixiviats doivent être traité comme des substances extrêmement dangereuses. Il est nécessaire d'en organiser la collecte et le traitement afin de limiter au maximum les conséquences sur l'environnement et la santé.

### **2.9.2 Biogaz**

La majorité du biogaz produit vient du processus anaérobie qui est très complexe et qui dépend de nombreux paramètres.

Le biogaz et le lixiviat sont les résultats de l'activité bactérienne dans une décharge et l'ensemble de la décomposition de la matière organique peut être représenté par l'équation suivante :



Les facteurs environnementaux majeurs qui affectent la vitesse et l'ampleur de la décomposition biochimique dans une décharge sont l'humidité, la température, la perméabilité des sols de couverture, la pluviométrie, le degré de résistance des déchets à l'attaque bactérienne et le type de traitement des déchets avant mise en décharge. L'humidité est un facteur essentiel pour la survie des bactéries, la teneur en eau idéale est celle qui se rapproche de la saturation. Elle peut devenir un facteur limitant pour la réaction biologique si elle tombe au-dessous de 40% ; avec cessation de toute activité bactérienne pour une teneur en eau inférieure à 20%.

En général, une décharge passe par 03 phases différentes de décomposition avec différents types de bactéries prédominantes pour chaque phase. La figure 2.6 ci-dessous illustre ces changements:

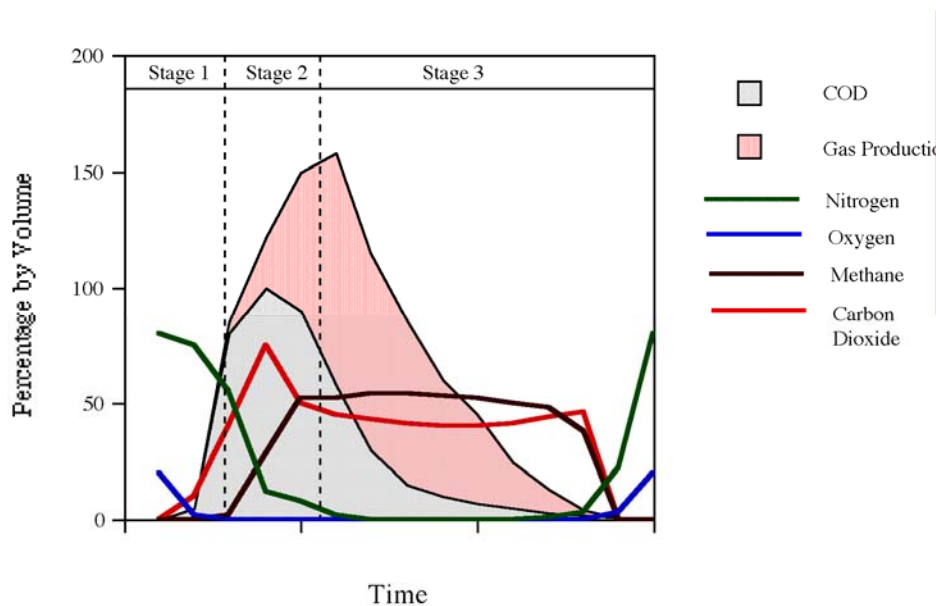


Figure 2.6. Phases de décomposition dans une décharge

- Phase 1: Les déchets solides sont décomposés en processus aérobie. A mesure que l'oxygène est épuisé, des microorganismes anaérobiques commencent à se développer. Cette première phase anaérobie est caractérisée par un faible pH, une forte production d'acide volatil, une forte demande chimique en oxygène (DCO), une forte conductivité et une faible production de méthane.
- Phase 2 : Avec le temps, les bactéries productrices de méthane deviennent prédominantes. C'est la seconde phase du processus anaérobie de décomposition. Les bactéries dégradent les acides volatils en méthane et en gaz carbonique (dans un rapport de 50-50 approximativement). Il en résulte une augmentation du pH vers des valeurs plus neutre (7-8), accompagné par une chute dans la DCO.
- Phase 3 : C'est la phase de maturation ou le processus de la phase 2 continue mais diminue graduellement en intensité avec la décomposition.

Le méthane,  $CH_4$ , et le gaz carbonique,  $CO_2$ , sont les deux produits majeurs de la méthanogène, étape finale et la plus longue du processus anaérobie. Notons que 90 % de la production de méthane d'une décharge se fait au départ de la cellulose contenue dans les papiers, cartons, bois, etc. L'oxygène,  $O_2$ , et l'azote,  $N_2$ , ne sont présents que s'il y a infiltration d'air frais dans le cœur de la décharge. Le tableau 2.10 ci-dessous montre des

valeurs typiques de production de gaz de décharge avec des valeurs maximales relevées sur des sites de décharges.

| Composant           | Valeur type<br>(% en volume) | Maximum observé<br>(% en volume) |
|---------------------|------------------------------|----------------------------------|
| Méthane             | 63.8                         | 88.0                             |
| Gaz carbonique      | 33.6                         | 89.3                             |
| Oxygène             | 0.16                         | 20.9                             |
| Nitrogène           | 2.4                          | 87.0                             |
| Hydrogène           | 0.05                         | 21.1                             |
| Monoxyde de carbone | 0.001                        | 0.09                             |

Tableau 2.10 Valeurs typiques de production de gaz de décharge

Le méthane et l'hydrogène qui sont des gaz inodores et incolores sont inflammables en présence d'oxygène et sont par conséquent potentiellement explosifs dans un environnement confiné. Le méthane n'est pas toxique mais sa migration dans la zone des racines peut provoquer la mort de la végétation en surface. On considère que 5 à 10 % des émissions de méthane dans l'atmosphère proviennent des décharges et que cette proportion risque d'augmenter (Gendebien, 1992).

Le gaz carbonique,  $\text{CO}_2$ , est un produit, inodore et non-inflammable. A forte concentration, il provoque des malaises et des maux de tête et il a une influence sur le rythme cardiaque et sur la pression sanguine. Il joue également le rôle d'asphyxiant en prenant la place de l'oxygène dans l'air. Le monoxyde de carbone,  $\text{CO}$ , est un gaz très toxique. Il provoque à très faible concentration des symptômes allant du mal de tête à la perte de connaissance. Il doit être pris très au sérieux car il peut entraîner la mort.



### 3.1 Introduction

Beaucoup de bentonites dérivent de l'altération in situ des cendres volcaniques (Grim, 1967). Les premières définitions du terme bentonite se rapportent à ce mode d'origine. Des études ultérieures ont montrées que des argiles désignées comme bentonite sur la base de leur composition et leurs propriétés peuvent avoir d'autres origines.

### 3.2 Contexte géologique

Les bentonites sont fréquentes dans le sous-sol en algérien. Certaines proviennent des cendres volcaniques comme celles de la vallée de la rivière du Chélif (figure 3.1), alors que d'autres ont été formées par l'altération des roches rhyolites.

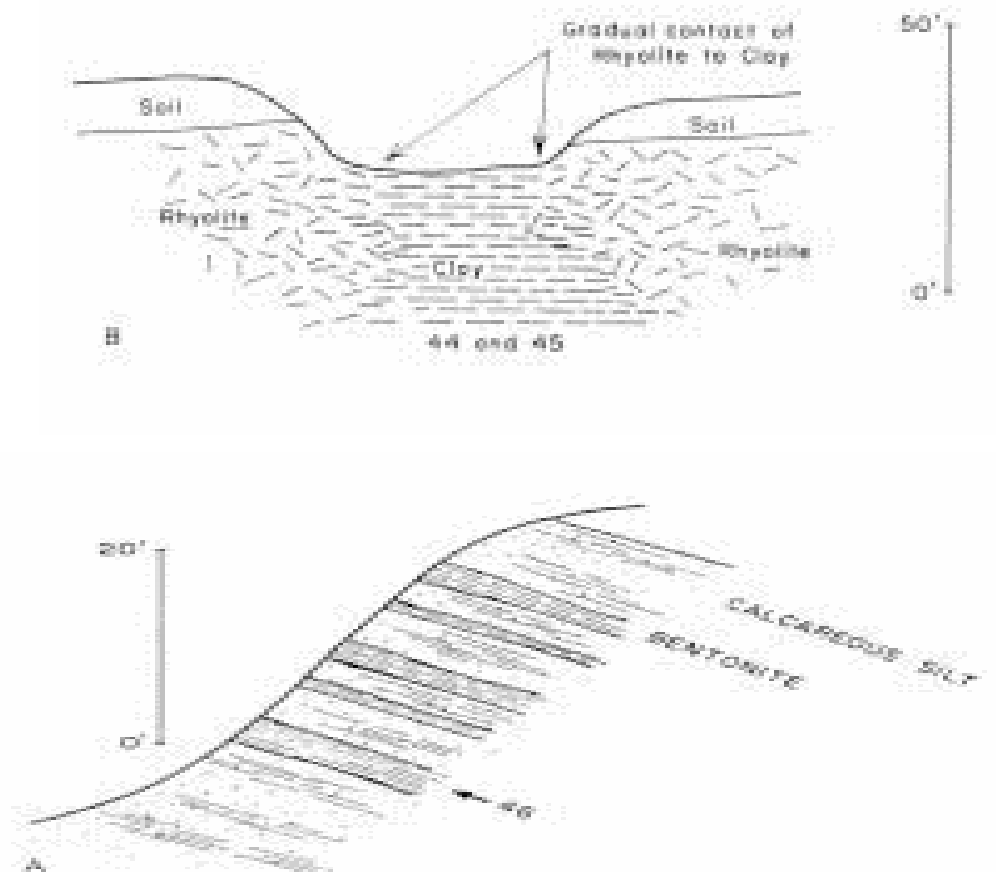


Figure 3.1 Deux profils à partir des dépôts bentonitiques algériens

Haut : in situ weathering, Bas: origine sédimentaire

Les bentonites formées par les cendres volcaniques varient en épaisseur de 10 centimètres à environ 5 mètres. Elles représentent des sédiments crétacé et tertiaire avec des alternances pyroclastiques et des coulées de lave. Cette stratification complexe indique une variation dans l'homogénéité et la teneur en smectite. Certaines de ces bentonites possèdent une teneur élevée en smectite avec le sodium comme cation majeur.

Les bentonites d'âge Miocène sont également fréquentes sous la forme de couches de quelques centimètres d'épaisseur. Elles proviennent de cendres volcaniques. Hammam Boughrara, dans la région de Maghnia, est connue pour sa bentonite riche en smectite de haute qualité (tableau3.1).

Les gisements d'argiles bentonitiques brutes de Hammam Boughrara sont situés à 15 Km à l'Est de la ville de Maghnia. Les argiles bentonitiques se développent autour d'un dôme hypovolcanique de rhyolite de direction NO-SE et mis en place au Miocène. Les volcanites affleurent parmi des terrains mio-pliocènes, et des alluvions quaternaires. L'argile bentonitique provient de l'altération des rhyolites et des pyroclastites associées.

| Gisements                      | Paramètre                   | Probable | Possible | Total |
|--------------------------------|-----------------------------|----------|----------|-------|
| Dar Embarek I                  |                             | 1860     | 2860     | 4720  |
| Dar Embarek II                 | Réserves en 10 <sup>3</sup> |          | 663      | 663   |
| *Roussel I                     | tonnes                      | 1635     | 1510     | 3140  |
| Roussel II                     |                             | 1640     | 740      | 2380  |
| Total des réserves géologiques |                             |          | 10.903   |       |

\* Gisement en exploitation

Tableau3.1. Réserves des gisements d'argiles bentonitiques de Hammam Boughrara, Maghnia (fiche technique, Bental Maghnia, ENOF).

### **3.3 Géologie de la région**

Dans la région où se trouve le gisement de bentonite (figure 3.2), on rencontre les différentes formations suivantes:

Les dépôts du Jurassique supérieur et moyen qui sont les plus anciens et affleurent à l'Est du côté des Monts de Tlemcen. Ils sont constitués de micaschistes et de schistes satinés.

Les dépôts du crétacé se rencontrent au Nord et sont couverts partiellement de dépôts quaternaires.

Les dépôts du Tertiaire sont représentés par les basaltes et tufs associés. Ils se trouvent le long de la plaine de l'Oued Tafna. C'est là où se trouvent les gisements de bentonite de la région.

Les dépôts du Quaternaire : Sur ces dépôts, il n'y a pas d'études détaillées. Les conclusions sont basées sur des critères lithologiques en se basant sur les observations de terrain. On distingue un complexe quaternaire représenté par des dépôts lacustre-alluviaux où dominent des couches argileuses avec des graviers. Ces roches occupent la partie centrale de la plaine et se prolongent vers l'Est où se trouve le gisement de bentonite.

### **3.4 Géologie du gisement de bentonite**

Dans la colonne généralisée du gisement, nous avons distingué trois unités:

- En commençant de la surface, jusqu'à une profondeur de 2 m débute la terre végétale d'une couleur sombre, suivie par des argiles avec beaucoup de graviers.
- Sous l'unité décrite ci-dessus, se situent des dépôts argileux, parfois intercalés de sable. Leur épaisseur atteint parfois 3m. La couleur de ces argiles est beige.
- la troisième unité est représentée par des argiles marron – sombre qui se situent dans les horizons profonds. L'épaisseur de ces dernières est de 3 à 4 m. Cette unité devient rougeâtre par séchage à l'air.

Autour du gisement, on distingue un secteur pauvre en argile ou on observe des graviers et des limons prédominants.

En raison du relief escarpé, tout le gisement est traversé par des tranchées d'écoulement (figure 3.3).

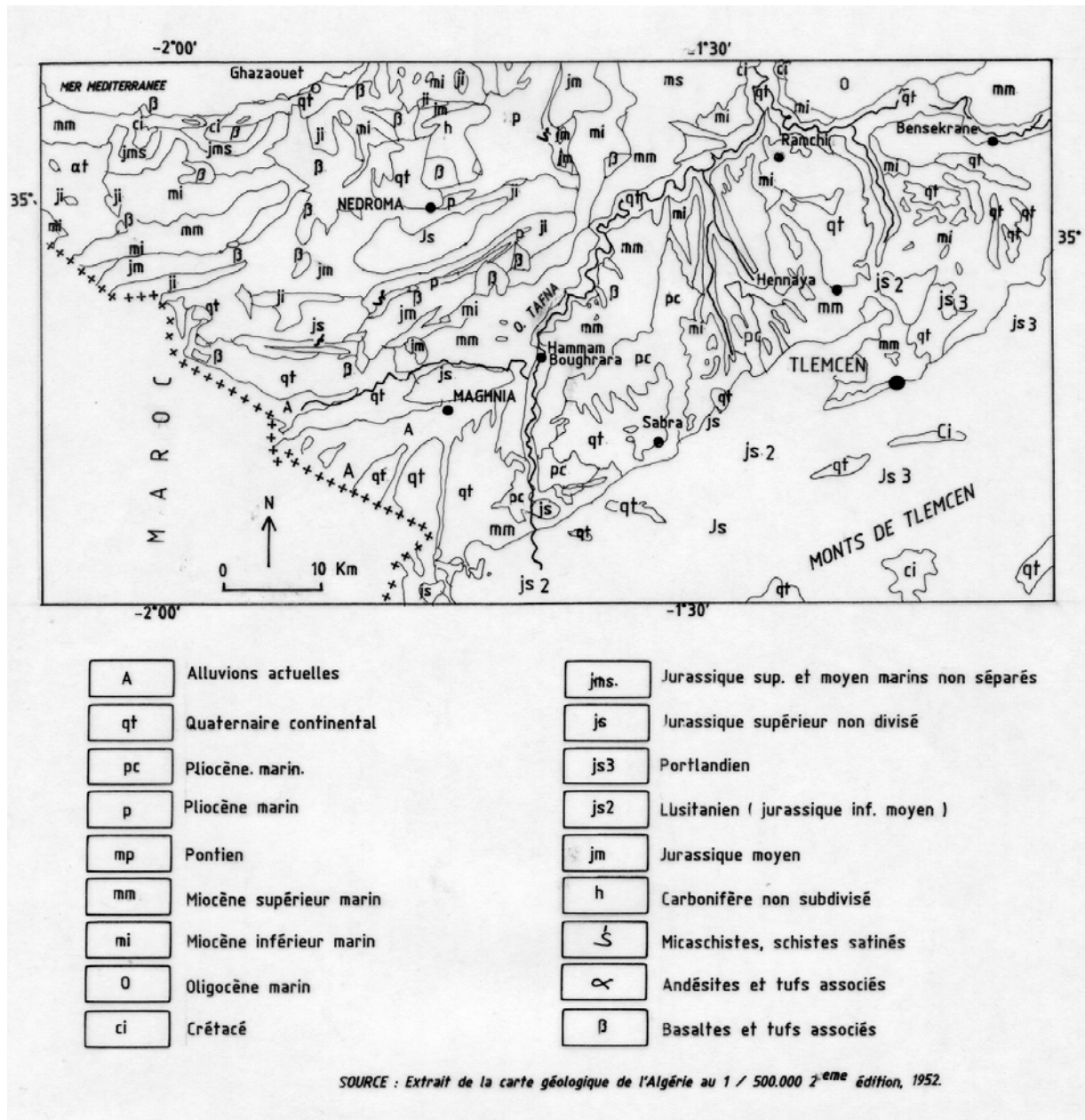


Figure3.2. Carte géologique de la région de Maghnia (source: Extrait de la carte géologique de l'Algérie au 1/500.000. 2<sup>ème</sup> Edition, 1952)



Figure.3.3 : Photos du gisement de bentonite de Hammam Boughraa (par l'auteur).

### 3.5. Occurrence de la bentonite en Algérie

La bentonite est produite à partir de plusieurs bassins volcaniques du Tertiaire à l'Ouest du pays, dans la région de Maghnia et de Mostaganem; ces gisements se trouvent à proximité de ports et sont tous accessibles par route ou par train. Le pays dispose d'un potentiel appréciable (Tableau.3.2) pour développer l'industrie de la bentonite.

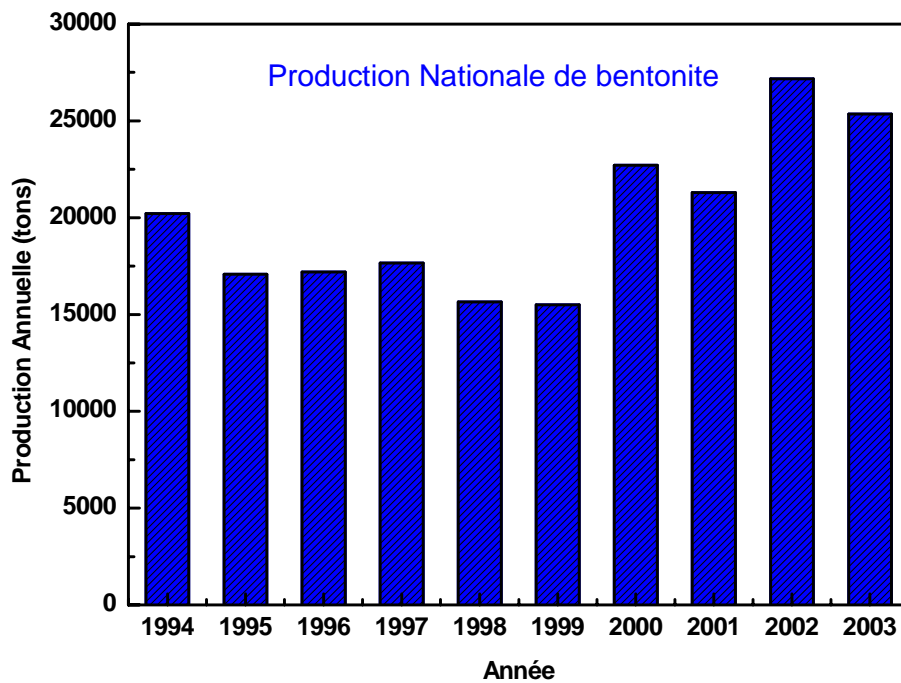


Tableau 3.2. Production nationale de bentonite pour les 10 dernières années (source: O.R.G.M)



## 4.1 Introduction

Le sol est généralement composé de trois phases de nature différente (solide, air et eau). Son comportement mécanique repose principalement sur les interactions inter-particules ainsi que sur l'action physique et chimique de l'eau et de l'air sur ces particules. La variabilité et l'hétérogénéité des dépôts naturels contribuent par ailleurs à la complexité du comportement du sol en tant que matériau de construction (Holtz, 1991). Les sols naturels non grossiers sont le plus souvent constitués d'un mélange de particules de différentes tailles (des argiles et limons micrométriques aux grains millimétriques contenues dans les sables). Les vides sont le plus souvent remplis soit d'eau (sols saturés) soit d'air (sols secs) ou des deux à la fois (sols non saturés).

Les phénomènes physico-chimiques jouent un rôle déterminant sur le comportement mécanique des sols argileux. La nature et la proportion des minéraux, la masse volumique et la teneur en eau sont les paramètres fondamentaux qui influent sur le comportement d'un sol (Giroud et Bottero, 1972). C'est pourquoi il est intéressant d'étudier la nature et l'évolution de ces phénomènes en fonction de la proportion d'argile, de teneur en eau et de la compacité des mélanges.

La classification géotechnique des sols est basée principalement sur la texture (granulométrie et argilosité). Celle-ci peut rendre compte, d'une façon directe, de l'arrangement et des proportions des principales classes granulométriques qui composent le sol à savoir l'argile (phyllosilicates) et le sable (quartz). La granulométrie s'applique notamment pour déterminer des paramètres tels que le diamètre maximal des grains  $d_{max}$ , le coefficient d'uniformité  $C_u$  et le pourcentage de fines (grains dont le diamètre est inférieurs à  $80\mu m$ ). L'argilosité qui est une caractéristique exclusive de la fraction fine consiste à déterminer les caractéristiques de plasticité  $I_p$  et la valeur au bleu  $V_B$ .

Ce chapitre est consacré aux essais de classification et d'identification des mélanges composés de sable jaune et de bentonite de Maghnia. C'est ainsi que des résultats d'un certain nombre d'essais fondamentaux tels que la granulométrie, les limites d'atterberg, la valeur au bleu et la perméabilité, sont présentés pour plusieurs mélanges ayant des proportions de bentonite variées.

Ensuite, on passera à l'étude de la compactabilité des mélanges sable-bentonite. Cette étape aidera à mieux comprendre l'effet de la bentonite et d'optimiser les méthodes de préparation des échantillons pour les essais de cisaillement.



Nous rappelons que l'objectif final étant d'obtenir un mélange qui représente le mieux possible les terrains d'imperméabilisations et les moyens à mettre en œuvre pour atteindre des caractéristiques physiques et mécaniques maîtrisables.

## 4.2 Caractéristiques des matériaux utilisés

### 4.21 Sable jaune

De nombreux travaux ont été réalisés avec ce matériau qui provient du Nord-Est de la ville de Constantine. Les caractéristiques fondamentales du matériau sont données, ci-dessous (tableau)

|   |         |
|---|---------|
| Coefficient d'Uniformité (Cu) = $D_{60} / D_{10}$ | 1.9     |
| Diamètre Effectif ( $D_{10}$ )                    | 0.38 mm |
| (Gs)  | 2.5     |
| Teneur en Eau                                     | ~ 3%    |

Tableau4.1 Caractéristiques physiques du sable jaune

### 4.22 Bentonite de Maghnia

La bentonite de Maghnia est utilisée notamment comme boue de forage et dans de nombreuses autres applications industrielles.

Quelques caractéristiques physiques de la bentonite de Maghnia sont données dans le tableau ci-dessous.

|  |                       |
|--|-----------------------|
| Surface Spécifique                         | 872 m <sup>2</sup> /g |
| (Gs)                                       | 2.72                  |
| Indice de Gonflement (Free Swell Index)    | 35 cm <sup>3</sup> /g |
| Absorption d'Eau à la Plaque (Plate Water) | 900%                  |
| Valeur au Bleu                             | 29.41                 |
| Ratio de gonflement ( $\beta$ )            | 6.20                  |
| pH   | 10.1                  |
| Limite de Liquidité                        | 216%                  |
| Indice de Plasticité                       | 120%                  |
| Limite de Retrait                          | 11%                   |
| Teneur en Eau - à la livraison -           | 12%                   |

Tableau 4.2 Propriétés physiques de la bentonite de Maghnia

### **4.3 Caractérisation physico-chimiques des mélanges sable bentonite**

Le comportement mécanique des sols en général est fortement lié à leur granularité et aux propriétés physico-chimiques de leurs constituants. Ainsi, avant d'aborder la question du comportement des mélanges, il est important de décrire ces mélanges et en particulier l'influence de la proportion d'argile sur les paramètres classiques d'identification des sols. Nous traiterons d'abord la question des caractéristiques physico-chimiques puis celle de la perméabilité.

#### **4.31 Caractéristiques physico-chimiques**

- Les limites d'Atterberg (NF P 94-051)

On caractérise les sols fins, le plus souvent, par les paramètres suivants (Mitchell, 1970) :

La limite de plasticité  $W_p$  : correspond à la teneur en eau suffisante pour permettre une certaine liberté de déplacement relatif des particules mais trop faible pour les éloigner au point de réduire fortement les forces de liaisons entre elles ;

La limite de liquidité  $W_L$  : correspond à la teneur en eau permettant un éloignement des particules suffisant pour annuler pratiquement les forces interparticulaires ce qui leur permet un libre déplacement relatif ;

L'indice de plasticité :  $I_p = W_L - W_p$  : celui-ci correspond à l'amplitude du domaine plastique dans lequel le matériau peut subir des déformations irréversibles à volume constant sous contraintes.

- Capacité d'adsorption du bleu de méthylène (NF P 94-06)

L'essai consiste à mesurer, par dosage la quantité de bleu de méthylène pouvant être adsorbée par le matériau. Cette quantité est rapportée par proportionnalité à la fraction 0/5 mm du sol. La valeur au bleu d'un sol est directement liée à la surface spécifique des particules qui le constituent. La bentonite de Maghnia présente une valeur au bleu de 29,4 g/100g ce qui correspond à une surface spécifique de 872 m<sup>2</sup>/g. Cette valeur élevée s'explique par la nature exceptionnellement fine des particules de la bentonite (85 % des particules inférieures à 2 $\mu$ ).

#### **4.32 Evaluation des caractéristiques des mélanges**

L'effet de la proportion de la bentonite dans le mélange est évalué par les limites d'Atterberg et la valeur au bleu.

Les limites d'Atterberg varient presque linéairement en fonction du pourcentage de bentonite (fig.a faire) Dans les mélanges de 8 à 22 % de bentonite pour lesquels on a pu déterminer expérimentalement les limites d'Atterberg, on constate que l'état hydrique de la fraction argileuse ( $w_k$ ) qui représente la pente de la droite varie assez peu ;

$$W_{Lk} = w_{Lm} / y$$

$$W_{Pk} = w_{Pm} / y$$

$W_{Lk}$  qui représente la pente de la droite ( $w_{Lm}$ ,  $y$ ) est égale en moyenne 1.36 (fig.4.2) pour  $y$  variant entre 10 et 22 %, alors que la limite de liquidité de la bentonite seule est de l'ordre de 216%.

$W_{Pk}$  qui représente la pente de la droite ( $w_{Pm}$ ,  $y$ ) est égale en moyenne 1.13 (fig.4.2). La limite de plasticité de la bentonite est de l'ordre de 120%.

L'état hydrique de la fraction de bentonite dans le mélange correspond à la limite de liquidité  $W_{Lk}$  ou de plasticité  $W_{Pk}$  de la bentonite pure. Pour ces mélanges, le rôle de la fraction sableuse se limite à un remplissage du volume et toute l'eau est associée à la fraction argileuse. Ceci a été déjà démontré par plusieurs auteurs tels que Skempton (1953) sur quatre sols argileux et Al-shayea et al. (2001) qui a étudié des mélanges sable-argile saoudiens.

A noter également qu'en utilisant des mélanges de sable et d'argile provenant du Japon, Kimura et al. (1994) ont obtenu la même tendance de variation. Et comme la détermination des limites est difficile au dessous de 10 % de bentonite, les auteurs proposent d'extrapoler la courbe pour obtenir ainsi des valeurs approchées des limites d'Atterberg pour des mélanges ayant une faible quantité d'argile.

L'hypothèse selon laquelle l'eau dans le sol est entièrement associée à la fraction argileuse peut être admise dans notre cas d'autant plus que les grains de sable constitué essentiellement de quartz n'ont pas d'affinité avec l'eau du fait qu'ils sont inertes et présentent une surface spécifique très faible. Casagrande a noté, en développant un outil pour la mesure de la limite de liquidité, que les minéraux non argileux (quartz et feldspath) ne développe pas de mélanges plastiques avec l'eau même lorsque les particules sont inférieures à 2  $\mu\text{m}$  (Mitchell, 1976). Sous cette hypothèse, on peut obtenir une relation entre les limites d'Atterberg d'un mélange et le pourcentage d'argile qui y est incorporée.

Les résultats obtenus sur les essais au bleu réalisés sur quatre mélanges (fig.4.1) mettent en évidence une évolution linéaire. Ceci vient du fait que la surface spécifique du sable et sa capacité d'échange ionique sont négligeables devant celle de la bentonite. A priori, on peut évaluer approximativement la valeur au bleu d'un mélange quelconque en connaissant celui de l'argile pure. Pour notre cas, on peut affirmer que la valeur au bleu d'un mélange sable-bentonite  $V_B$  sera égale à celle de la bentonite pure (29.4g/100g) multipliée par le taux de bentonite dans le mélange ( $y$ ).

$$V_B = 29,4 \cdot y$$

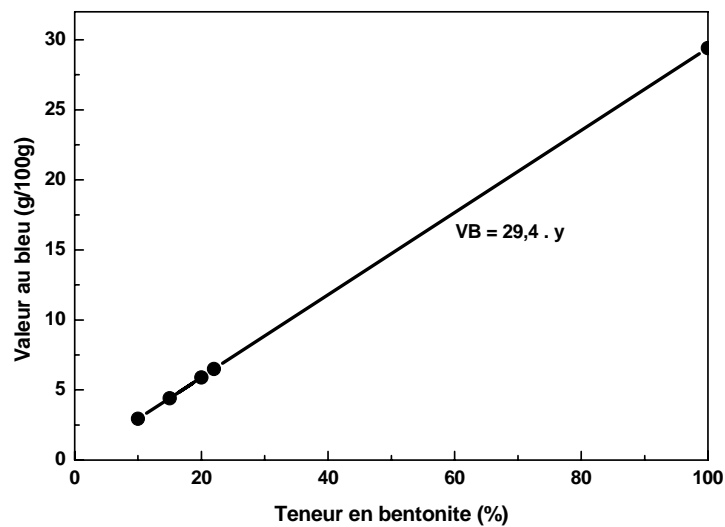


Figure4.1 Valeur au bleu en fonction de la proportion de bentonite dans le mélange

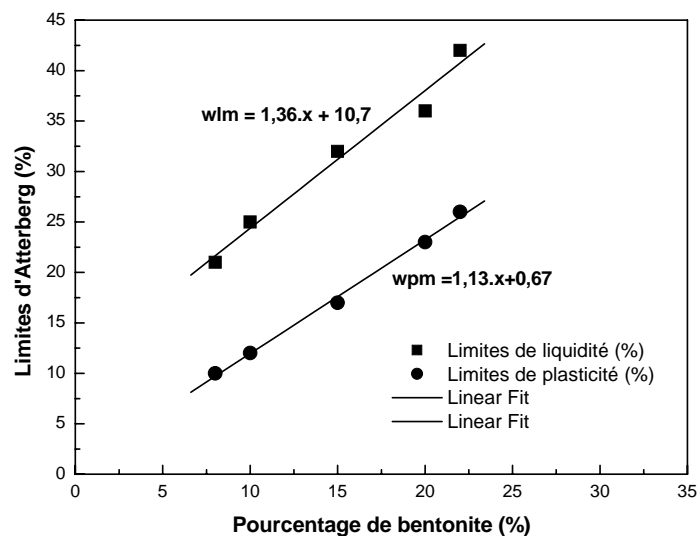


Figure4.2 Etat hydrique de la fraction argileuse

#### 4.4 Perméabilité des mélanges

Dans le contexte du stockage des déchets solides, les caractéristiques de perméabilité des mélanges sable-bentonite sont des paramètres importants pour la conception et la réglementation. La perméabilité des mélanges S-B est l'un des points les plus importants des contrôles sur les étanchéités réalisées à partir de sols naturels reconstitués et constitue une conformité de l'imperméabilisation. Elle définit un critère majeur de l'acceptation de la barrière ouvragée. La perméabilité est aussi considérée comme la caractéristique qui régit le comportement des sols argileux au compactage à de fortes teneurs en eau des mélanges sable-bentonite (Arquie, 1973). Les mesures de perméabilité ont été effectuées avec un perméamètre à charge variable intégré dans l'appareil oedométrique. Il consiste à créer une différence de charge entre le bas et le haut de l'échantillon qui conduit à un écoulement. Après avoir mesuré l'abaissement du niveau d'eau dans le tube de section connue pour un temps déterminé, on peut déduire le débit volumétrique. En connaissant la section de l'échantillon, on peut donc calculer la perméabilité. Elle est donnée par la formule suivante:

$$k = 2,3 \frac{a}{A} \frac{l}{\Delta t} \log \frac{h_1}{h_2}$$

Avec  $a$ ,  $A$  et  $l$  qui représentent respectivement : la section du tube, la section et la hauteur de l'échantillon.

$\Delta t$  c'est l'intervalle de temps entre  $t_1$  et  $t_2$

$h_1$  et  $h_2$  représentent la différence de charge à  $t_1$  et  $t_2$

Les résultats obtenus indiquent que le coefficient de perméabilité  $k$  subit une chute considérable en introduisant seulement 3% de bentonite dans le mélange. Ensuite la diminution de  $k$  se poursuit et devient modérée avec l'accroissement du taux de bentonite (fig.4.3).

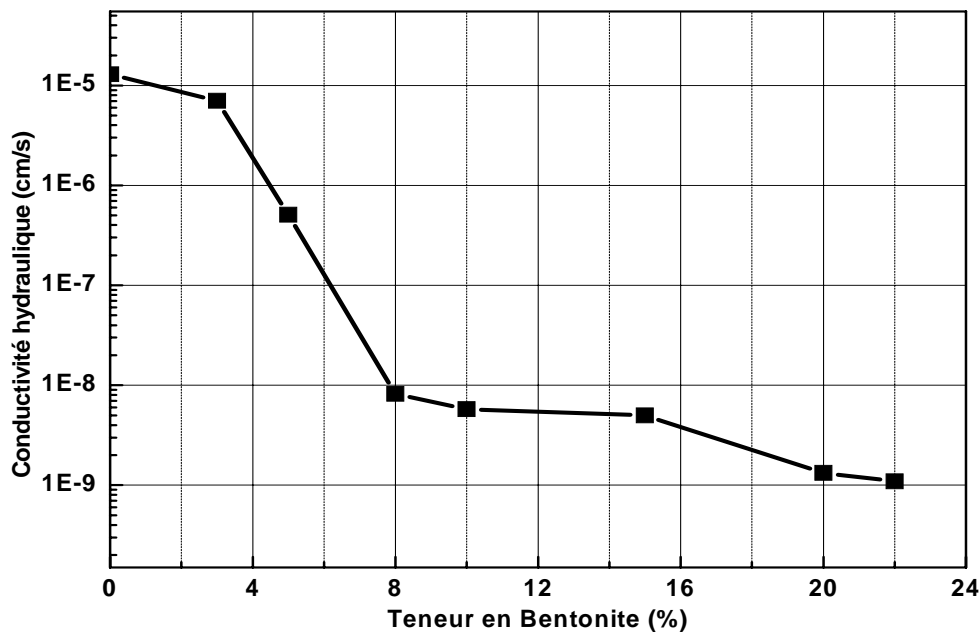


Figure 4.3 Conductivité hydraulique des mélanges sable bentonite en fonction de la teneur en Bentonite

La chute de  $k$  entre 0 et 8% de bentonite est certainement due au fait que le volume des vides initial du sable est rempli par les particules de bentonite et cela réduit considérablement les différents chemins d'écoulement qui existait auparavant. Au-delà de 15 % de bentonite, la perméabilité tend à se stabiliser puisque tous les vides existants ont été presque totalement occupés par les particules argileuses.

La réduction du coefficient de perméabilité  $k$  avec l'augmentation du taux de l'argile a été observée par Han (1998) pour des mélanges sable-bentonite ainsi que par Al-Shayea (2001) pour des mélanges sable-argiles naturelles.

Dans le tableau 4.3, sont récapitulés les essais réalisés sur sept mélanges ( $y = 0,3, 5, 8, 10, 15, 20, 22\%$ ). La perméabilité de la bentonite de Maghnia est prise d'une bentonite normale ; et celle du sable jaune a été déterminée par la formule de Hazen (Filiponnant et Hubert, 2000) :

$$k \text{ (m/s)} = 1.25 \times D_{10}^2$$

où  $D_{10}$  est le diamètre efficace des grains en centimètres.

Les essais de perméabilité étant très sensibles et délicats à réaliser sur les sols argileux, les mesures ont donc été prises à plusieurs intervalles de temps. Holtz

(1981) considère qu'une perméabilité de  $10^{-9}$  cm/s correspond à un drainage faible pour laquelle la méthode de perméamètre à charge variable convient bien, même si la perméabilité peut varier en raison de la migration des particules fines aux canaux préférentielles et de la présence de l'air dans les vides.

| <b>Bentonite<br/>%</b> | <b>Conductivité hydraulique<br/>k<br/>cm/s</b> | <b>Gonflement<br/>%</b> |
|------------------------|--|-------------------------|
| 0                      | $1.8 \times 10^{-5}$                           | 0.45                    |
| 3                      | $7.03 \times 10^{-6}$                          | 2.35                    |
| 5                      | $5.09 \times 10^{-7}$                          | 7.29                    |
| 8                      | $8.17 \times 10^{-9}$                          | 8.12                    |
| 10                     | $5.75 \times 10^{-9}$                          | 10.44                   |
| 15                     | $5.0 \times 10^{-9}$                           | 16.11                   |
| 20                     | $1.33 \times 10^{-9}$                          | 17.05                   |
| 22                     | $1.09 \times 10^{-9}$                          | 17.14                   |

Tableau 4.3 Récapitulation des essais de perméabilité à charge variable

## 4.5 Compactabilité des mélanges sable bentonite

### 4.51 Introduction

On définit la compactabilité d'un matériau par son aptitude au compactage. Celui-ci peut être considéré comme un effet statique ou dynamique qui s'exerce sur un sol pour réduire son volume des vides en réarrangeant les éléments d'une façon optimale en faisant intervenir le pouvoir lubrificateur de l'eau et de l'argile. Le compactage modifie certaines propriétés du sol, notamment la résistance mécanique, la perméabilité et la susceptibilité au tassement et au gonflement.

L'étude du comportement au compactage dynamique des petits échantillons est une première étape dans le cas des barrières d'étanchéité dans les centres de stockage avant de passer aux planches d'essais. Lorsque le matériau est 'qualifié' il est indispensable de vérifier que les paramètres mesurés en laboratoire peuvent être obtenus sur le site. Pour cette raison on a soumis plusieurs mélanges sable-bentonite au compactage dynamique. La nature des mélanges et le mode de compactage utilisés sont récapitulés dans le tableau ci-dessous.

| Types de compactage  | Types de mélanges (% de bentonite) |   |   |   |    |    |    |    |
|----------------------|------------------------------------|---|---|---|----|----|----|----|
|                      | 0                                  | 3 | 5 | 8 | 10 | 15 | 20 | 22 |
| Compactage dynamique | 7                                  | 7 | 7 | 7 | 8  | 5  | 7  | 6  |

Tableau 4.4 Récapitulatif du nombre d'essais de compactage réalisés

### 4.52 Compactage dynamique

- Description de l'essai et appareillage :

Dans le cadre de cette étude, le compactage a été effectué selon le principe de l'essai Proctor Normal (NF P 94-093). L'essai consiste à compacter dans un moule normalisé, à l'aide d'une dame normalisée, selon un processus bien défini, l'échantillon de sol à étudier et à mesurer sa teneur en eau et son poids spécifique sec après compactage. L'essai est répété plusieurs fois de suite sur des échantillons portés à différentes teneurs en eau. On définit ainsi plusieurs points d'une courbe ; on trace cette courbe qui représente un maximum dont l'abscisse est la teneur en eau optimale et l'ordonnée la densité sèche optimale.



Pour ces essais on a utiliser, à cause de la finesse des grains du sol, le moule Proctor ( $\phi_{\text{moule intérieur}} = 101,6 \text{ mm} / H = 117 \text{ mm} \quad V_{\text{moule proctor}} = 948 \text{ cm}^3$ ). Le choix de l'intensité de compactage est fait en fonction de la surcharge que va subir l'ouvrage au cours de sa durée de vie, une résistance moyenne a été retenue pour reproduire l'état de contrainte dans une décharge de déchets.

Le tableau ci-dessous résume les conditions de chaque essai selon le moule retenu (norme NF P 94-093)

|               | Masse de la dame (Kg) | Hauteur de chute (cm) | Nombre de coups par couche | Nombre de couche | Energie de compactage ( $\text{kJ} / \text{m}^3$ ) |
|---------------|-----------------------|-----------------------|----------------------------|------------------|--|
| Essai Proctor | Normal<br>2,490       | 30,50                 | 25 (moule Proctor)         | 3                | 587  |
|               |                       |                       | 55 (moule CBR)             | 3                | 533  |
|               | Modifié<br>4,540      | 45,70                 | 25 (moule Proctor)         | 5                | 2680   |
|               |                       |                       | 55 (moule CBR)             | 5                | 2435   |

#### 4.6 Résultats obtenus

Les courbes de compactage dynamique pour plusieurs mélanges sont présentées sur la figure 4.4.

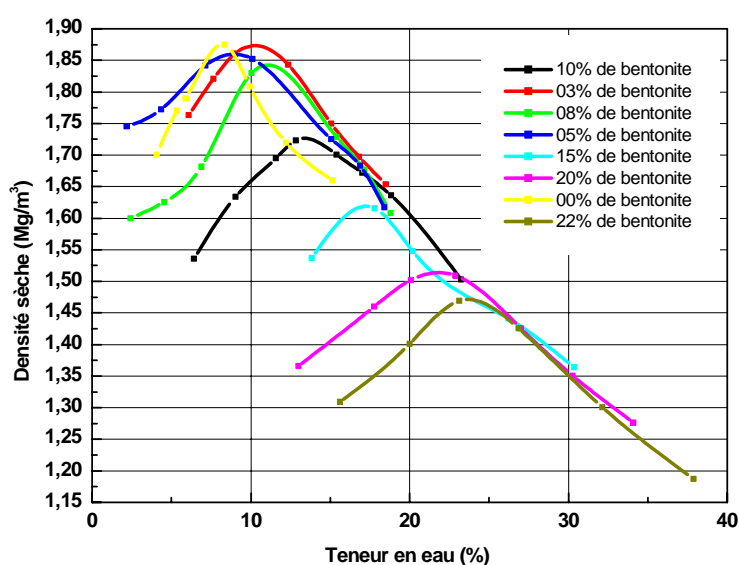


Figure 4.4 Courbes Protor normal obtenues sur les différents mélanges

La figure 4.4 met en évidence que le mélange à 3% de bentonite correspond à une densification optimale (masse volumique sèche la plus élevée). Pour les pourcentages élevés de bentonite dans le mélange, on peut constater une diminution de la masse volumique sèche à l'optimum Protor normal (OPN).

Par ailleurs, la teneur en eau à l'OPN augmente avec la proportion de la fraction argileuse ce qui est tout à fait normal, puisque c'est elle qui contient presque la totalité de l'eau.

Enfin, la sensibilité à l'eau des mélanges se traduit par des formes de courbes variées. Pour les proportions de bentonites de 0 à 10 %, la courbe de compactage présente une forme accentuée qui illustre l'importance des interactions entre argile, sable et eau dans le processus de compactage. Au-delà de 10% de bentonite, les courbes

deviennent plus étalées du fait de l'augmentation progressive de la quantité de bentonite dans le mélange.

Nous donnons sur la figure 4.5 (a, b, c, d), les courbes de compactages obtenus pour les mélanges 0, 3, 5, 8, 10, 15,20 et 22 % de bentonite

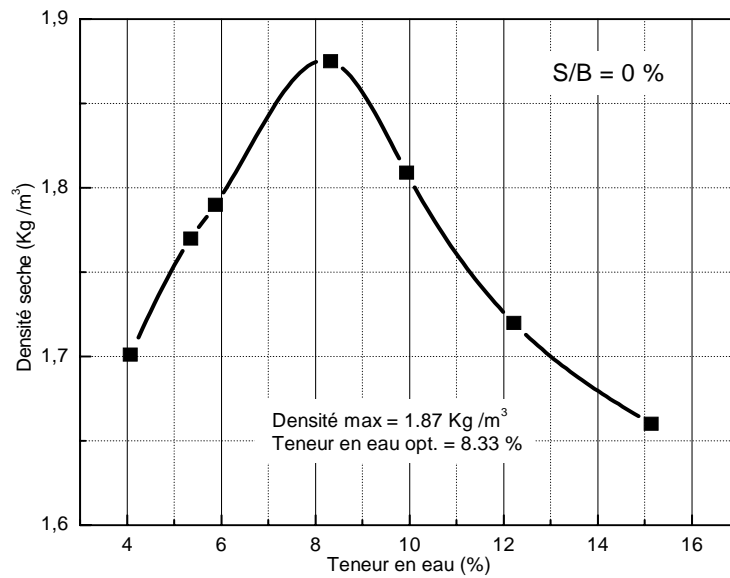


Figure 4.5 a : Résultats des essais de compactage réalisés sur les mélanges sable/bentonite.

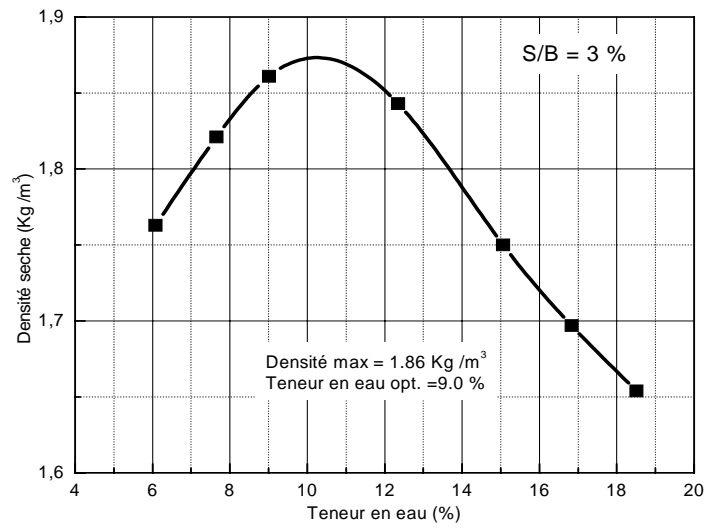


Figure 4.5 b : Résultats des essais de compactage réalisés sur les mélanges sable/bentonite.

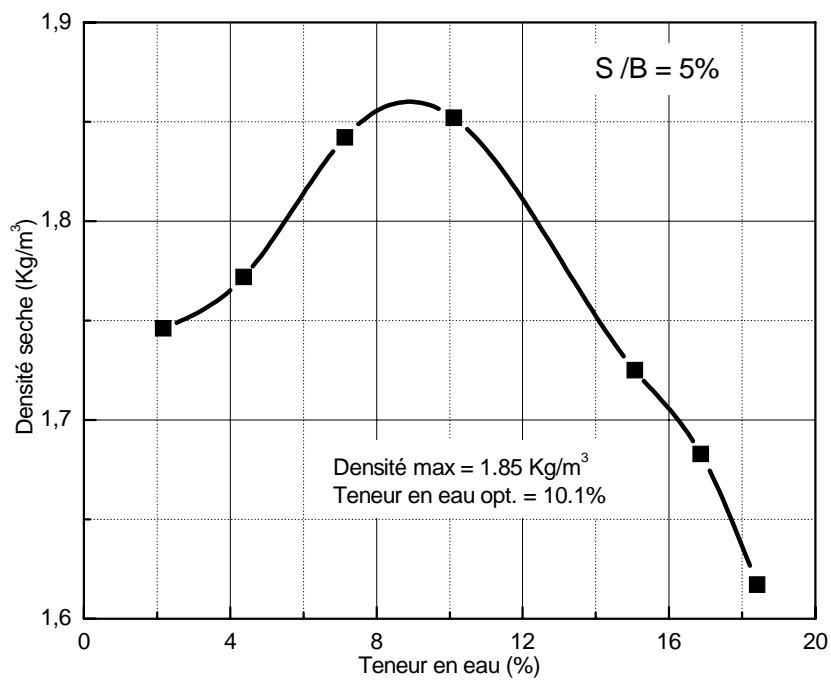


Figure 4.5 c : Résultats des essais de compactage réalisés sur les mélanges sable/bentonite.

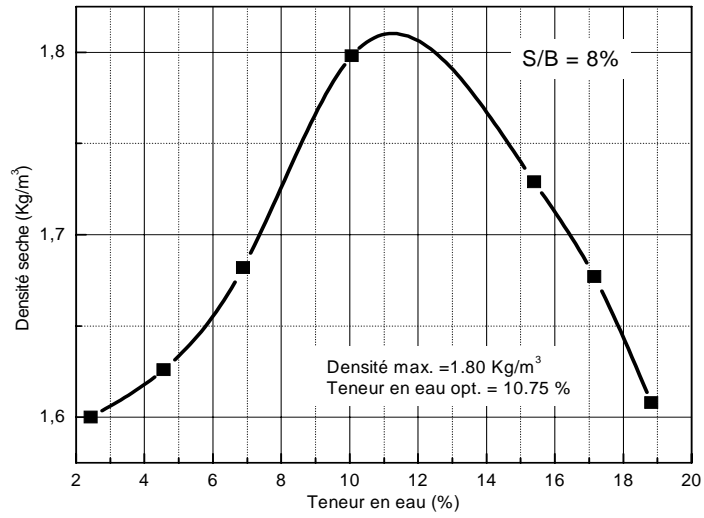


Figure 4.5 d : Résultats des essais de compactage réalisés sur les mélanges sable/bentonite.

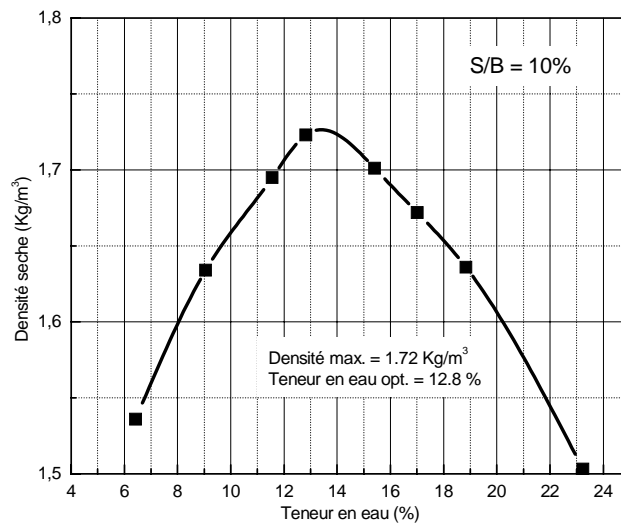


Figure 4.5 e : Résultats des essais de compactage réalisés sur les mélanges sable/bentonite.

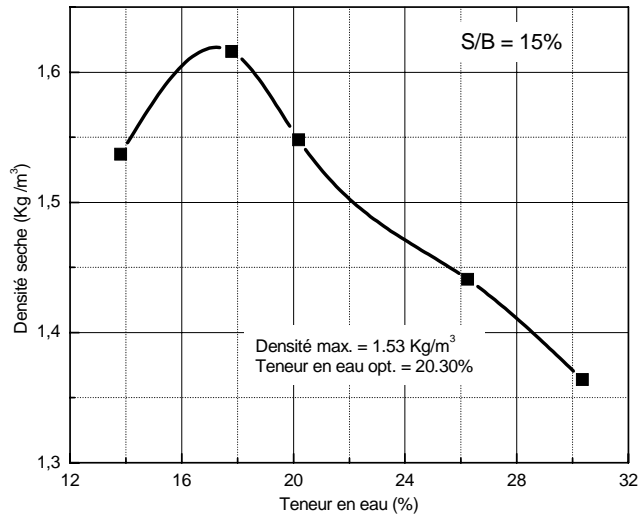


Figure 4.5 f : Résultats des essais de compactage réalisés sur les mélanges sable/bentonite.

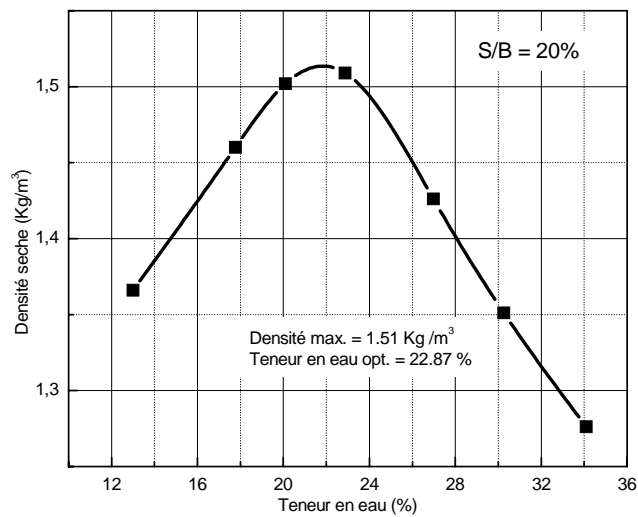


Figure 4.5 g : Résultats des essais de compactage réalisés sur les mélanges sable/bentonite.

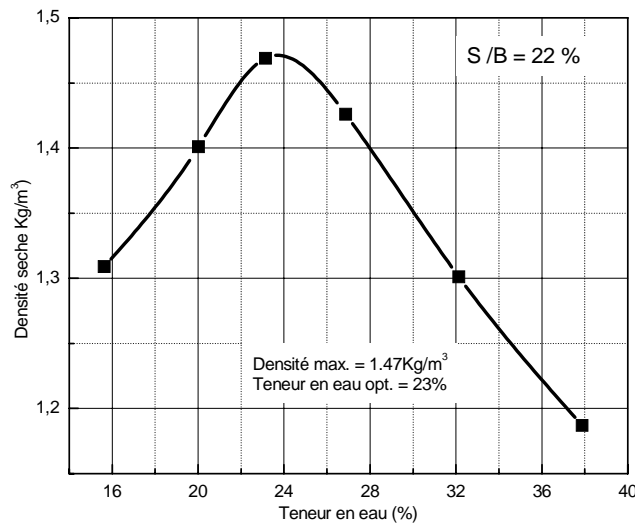


Figure 4.5 h : Résultats des essais de compactage réalisés sur les mélanges sable/bentonite.

#### 4.7 Analyse et interprétation des résultats de compactage

Le rôle de l'argile dans les mélanges lors du compactage est analogue à celui de l'eau dans le compactage classique des sols (courbe présentant des masses volumiques sèches maximales pour des teneurs en eau optimales). Lorsque la proportion de bentonite ne dépasse pas une certaine valeur ( $b=10\%$ ), elle joue un rôle lubrifiant sur les particules non argileuses grâce à sa déformabilité et sa capacité d'adsorption d'eau et en même temps elle permet de remplir les vides ménagés par les grains de sable pour faire augmenter la compacité du mélange. En revanche, à des taux plus élevés le sable sera remplacé par des éléments argileux qui occupent un volume de plus en plus important et dont la masse volumique est relativement faible.

Cette évolution de la masse volumique sèche à l'optimum Proctor normal en fonction du pourcentage d'argile est conforme aux résultats obtenus par plusieurs auteurs à savoir, Chalermyanont & Arrykul (2004) et Magistris et al (1998) qui ont trouvé une teneur en argile optimale de 7% et 5% respectivement. Notre pourcentage optimal qui est relativement faible (3%) par rapport à celui obtenu par ces auteurs est certainement dû à la différence dans la nature granulométrique et minéralogique des matériaux utilisés dans cette étude.

#### 4.71 Influence de la fraction argileuse

Dans un sol granulaire avec de la bentonite, plus la teneur en bentonite augmente, plus grand sera le potentiel de changement volumétrique en relation avec les variations de la teneur en eau.

En assumant des conditions de saturation et que toute l'eau est associée à la bentonite, la quantité nécessaire de cette dernière pour remplir les vides intergranulaire afin d'empêcher tout contact entre les grains de sable peut être estimée comme fonction de la teneur en eau. Les relations entre masse et volume pour un sol complètement saturé sont montrées sur la figure 4.6 et sont exprimé comme fonction de la teneur en argile  $c$ .

La teneur en argile est définie comme pourcentage de la masse solide.

Le volume des vides de la phase granulaire est  $e_g V_g$  ou  $e_g$  représente l'indice des vides de la phase granulaire seule et  $V_g$  le volume des solides de cette dernière.  $\rho_w$  est la densité de l'eau et  $W_s$  la masse des solides.

$$V_v = e_g V_g = e_g \left[ \frac{(1-c)W_s}{G_s \rho_w} \right]$$

$$V_w + V_{\text{bent}} = \frac{wW_s}{\rho_w} + \frac{cW_s}{G_s \rho_w}$$

Si la bentonite et l'eau remplissent les vides de la phase granulaire, alors

$$\frac{wW_s}{\rho_w} + \frac{cW_s}{G_s \rho_w} = \frac{(1-c)W_s}{G_s \rho_w} e_g$$

$$w + \frac{c}{G_s} = \frac{(1-c)e_g}{G_s}$$



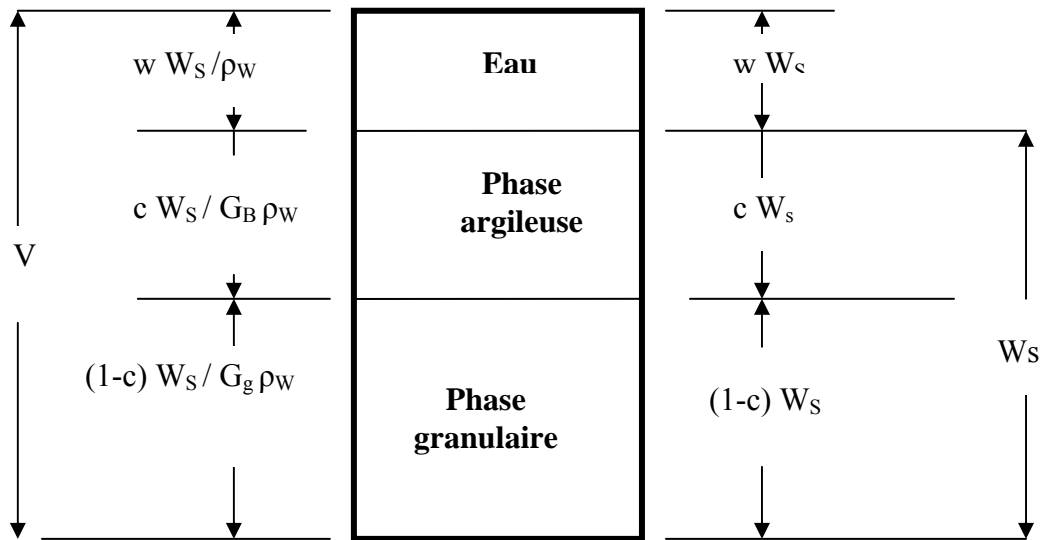


Figure 4.6 Relations entre les phases bentonite- matériau granulaire

Le volume des vides du sable dans cette étude (sable jaune) varie entre 0.9 pour un état relativement lâche (densité sèche =  $1.65 \text{ g/cm}^3$ ) et 0.45 pour un état relativement dense (densité sèche =  $1.85 \text{ g/cm}^3$ ). La densité spécifique du sable est de 2.5 celle de la bentonite (fraction argileuse) est de 2.72. En insérant ces valeurs dans l'équation (4.4), on a :

$$w + \frac{c}{2.72} = \frac{(1-c)e_g}{2.5}$$

$$c = \frac{\frac{e_g}{2.5} - w}{\frac{1}{2.72} + \frac{e_g}{2.5}}$$

La figure 4.7 montre la relation entre la teneur en bentonite nécessaire au remplissage des vides et la teneur en eau de l'ensemble du mélange. Le rapport du vide granulaire

sélectionné pour le sable est de 0.40 pour l'optimum Proctor ( $\rho_s = 1.72 \text{ g/cm}^3$  et  $w = 12.80\%$ ) pour une teneur en bentonite de 10%.

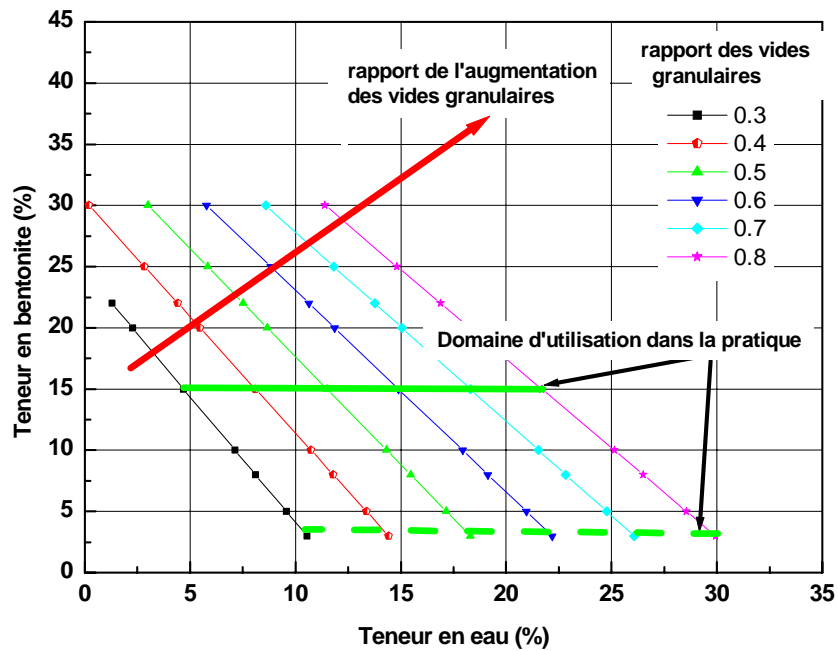


Figure 4.7. Teneur en bentonite nécessaire pour remplir les vides pour différents rapports de vide granulaire

#### 4.72 Optimisation de la compacité d'un mélange sable-bentonite

- Calcul du taux critique d'ajout de bentonite dans les mélanges sable bentonite

Les plusieurs recherches, sur les sols amendés par de la bentonite, ont établies que la perméabilité de ces sols décroît avec accroissement du pourcentage d'ajout de bentonite. Cependant le taux de diminution de la perméabilité devient tellement faible au-delà d'un certain pourcentage de bentonite ajoutée. Afin de trouver ce pourcentage critique d'ajout de bentonite, un nouveau concept appelé ' macro vides ratio ' est introduit qui tient compte du gonflement de la bentonite. Ensuite le pourcentage critique d'ajout de bentonite est défini comme le ratio qui correspond à un macro vides ratio de zéro.

- Calcul du macro vides ratio  $e_0$

Comme la bentonite possède la propriété de gonfler, il est rationnel d'assumer que le volume des vides disponible à l'eau d'occuper est ce volume moins le volume des solides de la bentonite gonflée et du sable ramené au volume total. Le rapport de ce volume et du volume de sable est défini comme étant le macro vide ratio  $e_m$ .

La figure 4.8 montre un modèle des phases d'un mélange sable bentonite où :

$V$  : volume total

$V_s$  : volume des grains solides du sable

$V_b$  : volume des grains solides de la bentonite

$V_o$  : volume des macro vides après gonflement total de la bentonite

$m_s$  : masse du sable

$m_b$  : masse de la bentonite

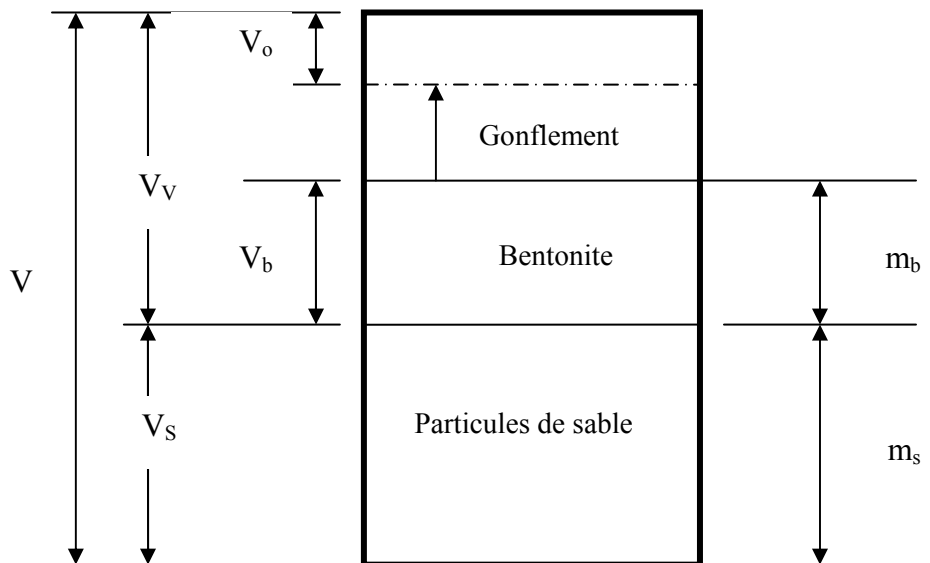


Figure 4.8 Modèle des phases d'un mélange sable bentonite

Le volume total peut être exprimé :

$$V = \frac{m_s + m_b}{\rho_{sb}} = \frac{1 + \alpha/100}{\rho_{sb}} m_s \quad (1)$$

Où,  $\alpha$  est le pourcentage d'ajout de bentonite et  $\rho_{sb}$  est la densité sèche du mélange sable bentonite.

$\alpha$  est définie comme étant :

$$\alpha = \frac{m_b}{m_s} \times 100 (\%) \quad (2)$$

Le volume de la masse solide de sable et de bentonite respectivement,  $V_s$  et  $V_b$  sont:

$$V_s = \frac{M_s}{\rho_s} \quad (3)$$

$$V_b = \frac{m_b}{\rho_b} = \frac{\alpha/100}{\rho_b} m_s \quad (4)$$

Où,  $\rho_s$  est la densité sèche du sable et  $\rho_b$  est la densité sèche de la bentonite.

Alors le macro vides ratio après le gonflement  $\beta$  fois du volume de la bentonite sèche peut être exprimé:

$$e_- = \frac{V_o}{V_s} = \frac{V - V - \beta.V_b}{V_s} \quad (5)$$

En substituant les équations (2), (3) et (4) dans l'équation (5) et (6), on obtient:

$$e_- = \frac{\frac{1 + \alpha/100}{\rho_s b} m_s - \frac{\alpha/100}{\rho_b} m_s}{\frac{m_s}{\rho_s}} - 1 = \rho_s \left( \frac{1 + \alpha/100}{\rho_s b} - \frac{\alpha/100 \cdot \beta}{\rho_b} \right) - 1 \quad (6)$$

- Détermination du pourcentage critique d'ajout pour les mélanges étudiés:

La figure 4.9 montre une relation entre le pourcentage d'ajout de la bentonite  $\alpha$  et le macro vides ratio  $e_-$ . Toujours d'après la figure, le macro vides ratio diminue avec l'augmentation du pourcentage d'ajout de bentonite  $\alpha$ . Il est alors clair qu'il existe un certain pourcentage d'ajout de bentonite qui donne un macro vides ratio égale à 0. Il peut être appelé le pourcentage critique d'ajout de bentonite  $\alpha_{critique}$  ( $\alpha_{cr}$ ).

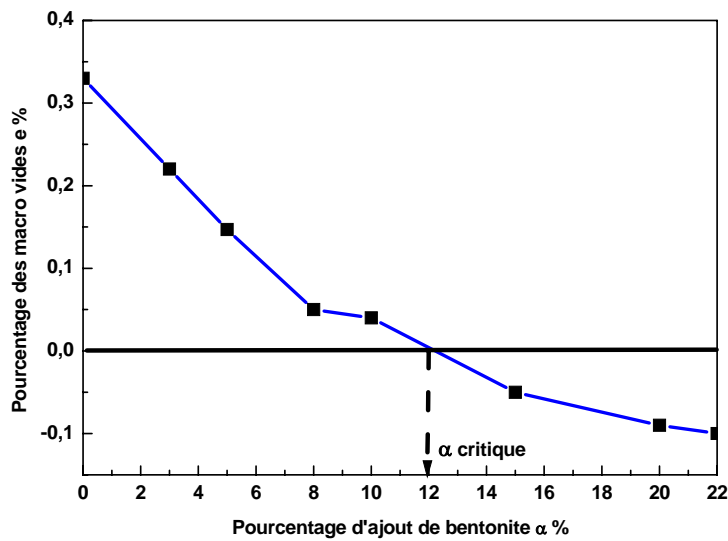


Figure 4.9 Relation entre le pourcentage d'ajout de bentonite et le macro vides ratio pour les mélanges étudiés

### 4.7.3 Conclusions

La valeur au bleu varie linéairement avec le pourcentage d'argile incorporée dans le mélange. Le rôle de la fraction sableuse se limite à un remplissage de volume étant donné que sa surface spécifique et sa capacité d'échange ionique sont négligeables devant celles de la bentonite. La relation entre les limites d'Atterberg et la proportion d'argiles est linéaire au-delà de 10 % de bentonite.

L'augmentation du taux de la bentonite fait diminuer la perméabilité des mélanges jusqu'à la limite de 10% au-delà, les valeurs de  $k$  tendent à se stabiliser.

Le comportement au compactage dynamique des mélanges sable-bentonite de Maghnia est fortement lié à la proportion argileuse qui y incorporée. Celle-ci, grâce à sa déformabilité, joue un rôle de lubrifiant sur les particules non argileuses des mélanges en même temps qu'elle assure le remplissage des vides qui existent entre les grains de sable. Par voie de conséquence, elle fait augmenter la compacité au cours du compactage jusqu'à une proportion optimale. Au-delà, son rôle de lubrifiant devient de plus en plus faible et la masse volumique sèche maximale tend vers la plus faible valeur qui correspond à celle de la bentonite seule.

Pour la suite de cette recherche, il a été décidé de travailler avec un mélange composé de 10 % de bentonite et de 90% de sable. Ce pourcentage a été sélectionné parce qu'il reste proche de la moyenne couramment utilisée dans la pratique de l'imperméabilisation par les mélanges sable bentonite.

## **4.8 Caractérisation mécanique par cisaillement direct à la boîte**

### **4.8.1 Préparation du matériau**

La préparation du matériau se fait par malaxage manuel des trois constituants que sont le sable, la bentonite et l'eau. Les quantités de sable et d'argile sont déterminées selon un pourcentage massique et la teneur en eau est définie comme étant le rapport entre le poids de l'eau et celui du solide (sable et bentonite).

On commence d'abord par l'humidification de la fraction argileuse afin de créer une certaine capillarité et faciliter les liaisons entre les grains de sable et les particules d'argiles. L'introduction de la fraction argileuse se fait ensuite, graduellement sans arrêter le malaxage.

Afin de permettre un certain curage, l'échantillon ainsi préparé est conservé dans un sac hermétique pendant 24 heures environ avant essai.

### **4.8.2. Description et mode opératoire**

Des essais de cisaillement rectiligne direct ont été réalisés sur plusieurs mélanges. L'échantillon est préalablement compacté en deux couches par application, durant 15 à 30 minutes, d'une contrainte de 120 kPa directement dans la boîte.

Deux séries d'échantillons ont été préparées. La première série a été testées juste après la période de consolidation, quant à la deuxième série, les échantillons ont été inondés par de l'eau pendant une semaine avant le cisaillement. L'inondation des spécimens à cisailier par de l'eau est analogue aux conditions du site de décharge qui est généralement détrempe.

Ensuite, le cisaillement se fait, pour les deux séries d'échantillons, sous l'application de contraintes normales qui varient de 12 à 80 kPa. Ceci correspond à des OCR variant entre 1.5 et 10 et dans le cas où l'on considère que le compactage statique correspond réellement à une consolidation.

La vitesse de cisaillement étant de 0,30mm/min, l'essai se fait, le plus souvent, en moins d'une heure. Des mesures de teneur en eau faites avant et après chaque essai indiquent une faible perte de teneur en eau (moins de 0,3%). On peut supposer que le matériau est relativement drainé pendant l'essai pour différentes raisons. D'abord, la vitesse est relativement faible et deux pierres poreuses sont introduites en bas et en haut de l'échantillon. Le dispositif d'essai ne permet pas de suivre la pression du fluide

interstitiel au cours de l'essai. Les paramètres de cisaillement ( $c$  et  $\phi$ ) sont déterminés, en contraintes totales, par la courbe intrinsèque qui représente les points correspondant à la rupture dans le diagramme de Mohr-Coulomb ( $\sigma_n, \tau$ ).

$$\sigma_n = \frac{P_v}{A} : \text{contraintes normales en kPa / cm}^2 \dots\dots (1)$$

$$\tau = \frac{Ph}{A} : \text{contraintes de cisaillement en kPa / cm}^2 \dots\dots (2)$$

Avec :

$P_v$  : forces normales en kPa.

$Ph$  : forces de cisaillement en kPa.

Ces contraintes doivent satisfaire à l'équation de Mohr-Coulomb.

$$\tau = c + \sigma_n \tan \phi \dots\dots\dots (3).$$

Avec :

$c$  : cohésion en kPa.

$\phi$  : angle de frottement interne en degrés.

En effet dans de telles situations, il est recommandé (Peck et al , 1957) d'adopter un calcul en contraintes totales et de tenir compte des caractéristiques des essais afin de les relier aux conditions réelles de l'ouvrage et du site auquel ils sont destinés notamment en ce qui concerne la vitesse de chargement et les conditions de drainage. Les forces de cisaillement, les déplacements verticaux et horizontaux sont contrôlés par des comparateurs.

#### 4.9 Résultats obtenus

- Influence du pourcentage de bentonite dans les conditions de l'optimum :

La série d'essais est consacrée à plusieurs mélanges mais chacun préparé à sa teneur en eau optimal. Le récapitulatif des résultats des essais de cisaillement à la boîte, est donné dans les tableaux (4.5 & 4.6) et par les figures (4.12 & 4.13).



| Teneur en bentonite % | Angle de frottement interne $\phi$ (Degrés) | Cohésion c (kPa) | $W_{opt}$ (%) |
|-----------------------|---|------------------|---------------|
| 0                     | 36  | 14.5             | 8.33          |
| 3                     | 31  | 17.8             | 9.0           |
| 5                     | 30  | 12.33            | 10.1          |
| 8                     | 27  | 9.11             | 10.95         |
| 10                    | 25  | 6.8              | 12.80         |
| 15                    | 22  | 7.24             | 20.30         |
| 20                    | 19  | 4.55             | 22.87         |
| 22                    | 19  | 3.88             | 23.00         |

a) échantillons drainés

Tableau 4.5 Résistance au cisaillement des mélanges sable bentonite préparés dans les conditions de l'optimum

| Teneur en bentonite % | Angle de frottement interne $\phi$ (Degrés) | Cohésion c (kPa) | $W_{opt}$ (%) |
|-----------------------|---|------------------|---------------|
| 0                     | 32  | 14.0             | 8.33          |
| 3                     | 27  | 12.10            | 9.0           |
| 5                     | 25  | 11.03            | 10.1          |
| 8                     | 22  | 8.50             | 10.95         |
| 10                    | 20  | 5.10             | 12.80         |
| 15                    | 19  | 4.60             | 20.30         |
| 20                    | 17  | 3.01             | 22.87         |
| 22                    | 14  | 2.20             | 23.00         |

b) échantillons inondés

Tableau 4.6 Résistance au cisaillement de mélanges sable-bentonite préparés dans les conditions de l'optimum

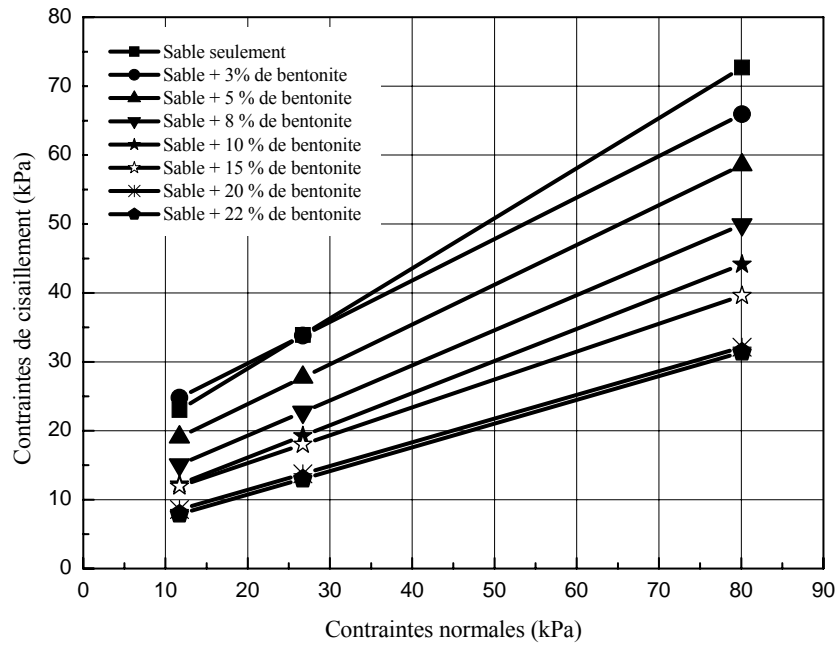


Figure4.12 Résistance au cisaillement des mélanges sable bentonite préparés dans les conditions de l'optimum (échantillons drainés)

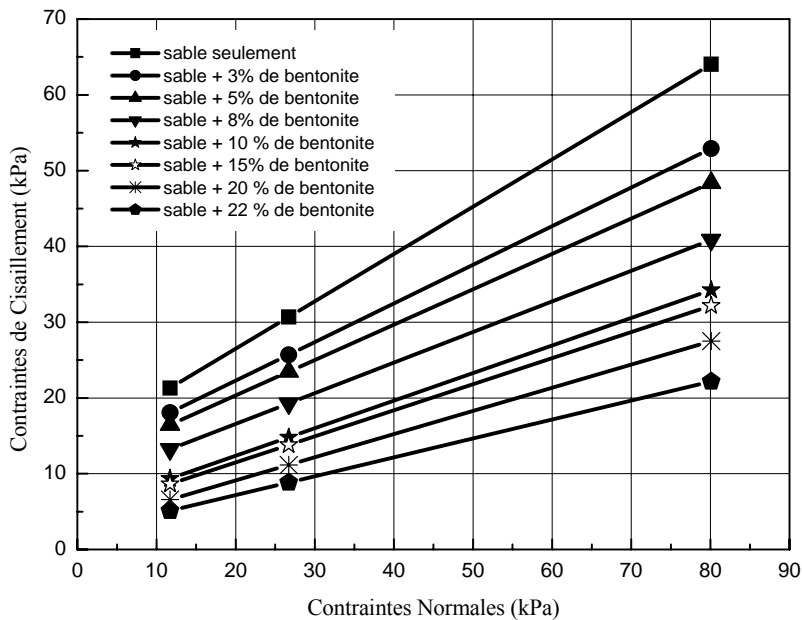


Figure4.13 Résistance au cisaillement des mélanges sable bentonite préparés dans les conditions de l'optimum (échantillons inondés)

De manière générale, les principales sources qui génèrent la cohésion dans un mélange sable-argile sont les suivants :

- L'adhésion entre les particules à l'issue du compactage.
- Les attractions électrostatiques et électromagnétiques.
- La succion capillaire due à l'attraction eau-particules.
- Les forces mécaniques apparentes dues à l'enchevêtrement et à l'arrangement des grains.

La dernière source de cohésion dite d'interclavage (interlocking) est spécifique aux sables dont les grains sont anguleux.

Les trois premières sources ont tendance à augmenter leur influence avec l'accroissement du taux de bentonite dans le mélange. Ce qui explique, l'augmentation de la cohésion en passant de 0 à 3% de bentonite. L'effet du couple (succion,  $\rho_d$ ), auquel est liée la cohésion, atteint son maximum à  $y=3\%$ . Entre 3 et 22% de bentonite, le deuxième paramètre qui influe sur la cohésion évolue dans le sens inverse et il subit une chute considérable, d'où une baisse dans la cohésion. On peut dire qu'à ce stade, la cohésion est gouvernée beaucoup plus par l'état de compacité du mélange ; les effets de la succion et des attractions électrostatiques et électromagnétiques sont secondaires. La diminution continue de l'angle de frottement en passant de 3 à 22% de bentonite s'explique par la décroissance de la fraction sableuse (génératrice de frottement) ainsi que par l'augmentation de la quantité d'eau qui réduit les frottements (figures 4.15 & 4.16).

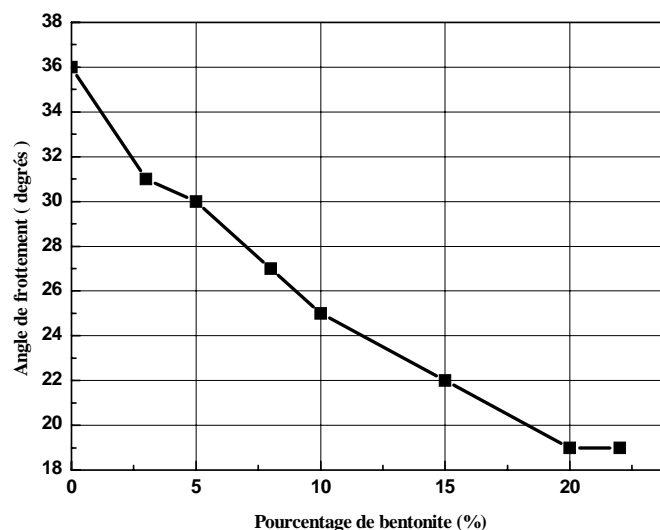


Figure 4.15 Variation de l'angle de frottement en fonction du pourcentage de bentonite des mélanges sable/ bentonite (échantillons drainés)

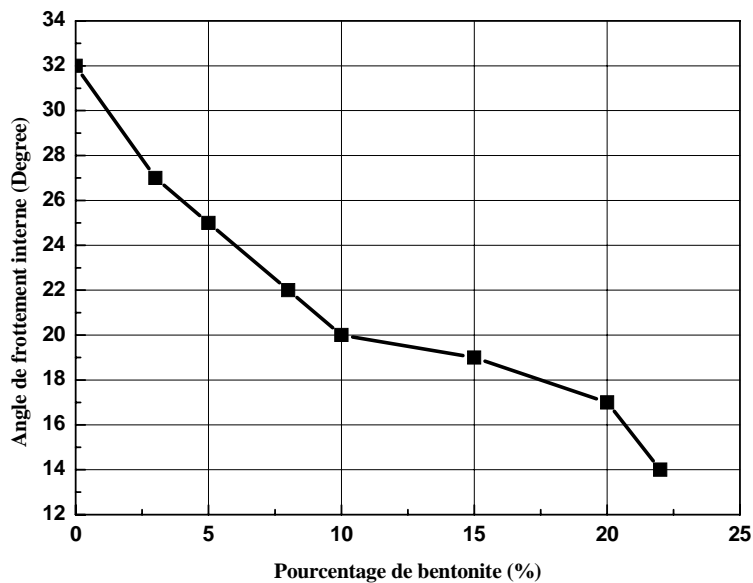


Figure 4.16 Variation de l'angle de frottement en fonction du pourcentage de bentonite des mélanges sable/ bentonite (échantillons inondés)

A priori, on peut améliorer la résistance d'un sable en lui associant une proportion d'argile relativement faible (environ 3%). Les particules d'argile conduisent à une certaine cohésion de l'ensemble, sans toutefois diminuer d'une façon considérable les frottements entre les grains.

#### 4.10 Discussion et interprétation

La diminution de la cohésion par accroissement de la quantité d'eau dans le mélange (la masse volumique et le taux de bentonite étant constants) peut être expliquée par le fait qu'au fur et à mesure que l'on augmente la teneur en eau, la distance entre les particules d'argiles devient importante et les attractions électrostatiques et électromagnétiques diminuent. De même un excès d'eau fait diminuer l'adhésion et lorsque la teneur en eau atteint la saturation, la succion devient nulle.

La diminution de l'angle de frottement avec l'accroissement de la teneur en eau traduit l'augmentation du pouvoir lubrifiant des particules argileuses. La lubrification est due à la mobilité de la couche absorbée. L'épaisseur de cette couche et la surface d'hydratation deviennent de plus en plus importante avec l'augmentation de la quantité d'eau (Mitchell, 1976).

La microstructure des sols compactés a fait l'objet de différentes recherches. Elle repose principalement sur le modèle de Lambe (1958). Celui-ci distingue, selon la teneur en eau et pour une seule énergie de compactage, deux situations :

1. Coté humide de l'optimum : l'eau est en quantité suffisante pour conduire à un développement total de la double couche et par conséquent, c'est la répulsion entre les particules qui prédomine. Après compactage, les orientations sont parallèles et la structure est dite dispersée.

2. Coté sec de l'optimum : Par manque d'eau, on n'aura pas un développement intégral de la double couche. La distance entre deux feuillets d'argile est très faible et c'est l'attraction de Van der Waals qui prédomine pour donner naissance à une structure floculée. Cependant, ce modèle qui est basé sur une théorie initialement développée sur des suspensions colloïdales d'argile dans l'eau ne prend pas en considération d'une façon claire les phénomènes capillaires et leur influence mécanique d'attraction entre les particules (Delage et Fry, 2000). Ces dernières années, ce modèle a été reconsidérée en s'appuyant notamment sur l'observation en microscopie électronique à balayage (Delage et al. 1996) et les mesures de porosimétrie au mercure (Pellerin, 1979). Ces recherches ont permis de considérer un comportement mécanique de type frottant pour le coté sec de l'optimum d'une part et un frottement intergranulaire assez faible pour un sol compacté humide, d'une part (Delage et Fry, 2000).

#### **4.11 Conclusions**

Parmi les paramètres principaux qui influent sur les caractéristiques mécaniques des mélanges sable-bentonite, on trouve le pourcentage de bentonite et la teneur en eau.

Si la bentonite a tendance à accroître la cohésion et à diminuer l'angle de frottement, la teneur en eau, en augmentant, conduit à un accroissement de la cohésion jusqu'à une valeur maximale et ensuite elle provoque une diminution. Quant à l'angle de frottement, il diminue d'une façon continue, au fur et à mesure que la teneur en eau devient élevée.

## 5.1 Introduction

Afin d'étudier l'impact des métaux lourds et des lixiviats de décharge sur les propriétés de bentonites et sur la conductivité hydraulique de couches sable bentonite, la bentonite de Maghnia, l'élément actif à l'intérieur des couches, a été choisie. Elle a été caractérisée selon sa composition minéralogique, sa granulométrie, sa surface spécifique, sa capacité d'échange cationique et son pH. Le plomb, le zinc, le cadmium, et le cuivre ont été choisis comme contaminants puisqu'ils se retrouvent habituellement dans la composition de lixiviats de décharge et qu'ils représentent une source de danger potentiel pour la santé des êtres humains. Les contaminants organiques choisis sont deux lixiviats dénommés respectivement Lixiviat I pour un 'jus' généré à partir d'ordures ménagères et Lixiviat II issu d'un déchet résultant d'un processus industriel (fonderie). Le sable employé pour la fabrication des couches étanches expérimentales est un sable fin de la région de Constantine. Des essais préliminaires ont été effectués sur des mélanges sable bentonite contenant entre 3 et 22% de bentonite de Maghnia et de sable jaune (voir chapitre4); afin de déterminer les proportions de sable et de bentonite faisant partie des couches sable bentonite. Un mélange contenant 10% de bentonite a été retenu pour la suite de cette étude pour évaluer sa capacité de rétention des métaux lourds d'une part et l'impact des contaminants sur sa conductivité hydraulique et sa résistance mécanique d'autre part.

Les expériences ont été effectuées au laboratoire. La procédure expérimentale (tableau 5.1) se compose des essais de caractérisation, de granulométrie, de gonflement libre et des essais en colonnes. Les essais de gonflement libre ont été effectués à l'intérieur de cylindres gradués. Les essais en colonnes ont été effectués à l'aide d'un montage expérimental. Ces derniers consistent à mesurer la variation de la perméabilité et la rétention des métaux lourds à travers les mélanges sable bentonite. Chaque expérience est expliquée en détails dans les paragraphes suivants.

## PROCEDURE EXPERIMENTALE (2<sup>eme</sup> PARTIE)

### **Matériel**

- . bentonite de Maghnia.
- . Sable jaune.
- . Métaux lourds: Cu<sup>2++</sup>, Pb<sup>2++</sup>, Zn<sup>2+</sup>, Cd, Mn, Ni.
- . Lixiviat I et Lixiviat II

### **Caractérisation**

- Minéralogie
- Surface spécifique
- pH
- Valeur au bleu de méthylène

### **Microanalyse**

- Morphologie
- Composition de la bentonite
- Diffraction des rayons X.

### **Essais de gonflement libre**

- Impact des métaux lourds sur le gonflement libre de la bentonite
- Impact des métaux lourds sur la plasticité de la bentonite
- Absorption d'eau sur plaque pour les métaux lourds
- Impact des lixiviats sur le gonflement libre de la bentonite
- Impact des lixiviats sur la plasticité de la bentonite
- Absorption d'eau sur plaque pour les lixiviats

### **Essais en colonnes**

- Impact des métaux lourds sur la conductivité hydraulique des mélanges sable bentonite
- Rétention des métaux lourds
  
- Essais de perméabilité aux métaux lourds
- Essais de perméabilité aux lixiviats
- Essais de cisaillement aux métaux lourds
- Essais de cisaillement aux lixiviats

### **Essais chimiques**

Tableau 5.1 : Schéma de l'expérimentation (2<sup>eme</sup> partie)

## 5.2 Le matériel

### 5.2.1 La bentonite et le sable (fig.5.1)

La bentonite provient de Maghnia. Elle n'a subi aucun traitement. Elle est commercialement disponible et largement utilisée dans des applications en génie civil comme boue de forage.

Le sable utilisé pour les mélanges sable bentonite est un sable de la région de Constantine. Il est fin et propre. Visuellement et de façon qualitative, il possède une granulométrie uniforme. Sa granulométrie sera définie plus précisément lors de la caractérisation.



Figure 5.1 Matériaux utilisés : sable et bentonite de Maghnia

### 5.2.2 Les métaux lourds

On distingue par le terme 'métaux lourds' , les métaux qui ont une masse volumique supérieure à  $5 \text{ g/cm}^3$  (protocole relatif aux métaux lourds de la convention de Genève). On a donc qualifié de métaux lourds les métaux présentant un caractère toxique pour la santé et l'environnement: plomb (Pb), mercure (Hg), arsenic (As), cadmium (Cd), nickel (Ni), zinc (Zn), manganèse (Mn), cuivre (Cu). Ils proviennent de la combustion des charbons, pétrole, ordures ménagères... et de certains procédés industriels particuliers. Ils se trouvent généralement au niveau des particules (sauf le mercure qui est principalement gazeux). Les métaux lourds s'accumulent dans l'organisme et provoquent des effets toxiques à court et /ou à long terme. Ils peuvent affecter le système nerveux, les fonctions rénales, hépatiques, respiratoires, ... Les effets engendrés par ces polluants sont variés et dépendent également de l'état chimique sous lequel on les rencontre (métal, oxyde, sel, organométallique). Ils contaminent également les sols et les aliments et s'accumulent dans les organismes et perturbent les équilibres et mécanismes biologiques.

- **Plomb (Pb) :**



Le plomb forme des alliages avec de l'antimoine, de l'étain, du cadmium, du cuivre, de l'argent et du calcium. Ces composés sont utilisés dans la fabrication du chlorure de polyvinyle (PVC), du verre de plomb, des munitions, des produits de calfeutrage, des soudures, des accumulateurs, des pigments, de la peinture, de l'encre, des herbicides, des insecticides, etc. Le plomb et ses composés sont reconnus comme étant toxique pour les êtres humains.

Le plomb peut être ingéré par les voies gastro-intestinales par la nourriture et l'eau contaminée. Le plomb a une forte tendance à la bio-accumulation dans les os et le sang. Le plomb est présent naturellement dans les sols. Le plomb se distingue des ions alcalins et alcalino-terreux en solution puisqu'il peut être hydrolysé à de faible valeur de pH.

#### - **Zinc (Zn) :**

Le zinc est utilisé lors de la galvanisation de pièces métalliques, dans les produits en laiton et dans la production d'alliages à base de Zn. Le zinc se lie à des liants inorganiques et est hydrolysé à un pH 7 à 7,5. Il forme du  $Zn(OH)_2$  à un pH plus grand que 8. L'état d'oxydation le plus commun pour le zinc est II qui peut être lié à des liants organiques ou à des minéraux colloïdaux. Le zinc précipite dans des conditions d'anoxie sous la forme  $ZnS$ . Sous la forme non précipité  $Zn^{2+}$  forme,  $ZnOH^+$ .

#### - **Cadmium (Cd):**

Le cadmium est un métal blanc argenté, brillant, relativement mou et déformable. Il est utilisé dans la fabrication de piles (nickel-cadmium), dans la préparation par galvanisation de couches protectrices de fer bien déformables et résistant à la corrosion ainsi que comme composés d'alliages. De plus, on utilise les composés de cadmium comme pigments de peinture résistant à de hautes températures et comme stabilisateurs de PVC. On trouve souvent le cadmium associé au Zinc car c'est un produit secondaire de la fabrication du Zinc. Dans l'environnement, le cadmium provient en grande partie des usines élaborant ou traitant les métaux et des unités d'incinération des déchets. Le cadmium parvient dans le sol par le processus de déposition, par les engrais qui en contiennent et par les boues d'épuration. Il parvient dans les eaux avant tout par dépôt à partir de l'air mais aussi par les eaux de précipitations véhiculées dans les chenaux et par l'eau de ruissellement des décharges d'ordures. Des composés du cadmium (chlorure, oxyde, sulfate, chromate) sont cancérigènes de catégorie 2 : le sulfate de cadmium est classé cancérigène de catégorie 3 (Directive 67/ 548/ CEE modifiée). A cause de son augmentation croissante dans l'environnement les concentrations de cadmium dans les glandes surrénales sont aujourd'hui 10 à 50 fois plus élevées qu'il y a 50 ans.

### **- Cuivre (Cu) :**

C'est un métal de couleur rougeâtre, il possède une haute conductivité thermique et électrique (à température ambiante, le seul métal pur ayant une meilleure conductivité électrique est l'argent). Le cuivre pourrait bien être le premier métal à avoir été utilisé, étant donné que des pièces datant de 8700 avant J-C ont été trouvées. Le cuivre est un des rares métaux qui existe à l'état natif. Ce fait d'ailleurs expliquant probablement qu'il fut le premier métal utilisé par les hommes. L'occurrence du cuivre natif est cependant assez faible. On le trouve le plus fréquemment sous forme de sulfure ou de sulfo-sel. Autrefois on considérait le cuivre comme un poison mortel, notamment sous sa forme oxydée le vert – de gris. Actuellement on sait au contraire qu'il s'agit d'un oligo-élément indispensable à la vie. Il est nécessaire à la formation de l'hémoglobine et possède des vertus bactéricides. Le cuivre est rarement utilisé pur, sauf pour les conducteurs électriques et dans le cas où l'on souhaite une grande conductivité thermique. Les alliages de cuivre, par contre, sont très largement utilisés dans de nombreux domaines. Des peintures à base de cuivre par exemple sont utilisées dans diverses applications industrielles, contaminant par la même occasion les eaux qu'elles traversent

### **- Le manganèse (Mn):**

Le manganèse est un métal gris-blanc teinté de rose. Les formes impures sont très réactives. Il rouille comme le fer dans l'air humide. On obtient le manganèse en faisant brûler dans un four un mélange d'oxyde de manganèse avec de l'aluminium en poudre. Le manganèse est utilisé dans la fabrication d'aciers, de piles et de céramiques. Le manganèse est un composé très commun que l'on peut trouver partout sur la terre. Le manganèse est nécessaire à l'homme pour survivre mais il est aussi toxique lorsque des concentrations trop élevées sont présentes dans le corps humain. Le manganèse agit essentiellement au niveau du système respiratoire et du cerveau. Les symptômes d'un empoisonnement au manganèse sont des hallucinations, un manque de mémoire et des problèmes de nerfs. Un empoisonnement sévère au manganèse peut même provoquer des tumeurs.

### **- Le nickel (Ni) :**

Le nickel pur est un métal blanc brillant et dur utilisé couramment pour fabriquer des alliages de métaux solides et durables. On retrouve ce métal dans de nombreux objets courants, comme des casseroles inoxydables, des pièces de monnaie et des piles rechargeables. Le nickel est une substance que l'on retrouve dans le milieu naturel, essentiellement dans les minerais sulfurés, extraits des sous-sols et dans les minéraux silicatés se trouvant en surface. Les effets sur la santé de l'exposition au nickel dépendent, comme pour toute autre substance, du type, de la concentration et de la durée de l'exposition. On est exposé au nickel en inhalant

de la poussière, en consommant des aliments et de l'eau. Il est à noter que le nickel affiné et certaines solutions de nickel fortement concentrées peuvent provoquer des réactions au contact de la peau. La concentration de nickel dans la nature est d'environ 43 parties par million (ppm), en général, ces concentrations typiques n'ont pas d'effets nocifs sur la santé.

Les solutions servant de milieux contaminés contiennent, de façon individuelle ou mixte, les métaux lourds  $\text{Cu}^{2+}$ ,  $\text{Pb}^{2+}$ , Cd, Mn et  $\text{Zn}^{2+}$ . Ces métaux proviennent des sels de nitrates ou de sulfates métalliques. Les concentrations sont de 10 à 20 fois plus élevée que la concentration en métaux lourds habituellement retrouvée dans les lixiviats de décharge. Ce choix a été fait afin de représenter les pires conditions qui peuvent survenir ponctuellement à travers une couche étanche. Ces concentrations ont été aussi choisies afin d'accélérer les expérimentations, compte tenu du temps prévu pour cette recherche.

### 5.2.3 Le lixiviat

Il est difficile de définir un lixiviat type du moment qu'il diffère d'une décharge à une autre. Le lixiviat change également avec le temps et ceci en relation avec l'âge du déchet lui même. Dans cette recherche, deux types de lixiviats ont été utilisés dénommés respectivement Lixivat I et Lixivat II (figure 5.2)

#### - Lixivat I

Ce lixiviat a été obtenu à partir d'un mini décharge qui a été montée au laboratoire. Un déchet solide type a été formé à partir des constituants suivants (tableau 5.2) :

| Constituants du déchet type | Masse en grammes |
|-----------------------------|------------------|
| Reste alimentaires          | 3200             |
| Papiers + Cartons           | 550              |
| Plastique                   | 125              |
| Verres                      | 250              |
| Tissues + éponges           | 250              |
| Herbes + branchages         | 600              |
| Divers : piles              | 25               |
| <b>Total</b>                | <b>5000</b>      |

Tableau 5.2. Constitution d'un déchet type

La matière organique représente environ 75% en poids de l'ensemble de ce déchet, ce qui lui a donné une humidité globale de 57 %. Ces caractéristiques le rendent représentatif des déchets urbains Algériens.

### - Lixiviat II

Ce lixiviat est dérivé à partir d'un déchet industriel produit par une fonderie.



Figure 5.2. Lixiviats utilisés

*Lixiviat I: couleur claire*

*Lixiviat II: couleur sombre*

## 5.3 La caractérisation

### 5.3.1 La composition minéralogique

La granulométrie de la bentonite a été déterminée par l'analyse granulométrique par sédimentation. L'essai utilise le fait que dans un milieu liquide au repos, la vitesse de décantation des grains fins est fonction de leur dimension. La loi de Stokes donne, dans le cas de grains sphériques de même masse volumique, la relation entre le diamètre des grains et leur vitesse de sédimentation. Par convention, cette loi est appliquée aux éléments d'un sol pour déterminer des diamètres équivalents de particules. Les particules inférieures à  $80\mu\text{m}$  séparées du reste du sol par tamisage sont mises en suspension dans de l'eau additionnée d'un défloculant. Les particules sédimentent à différentes vitesses en relation avec leur taille. Au moyen d'un densimètre est mesurée l'évolution dans le temps de la masse volumique de la

solution et de la profondeur d'immersion de l'appareil. La distribution pondérale de la taille des particules est calculée à partir de ces données.

La granulométrie du sable jaune a été déterminée par l'analyse granulométrique par tamisage qui est un essai géotechnique.

### **5.3.2 La surface spécifique**

La surface spécifique de la bentonite de Maghnia a été mesurée La méthode du perméabilimètre de Blaine. Le Blaine est un appareil utilisé pour évaluer la surface spécifique des produits en poudre. Il permet de déterminer la finesse de la poudre, par perméabilité à l'air, en mesurant le temps de passage d'une quantité d'air donnée au travers d'un lit de poudre. Le résultat est donné en unité Blaine ( $\text{cm}^2/\text{g}$ ).

### **5.3.3 Absorption d'eau sur plaque (Plate Water Absorption- PWA)**

Ce test montre la capacité de la bentonite en poudre (sèche) placée sur une plaque poreuse à absorber de l'eau (figure 5.3). Deux grammes de bentonite sont posés sur un papier filtre puis sur une large plaque poreuse. Le niveau d'eau vient effleurer le niveau supérieur de la plaque. On mesure l'accroissement de poids pendant 18 heures.



Figure5.3. Absorption d'eau sur plaque (PWA)

### **5.3.4 pH**

A partir d'une suspension de bentonite dans de l'eau déminéralisée, selon les proportions 1 bentonite / 10 eau (poids/poids), le pH de la bentonite a été mesuré à l'aide d'un pH-mètre de marque Hanna .La suspension a subi une agitation continue pendant 24 heures précédant la prise de la mesure.

### **5.3.5 Les limites d'Atterberg**

Pour les essais des limites d'Atterberg, les échantillons de bentonite ont été mélangés aux solutions contaminantes de métaux lourds et gardés dans des récipients étanches pour au moins 12 heures. La détermination des limites de liquidité et de plasticité a été conduite en accordance avec les normes

## **5.4 Les méthodes expérimentales**

### **5.4.1 Gonflement libre des bentonites en fonction du milieu aqueux**

Le gonflement de la bentonite de Maghnia a été mesuré à l'intérieur de solutions contaminées par les métaux lourds  $\text{Cu}^{2+}$ ,  $\text{Pb}^{2+}$ ,  $\text{Zn}^{2+}$ , Cd, Mn et Ni . Chaque ion métallique a été obtenu à partir du sel de nitrates correspondant. Les métaux ont été mis en solution séparément sous des concentrations de 50 ppm. Les solutions n'ont pas été acidifiées.

La procédure de l'essai de gonflement libre est décrite à la section A.2 de l'annexe A. Le gonflement libre a été mesuré pour l'argile dans de l'eau déionisée et à l'intérieur des 6 solutions contaminées par les métaux lourds. La lecture du gonflement a été prise après 48 heures et sera expliquée au chapitre des résultats.

Les résultats représentent le volume du cylindre gradué occupé par la bentonite. Les lectures sont prises en ml. Elles sont par la suite transformées en pourcentage, qui est fonction du volume occupé par l'échantillon de bentonite à l'état sec.

### **5.4.2 Essais de diffraction aux rayons X sur des échantillons de bentonite contaminés par des polluants**

La résolution structurale consiste à déterminer les positions atomiques dans la maille et cela à partir de la mesure des intensités diffractées ; ainsi on peut décrire la façon dont les atomes sont arrangés et le lien qui existe entre eux à l'aide des différentes considérations que l'on peut faire à partir des distances interatomiques et des angles de valence.

Lorsque le rayonnement rencontre un cristal il y'a diffusion des rayons X dans toutes les directions de l'espace sans changement de longueur d'onde. Dans certaines directions privilégiées, les ondes vont être en accord de phase et donnant lieu à une diffraction. L'étude des directions de diffraction permet le calcul de paramètre de réseau, de la dimension de la maille, des symétries etc.....

Le dispositif expérimental (fig.5.4) est conçu de telle façon que le compteur tourne autour d'un cercle centré sur le porte-échantillon : le cercle goniométrique. L'échantillon est déposé sur une plaque tangente à un cercle passant par la source de rayons X et le compteur : le cercle de focalisation. Les rayons diffractés par les familles de plans atomiques (hkl) sont enregistrés dans une baie de mesure. On obtient des pics (hkl) dont la position permet de déterminer l'angle de diffraction  $\theta_{hkl}$  pour chaque famille de plan diffractant. La surface des pics conduit à la mesure de l'intensité : c'est le diagramme ou spectre de diffraction. On utilise un rayonnement X monochromatique incident qui provient d'une anticathode en métal à numéro atomique intermédiaire (tel que le cuivre) excitée par une tension adéquate. Pour notre étude, on a utilisé un diffractomètre à poudre Siemens D8 Advance automatisé muni d'une anticathode de cuivre et d'un monochromateur ( $I = 20 \text{ mA}$ ,  $V = 35 \text{ KV}$ ) où le balayage a été fait pas par pas entre  $10$  et  $120^\circ$ , lié à un micro-ordinateur pour enregistrer les diffractogrammes (figure5.4).

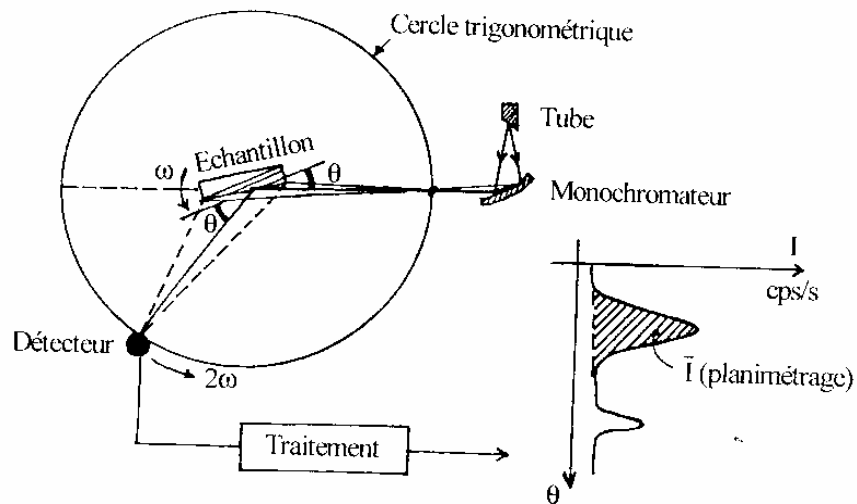


Figure 5.4. Montage pratique de la diffraction aux rayons X

Chaque solide cristallisé est caractérisé par son propre diagramme de diffraction, ensemble des pics situés à des valeurs  $\theta_{hkl}$ . Nous pouvons associer une liste des distances inter réticulaires (inter-plans)  $d_{hkl}$  aux intensités correspondantes. D'autre part, il faut considérer le fichier ASTM, fichier établi pour l'ensemble des substances solides connues. Une fiche contient les distances  $d_{hkl}$  et les intensités relatives correspondantes. Elle peut contenir d'autres informations : indices des plans correspondant à chaque distance  $d$ , le réseau cristallin, le groupe spatial, le contenu atomique de la maille. Le dépouillement du spectre de diffraction consiste à comparer les valeurs obtenues  $d_{hkl}$  aux valeurs classées dans le fichier. On commence par comparer les  $d_{hkl}$  correspondant aux intensités élevées puis on identifie le reste. Lorsque l'échantillon polycristallin est polyphasé, comme c'est notre cas, les spectres de pic de diffraction sont superposés et certains pics peuvent même appartenir à plusieurs phases. Si l'on soupçonne l'existence de certaines phases dans le mélange, on compare directement le spectre global avec les spectres de chaque corps ou phase. On superpose le spectre issu du fichier ASTM de la phase soupçonnée au spectre du mélange. On peut donc identifier de proche en proche toutes les phases.

Pour les besoins de cette étude, la bentonite a été hydratée par les lixiviats I et II et par une solution contenant des métaux lourds. Quatre spectres ont été réalisés sur ces échantillons de bentonite dont un échantillon de bentonite vierge de toute contamination.



### 5.4.3 Essais de lixiviation en colonnes sur les couches de sable bentonite

La cellule de lixiviation la plus simple est le moule de compaction puisque la perméabilité des argiles compactées et des mélanges sable bentonite sont mesurée au laboratoire dans des moules de compactage. Ce dispositif permet après l'opération du compactage, la lixiviation sans remanier l'échantillon. L'inconvénient majeur de ce type de cellule est l'existence de fuites contre les parois. Ces fuites peuvent cependant être limitées en plaçant des pierres poreuses d'un diamètre inférieur au diamètre de la cellule de part et d'autre de l'échantillon (Mac Neal et Reeve, 1964).

Trois solutions contaminées ont été fabriquées à partir des sels de nitrates métalliques des ions  $\text{Cu}^{2+}$ ,  $\text{Pb}^{2+}$  et  $\text{Zn}^{2+}$ . Les ions ont été mis en solution dans l'eau déionisée et les solutions n'ont subi aucune acidification. La première solution contient les métaux lourds  $\text{Cu}^{2+}$ , la seconde les métaux  $\text{Pb}^{2+}$ , la troisième les métaux  $\text{Zn}^{2+}$  et la dernière les métaux  $\text{Cu}^{2+}$  et  $\text{Pb}^{2+}$ . Chaque ion métallique étant présent sous une concentration de 50 ppm.

Les cellules de lixiviation se composent d'un moule de compaction (figure 5.5) et d'une burette graduée (standpipe) et de deux pierres poreuses situées au-dessus et en dessous de l'échantillon. Les pierres poreuses servent à répartir la charge sur toute la surface de l'échantillon. La solution contaminée est contenue dans la burette.

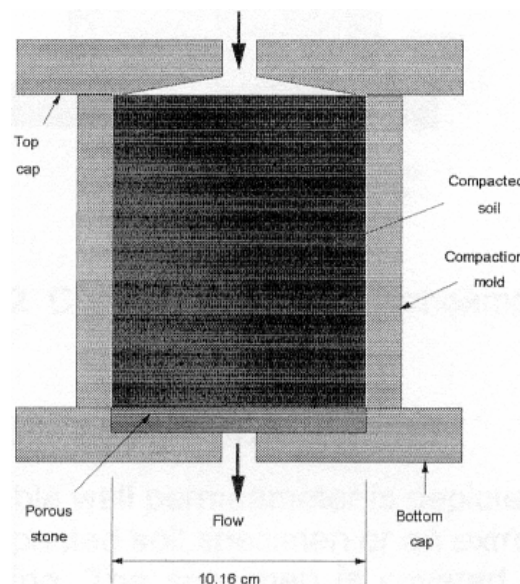


Figure 5.5. Moule de compaction

Les résultats sont d'une part, l'évolution de la conductivité hydraulique des couches sable bentonite en fonction du volume de solution qui traverse la couche. La conductivité hydraulique est calculée selon l'équation de Darcy et elle est exprimée en cm/s. D'autre part, ils montrent la concentration des ions métalliques à l'intérieur des couches de sable bentonite en fonction du volume de solution qui percolé, ce qui représente les courbes de percée des métaux lourds à l'intérieur des mélanges.

Suite aux essais de lixiviation, les couches sable - bentonite expérimentale seront coupées horizontalement. Les résultats observés représentent la distribution géochimique des métaux lourds à travers les couches sable bentonite. La distribution des métaux lourds retenus reflète la capacité de rétention de la couche sable bentonite.

#### **5.4.4 Essais de conductivité hydraulique sur perméamètre à charge variable sur les mélanges sable bentonite**

Les essais ont été effectués selon la procédure décrite à la section A.1 de l'annexe A sur le mélange sable bentonite (10 % de bentonite) choisie suite aux essais préliminaires. Pour la première série d'essais, le fluide a été contaminé par des métaux lourds ( $\text{Cu}^{2+}$ ,  $\text{Pb}^{2+}$  et  $\text{Cu}^{2+}$   $\text{Pb}^{2+}$ ). Dans la 2ème série d'essais, le fluide a été remplacé par des lixiviats (Lixiviat I et le Lixiviat II). Un dernier essai pour chaque série a été réalisé avec de l'eau déminéralisée.

#### **5.4.5 Essais de cisaillement direct à la boîte sur les mélanges sable bentonite**

Les essais de cisaillement ont été faits sur des échantillons qui ont été préparés à l'eau déminéralisée à une teneur en eau proche de l'optimum proctor. Avant l'essai de cisaillement proprement dit, les échantillons ont été inondés par des solutions de métaux lourds ( $\text{Cu}^{2+}$ ,  $\text{Pb}^{2+}$  et  $\text{Cu}^{2+}$  +  $\text{Pb}^{2+}$ ) puis cisailés pour une première série. Pour une deuxième série, les échantillons ont été inondés par des lixiviats (Lixiviat I et le Lixiviat II) puis cisailés. Un dernier essai pour chaque série a enfin été réalisé avec de l'eau déminéralisée.

#### **5.4.6 Essais chimiques sur la rétention du cuivre par la bentonite**

Les essais d'élimination du cuivre ont été réalisés en Batch. Le rapport solide-liquide (S/L) adopté pour la majorité des essais est de 1 g/l, ce qui permettra d'avoir une dispersion correcte des particules solides dans la solution.

Le mode opératoire suivi pour nos expériences est le suivant : 0.05 g d'argile « support » sont mélangés avec 50 ml d'une solution métallique  $[Cu^{2+}] = 25 \text{ mg/l}$  ; puis agités avec une vitesse de 200 rpm et à température ambiante ( $20 \pm 2$ ) °C pendant tous le temps de contact (de 1 à 120 min dans la plupart des cas). L'agitation doit être continue et la température est maintenue constante. La séparation solide-liquide des suspensions est réalisée par une simple filtration. Des mesures de pH et de la conductivité ont été réalisées immédiatement après filtration. Le dosage des filtrats a été effectué par absorption atomique (Spectrophotometer Spectra AA-Varian-20 plus), en faisant des dilutions des échantillons s'il est nécessaire pour demeurer dans la fourchette de linéarité de l'appareil. Le cuivre est dosé à une longueur d'onde de 324.8 nm [2].

##### **5.4.6.1 Les supports**

Le support « adsorbant » utilisé dans toute cette étude est la bentonite de Maghnia. Cette dernière n'a subi d'aucun traitement préalable. Elle a été simplement séchée à 105 °C pendant 24 h dans une étuve de type P. SELECTA et ensuite conservée dans un dessiccateur.

##### **5.4.6.2 Les solutions métalliques**

Les solutions mères du cuivre sont préparées par dissolution de son sel dans l'eau distillée. Le sel du cuivre utilisé est le :  $CuSO_4 \cdot 5H_2O$  « Sulfate du cuivre Hydraté » dont la solubilité est de 330 g/l à 20°C. Toutes les solutions sont préparées par dilution d'une solution mère de concentration 1000 ppm cuivre. Le pH des solutions du cuivre, dont la concentration initiale est de 25 mg/l est ajusté à une valeur de  $6 \pm 0.03$  par la soude NaOH 0.1M (1M) ou l'acide nitrique  $HNO_3$  0.1M (1M) en utilisant un pH-mètre de type « Multiline P4 and set variantes ». L'acide nitrique a été sélectionné pour le faible pouvoir complexant des nitrates, et la soude pour le faible caractère échangeable du sodium.

En ce qui concerne l'établissement de la courbe d'étalonnage du cuivre il est nécessaire de préparer des solution étalons du cuivre « les standards » à partir de la solution mère de 1 g/l, afin de doser les concentrations résiduelles du cuivre en solution par absorption atomique.



## 6.1 La caractérisation des matériaux

### a- La composition minéralogique

Le nom bentonite est utilisé du point de vue technique, pour tout matériau argileux contenant suffisamment de smectite pour qu'elle lui impose ses propriétés physiques. On estime que la smectite doit dominer au sein du matériau (Winiarski, 1994).

L'analyse minéralogique d'échantillons de la bentonite de Maghnia préparés sous forme de pastilles a été effectuée par spectroscopie de photoélectron X. Le spectromètre utilisé est un appareil Philips (Magi X PRO). Il se compose d'une source de rayons X, d'un analyseur d'énergie, d'un système de détection et d'acquisition et d'un groupe de pompage. L'énergie de l'analyseur est fixée à 20 e-V. L'acquisition des spectres et leur traitement mathématique sont réalisés par le logiciel SuperQ.

Ce qui donne une composition chimique pour la bentonite de Maghnia dont les résultats de l'analyse est présenté dans les tableaux 6.1 a & b suivants:

| Eléments | O    | Na   | Mg   | Al   | Si   | P     | S      | Cl    | K    | Ca   | Ti    | Fe   |
|----------|------|------|------|------|------|-------|--------|-------|------|------|-------|------|
| %        | 45.2 | 5.59 | 2.63 | 14.4 | 22.6 | 0.042 | 0.0886 | 0.555 | 4.58 | 0.77 | 0.188 | 3.21 |

(a) analyse élémentaire

|   | SiO <sub>2</sub> | Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | MgO   | CaO   | Na <sub>2</sub> O | K <sub>2</sub> O | TiO <sub>2</sub> | SO <sub>3</sub> | Rb <sub>2</sub> O |
|---|------------------|--------------------------------|--------------------------------|-------|-------|-------------------|------------------|------------------|-----------------|-------------------|
| % | 58.455           | 17.143                         | 4.589                          | 4.364 | 1.078 | 7.532             | 5.512            | 0.314            | 0.221           | 0.107             |

(% en poids)

(b) les oxydes

Tableau 6.1. Résultats de l'analyse élémentaire et en % d'oxyde de la bentonite de Maghnia

Le type d'argile peut être déterminé par le calcul du rapport SiO<sub>2</sub> / Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Pour la bentonite de Maghnia, ce rapport est de 3.78 et cette valeur est l'indice d'une montmorillonite. Au vu de la prépondérance du pourcentage de sodium sur celui du calcium, ceci suggère que cette dernière est de type montmorillonite sodique.

L'analyse minéralogique d'un échantillon du sable jaune a donnée une composition chimique, donnée sur le tableau 2, ci-dessous

|   | SiO <sub>2</sub> | Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | MgO  | CaO | SO <sub>3</sub> | Inconnu |
|---|------------------|--------------------------------|--------------------------------|------|-----|-----------------|---------|
| % | 94.31            | 0.23                           | 0                              | 1.02 | 0   | 0               | 1.49    |

Tableau 6.2 Résultats de l'analyse élémentaire du sable jaune

## **b- la granulométrie**

Les particules ou agrégats de feuillets des minéraux de type montmorillonite ont la caractéristique d'être dans les limites de l'état colloïdal. Leur forme est habituellement mince et allongée. Ceci leur confère des propriétés particulières dont leur grande surface spécifique, leurs propriétés de gonflement, etc.

Deux méthodes ont été utilisées pour établir les courbes granulométriques du sable et de la bentonite. Pour le sable, le tamisage sec (NF) et la sedimentometrie par hydromètre (NF) pour la bentonite. Les tableaux 6.3 et 6.4 avec les figures 6.1 et 6.2 montrent les résultats obtenus respectivement pour la bentonite et le sable

| <b>Diamètre<br/>(mm)</b> | <b>% des tamisats</b> |
|--------------------------|-----------------------|
| 0.4250                   | 100.00                |
| 0.3000                   | 99.99                 |
| 0.2100                   | 99.87                 |
| 0.1500                   | 99.40                 |
| 0.0658                   | 97.78                 |
| 0.0630                   | 97.73                 |
| 0.0472                   | 92.89                 |
| 0.0334                   | 92.89                 |
| 0.0238                   | 90.46                 |
| 0.0168                   | 90.46                 |
| 0.0088                   | 85.56                 |
| 0.0039                   | 80.87                 |
| 0.0023                   | 75.78                 |
| 0.0013                   | 70.89                 |
| 0.0010                   | 68.45                 |
| 0.0008                   | 66.01                 |
| 0.0006                   | 66.01                 |
| 0.0005                   | 63.56                 |
| 0.0004                   | 63.56                 |

Tableau 6.3. Granulométrie de la bentonite

| Diamètre (mm) | % des tamisats |
|---------------|----------------|
| 5             | 98.69          |
| 2.5           | 97.7           |
| 1.25          | 93.04          |
| 0.8           | 63.28          |
| 0.5           | 25.79          |
| 0.315         | 7.04           |
| 0.25          | 4.05           |
| 0.2           | 2.9            |
| 0.1           | 1.37           |
| 0.08          | 1.1            |

Tableau 6.4. Granulométrie du sable jaune

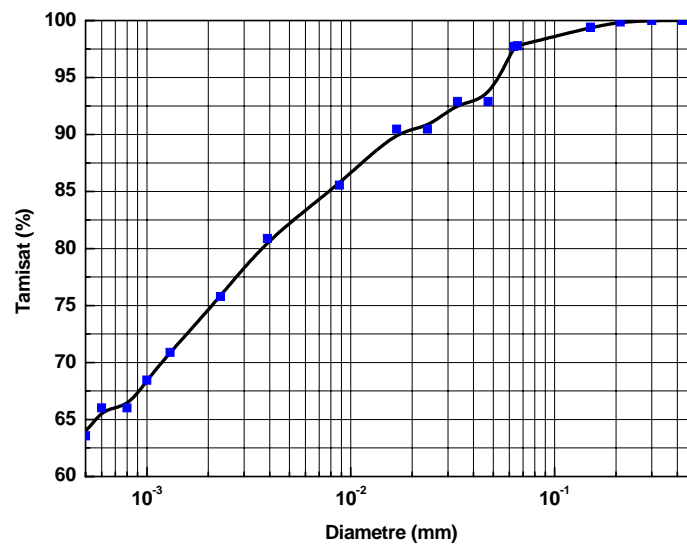


Figure 6.1. Courbe granulométrique de la bentonite utilisée



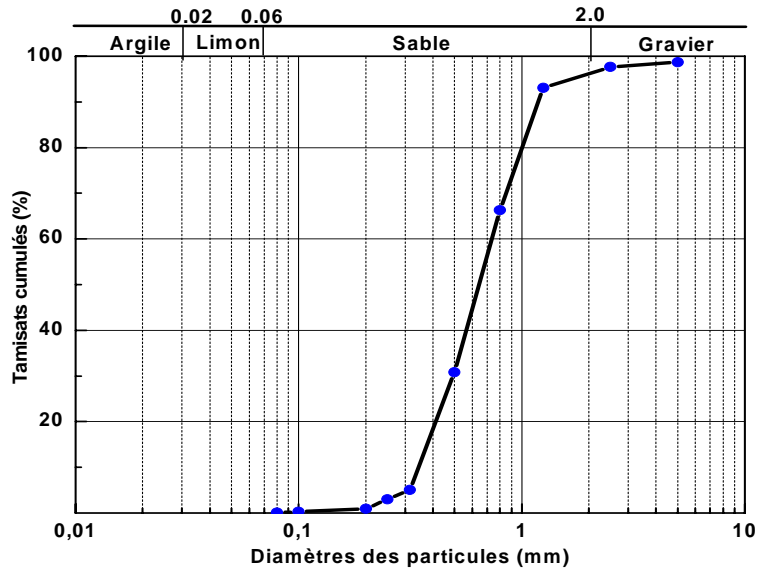


Figure 6.2. Courbe granulométrique du sable jaune utilisé

### c- La surface spécifique

La surface spécifique de la bentonite de Maghnia est estimée à  $872 \text{ m}^2/\text{g}$ . Cette valeur est assez grande lorsqu'elle comparée à celles retrouvées dans la littérature. Selon Mitchell (1976), la surface spécifique des smectites peut atteindre  $900$  à  $980 \text{ m}^2/\text{g}$ .

Ce résultat confirme les résultats de la granulométrie de la bentonite présentée à la section précédente. Cette granulométrie présente une distribution de particules très fines. Or, il est connu que, pour un même volume de sol, de plus petites particules offriront une plus grande surface spécifique.

## 6.2 Interprétation des spectres de diffraction aux rayons X sur la bentonite

Pour chaque spécimen testé, les spectres de la diffraction des rayons X ont été obtenus sur la fraction la plus fine (passant à travers le tamis  $0.080 \text{ mm}$ ) à cause du fait que les phénomènes observés sont largement contrôlés par les particules de bentonite.

Les spectres de diffraction des spécimens ayant 'séjournés' en contact prolongé avec l'eau distillée, le Lixiviat I, le Lixiviat II et une solution contenant des métaux lourds sont représentés sur les figures ci-dessous.

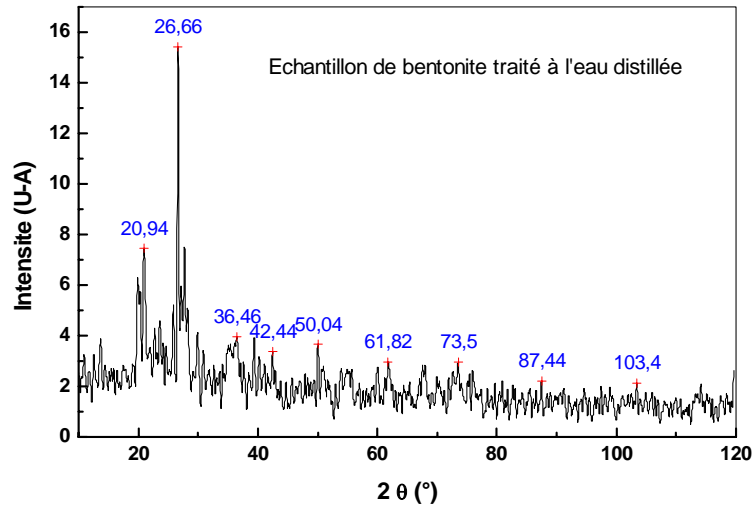


Figure 6.3. Spectre de la diffraction aux rayons X de la bentonite de Maghnia (spécimen traité à l'eau distillée)

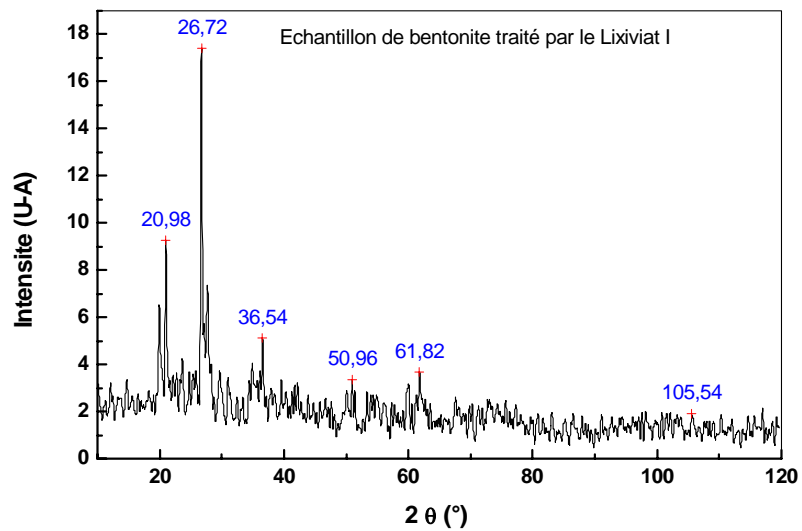


Figure 6.4. Spectre de la diffraction aux rayons X de la bentonite de Maghnia (spécimen traité par le Lixiviat I)

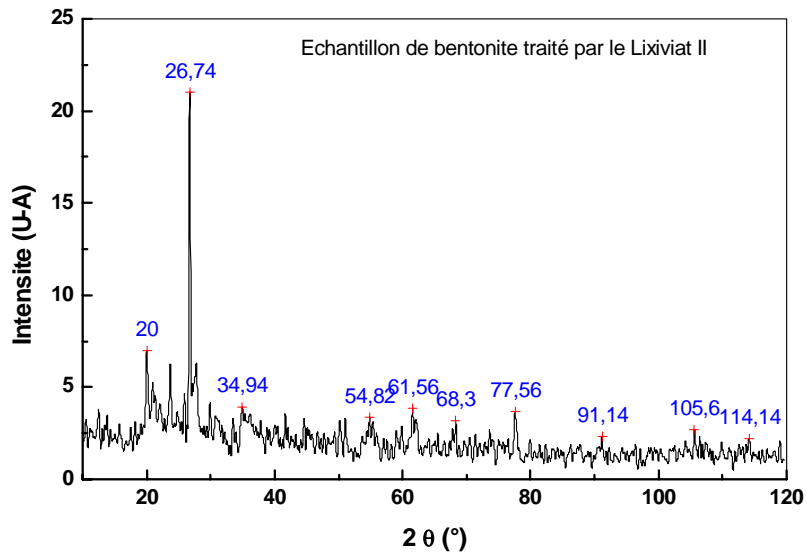


Figure 6.5. Spectre de la diffraction aux rayons X de la bentonite de Maghnia (spécimen traité par le Lixiviat II)

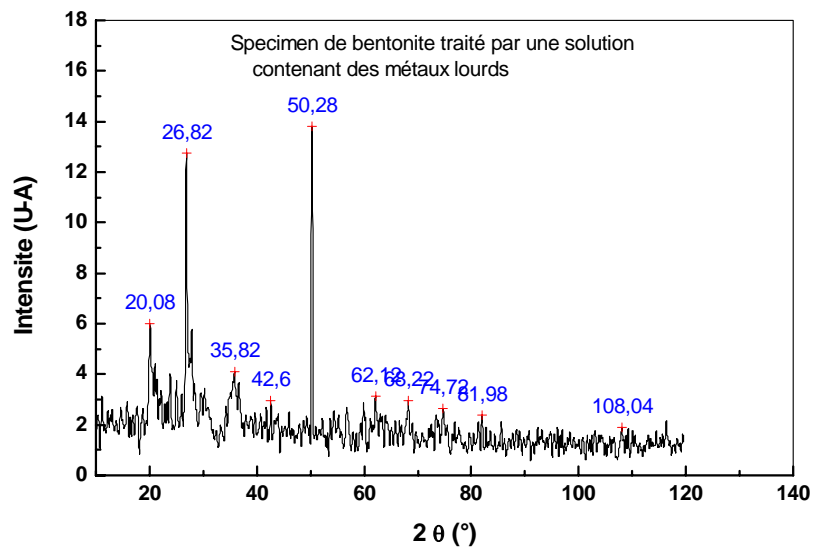


Figure 6.6. Spectre de la diffraction aux rayons X de la bentonite de Maghnia (spécimen traité par une solution contenant des métaux lourds)

Pour le spécimen contaminé par le Lixiviat I, une augmentation apparente de la teneur en bentonite-Ca peut être observée (apparition d'un pic) cependant le pic de la bentonite-Na demeure et domine toujours dans le spectre. Ce fait est du probablement au lessivage d'ions  $\text{Na}^+$  par le lixiviat.

Le spectre de la diffraction du spécimen contaminé par le Lixiviat II ne montre pas de modifications apparentes quant à la nature de la composition chimique de la bentonite.

Le spécimen de bentonite mis en contact avec la solution contenant les ions de métaux lourds (Cu, Pb, Zn, Cd, Mn et Ni) ne semble pas avoir subi des changements notables excepté l'apparition d'un pic magnésium. Cette variation dans le teneur en Mg peut être associée à un processus d'échange cationique entre la bentonite et la solution.

Il est évident d'après les résultats de la diffraction aux rayons X menés sur les différents échantillons de bentonite que l'interaction Lixiviat I- bentonite produit des effets négatifs sur les propriétés d'imperméabilisation de la bentonite elle-même, cependant cet effet reste relativement petit d'après les divers essais réalisés dans cette étude.

### 6.3 Analyse de l'action des lixiviats et des métaux lourds sur la composition chimique de la bentonite

Les résultats des analyses de la composition chimique de la bentonite après une longue exposition aux lixiviats (Lixiviat I, Lixiviat II et métaux lourds) sont résumés sur le tableau 6.5 ci-dessous.

| Elemets                        | B.V.A | B.L.M | B.L.I | B.L.L |
|--------------------------------|-------|-------|-------|-------|
| SiO <sub>2</sub>               | 58.1  | 62.74 | 63.65 | 61.10 |
| Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | 17.01 | 16.83 | 16.64 | 16.83 |
| Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> | 2.03  | 2.03  | 2.32  | 2.03  |
| CaO                            | 1.22  | 1.63  | 1.83  | 1.42  |
| MgO                            | 2.34  | 2.78  | 2.78  | 2.34  |
| SO <sub>3</sub>                | 0.00  | 0.00  | 0.00  | 0.00  |
| CO <sub>2</sub>                | 9.65  | 9.17  | 8.62  | 10.36 |
| CaCO <sub>3</sub>              | 3.28  | 2.45  | 2.99  | 3.80  |
| Total                          | 90.35 | 95.18 | 95.84 | 94.08 |
| % Inconnu                      | 9.65  | 4.82  | 4.16  | 5.92  |

B.V.A : bentonite vierge

B.L.M : bentonite contaminée par un lixiviat ménager (Lixiviat I)

B.L.I : bentonite contaminée par un lixiviat industriel (Lixiviat II)

B.L.L : bentonite contaminée par des métaux lourds (Cu + Pb)

Tableau 6.5 Analyse de la bentonite contaminée

Ces analyses montrent que les lixiviats ont eu comme effets sur la composition de la bentonite :

- une augmentation de la teneur en Ca.
- une augmentation de la teneur en Mg.
- une augmentation de la teneur en  $\text{SiO}_2$ .
- une diminution de la teneur en  $\text{Al}_2\text{O}_3$ .
- une diminution de la teneur en  $\text{CaCO}_3$ .

L'effet des métaux lourds sur la composition de la bentonite s'est traduit par :

- une augmentation de la teneur en Ca.
- une augmentation de la teneur en  $\text{SiO}_2$ .
- une diminution de la teneur en  $\text{Al}_2\text{O}_3$ .
- une légère augmentation de la teneur en  $\text{CaCO}_3$ .

L'augmentation de la teneur en Ca est due probablement à une précipitation des carbonates. Les variations dans les teneurs de Mg,  $\text{SiO}_2$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  et  $\text{CaCO}_3$  peuvent être associés à un processus d'échange cationique entre la bentonite et les différents contaminants.

Il est évident que l'interaction bentonite-contaminants montre un aspect négatif sur les propriétés de gonflement de la bentonite à travers l'augmentation de la teneur de Ca, bien que cette augmentation reste relativement petite.

#### **6.4 Effet des métaux lourds sur le pH de la bentonite**

Le pH de la bentonite est égal à 10.05. Ce résultat est conforme à ce que l'on trouve dans la littérature, c'est-à-dire un pH légèrement ou fortement alcalin (Winiarski, 1994).

Les pH des échantillons de bentonites contaminés par les solutions de métaux lourds (tableau 6.6) montrent une très légère diminution par rapport au pH obtenu dans une solution d'eau déminéralisée. Avec de pareilles valeurs de pH, la bentonite va garder tout son pouvoir d'adsorption. En effet, un pH élevé défavorisera le phénomène de floculation de l'argile ; réduisant ainsi les interstices particuliers et dès lors la perméabilité de la bentonite. En conséquence, les bentonites sodiques présentent un pH élevé (Lagaly, 1989).

| Echantillons                                    | pH    |
|---|-------|
| Eau distillée + bentonite                       | 10.05 |
| Solution de cuivre + bentonite                  | 9.98  |
| Solution de zinc + bentonite                    | 10.03 |
| Solution de cadmium + bentonite                 | 9.95  |
| Solution de plomb + bentonite                   | 9.96  |
| Solution de nickel + bentonite                  | 9.95  |
| Solution de manganèse + bentonite               | 9.95  |
| <i>Solution des 6 métaux lourds + bentonite</i> | 10.03 |

Tableau 6.6 Effets des métaux lourds sur le pH de la bentonite

### 6.5 Effet des lixiviats sur le pH de la bentonite

Les pH des échantillons de bentonite contaminés par les lixiviats sont reportés dans le tableau 6.7 ci-dessous.

| Echantillons                   | pH   |
|--------------------------------|------|
| Lixiviat I + bentonite         | 9.09 |
| <i>Lixiviat II + bentonite</i> | 9.93 |

Tableau 6.7 Effets des lixiviats sur le pH de la bentonite

Le pH de la bentonite n'a pas subi de modification notable en référence à celui obtenu dans la solution d'eau déminéralisée, ce qui signifie l'absence d'un processus d'échange entre la bentonite et les lixiviats.

### 6.6 Action des métaux lourds sur les limites d'Atterberg de la bentonite

Les résultats des essais réalisés sont donnés sur le tableau 6.8.

| Echantillons                                    | LL  | PL | IP  |
|---|-----|----|-----|
| Eau distillée + bentonite                       | 216 | 36 | 180 |
| Solution de cuivre + bentonite                  | 180 | 27 | 153 |
| Solution de zinc + bentonite                    | 188 | 26 | 162 |
| Solution de cadmium + bentonite                 | 182 | 22 | 160 |
| Solution de plomb + bentonite                   | 185 | 28 | 157 |
| Solution de nickel + bentonite                  | 179 | 28 | 151 |
| Solution de manganèse + bentonite               | 178 | 22 | 156 |
| <i>Solution des 6 métaux lourds + bentonite</i> | 193 | 28 | 165 |

Tableau 6.8 Action des métaux lourds sur les limites d'Atterberg de la bentonite

Tous les résultats indiquent que les métaux lourds ont entraîné une réduction de la plasticité de la bentonite en référence aux valeurs obtenues par l'eau déminéralisée. Cette réduction dans la plasticité a eu lieu à la suite d'une diminution dans les valeurs de la liquidité et de la plasticité.

Les mêmes résultats ont été reportés sur le diagramme de plasticité de Casagrande (fig6.7.), ou les effets des métaux lourds deviennent particulièrement évidents. On remarque cependant que la réduction de plasticité reste assez faible et une détérioration dans la qualité d'imperméabilisation du matériau reste très peu probable. Les résultats obtenus restent en bon agrément avec ceux publiés dans la littérature qui indiquent que les argiles en général perdent en plasticité par une réduction de la liquidité et la plasticité quand elles sont mélangées à des solutions contaminantes de métaux lourds et de lixiviats.

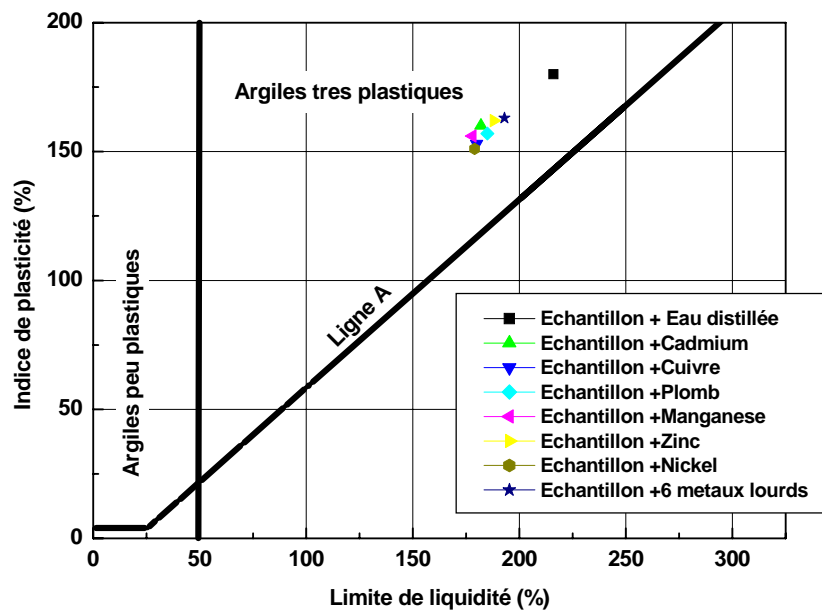


Figure 6.7. Action des métaux lourds sur la plasticité de la bentonite

### 6.7 Action des lixiviats sur les limites d'Atterberg de la bentonite

| Echantillons                   | LL  | PL | IP  |
|--------------------------------|-----|----|-----|
| Eau distillée + bentonite      | 216 | 36 | 180 |
| Lixiviat I + bentonite         | 187 | 25 | 162 |
| <i>Lixiviat II + bentonite</i> | 198 | 22 | 176 |

Tableau 6.9. Action des lixiviats sur les limites d'Atterberg

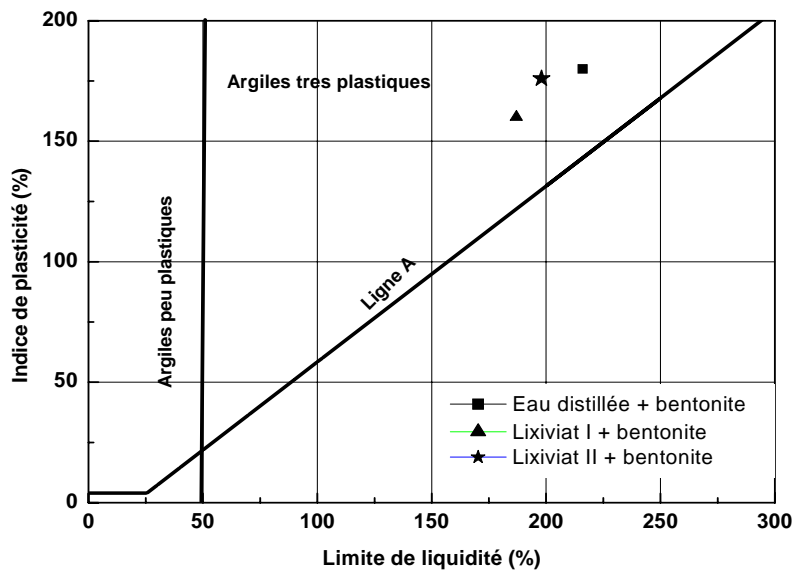


Figure 6.8 Action des lixiviats sur la plasticité de la bentonite

Les résultats des essais de l'effet des lixiviats sur la plasticité de la bentonite sont résumés dans le tableau 6.9 et représentés sur le diagramme de plasticité de Casagrande (figure 6.8). Cet effet apparaît très faible et n'altère pas d'une manière significative les propriétés de plasticité de la bentonite. On notera cependant que l'effet du lixiviat I été plus grand que le lixiviat II à cause de sa nature inorganique et de son pH élevé.

### 6.8 Effet des métaux lourds sur l'absorption d'eau sur plaque (Plate Water Absorption-PWA)

Le test a été mené sur des échantillons de bentonite qui ont été mis en contact avec de solutions contaminées par divers métaux lourds. L'accroissement du poids de l'échantillon est contrôlé sur une période maximale de temps (18 heures selon la norme). Les résultats obtenus sont présentés dans le tableau 6.10.



| Echantillons                                    | Accroissement du poids de l'échantillon en % après 18 H |
|---|---|
| Eau distillée + bentonite                       | 900 %   |
| Solution de cuivre + bentonite                  | 780 %   |
| Solution de zinc + bentonite                    | 790 %   |
| Solution de cadmium + bentonite                 | 750 %   |
| Solution de plomb + bentonite                   | 755 %   |
| Solution de nickel + bentonite                  | 870 %   |
| Solution de manganèse + bentonite               | 840 %   |
| <i>Solution des 6 métaux lourds + bentonite</i> | 600 %   |

Tableau 6.10 Effets des métaux lourds sur l'accroissement du poids de la bentonite

Il existe deux tests reliant l'absorption d'eau au changement de volume correspondant pour une quantité donnée d'argile : ce sont les tests d'absorption d'eau sur plaque, un test Américain (PWA) et le test Européen Enslin-Neff (normalisé en Allemagne, DIN E 18132).

Les résultats de l'absorption d'eau sur plaque (PWA) pour la bentonite étudiée varient entre 780 et 900 % .Ces résultats indiquent la nature sodique de la bentonite en accord avec les valeurs des normes qui les situent entre 700 et 1000 % d'après la norme Américaine ASTM E-946.Ils présentent également une bonne corrélation avec le test de gonflement libre (voir paragraphe suivant).

### **6.9 Effet des lixiviats sur l'absorption d'eau sur plaque (Plate Water Absorption- PWA)**

| Echantillons                   | Accroissement du poids de l'échantillon en % après 18 H |
|--------------------------------|---|
| Eau distillée + bentonite      | 900 %   |
| Lixiviat I + bentonite         | 710 %   |
| <i>Lixiviat II + bentonite</i> | 790 %   |

Tableau 6.11 Effets des lixiviats sur l'accroissement du poids de la bentonite

Les résultats des essais de l'absorption d'eau sur plaque (tableau 6.11) montrent un comportement de la bentonite contaminée par les lixiviats proche de celui de la bentonite saine (additionnée d'eau déminéralisée). Ces résultats qui confirment que la bentonite garde globalement intacte ses propriétés d'absorption d'eau et que sa nature de bentonite sodique n'est pas également modifiée par des processus d'échange d'ions induits par la nature du contaminant

### 6.10 Effet des métaux lourds sur le gonflement de la bentonite

Les essais de gonflement ont été produits selon la procédure décrite dans le chapitre 5. Le but de ces expériences est de mesurer le gonflement libre de la bentonite à l'intérieur des différents milieux contaminés par les métaux lourds  $\text{Cu}^{2+}$ ,  $\text{Pb}^{2+}$ ,  $\text{Zn}^{2+}$ , Cd, Mn, Ni. Selon la littérature, il existe une relation générale, établie de façon qualitative entre le gonflement de la bentonite et la conductivité hydraulique de la couche sable bentonite. A partir des résultats de la présente partie, l'objectif sera de préciser cette relation pour les métaux lourds et la bentonite de Maghnia. L'essai de gonflement libre permet à la bentonite de gonfler en fonction du temps afin d'atteindre une valeur maximale. Le temps alloué aux échantillons de bentonite pour gonfler et atteindre l'équilibre devait être déterminé avant de débiter les essais proprement dits. Ceci a été fait selon la procédure décrite à l'annexe A. Dès les premières 12 heures, la plupart des échantillons avaient atteint l'équilibre, le gonflement ne variant que très légèrement par la suite (tableau 6.12). Les résultats ont donc été pris après 48 heures, permettant à la surface de la bentonite gonflée de s'aplanir, facilitant ainsi la prise de la lecture.

| Temps                | T=1h | T=2h | T=6h | T=12h | T=48h |
|----------------------|------|------|------|-------|-------|
| Gonflement solutions | %    | %    | %    | %     | %     |
| (a)                  | 500  | 600  | 700  | 710   | 720   |
| (b)                  | 300  | 500  | 600  | 620   | 660   |
| (c)                  | 200  | 300  | 350  | 500   | 500   |
| (d)                  | 360  | 400  | 500  | 600   | 600   |
| (e)                  | 200  | 350  | 450  | 560   | 600   |
| (f)                  | 350  | 400  | 500  | 600   | 640   |
| (g)                  | 200  | 350  | 480  | 550   | 600   |
| (h)                  | 325  | 375  | 500  | 600   | 640   |

Tableau 6.12 Gonflement de la bentonite en présence de métaux lourds

- (a): solution d'eau distillée
- (b): solution de cuivre
- (c): solution de plomb
- (d) : solution de zinc
- (e) : solution de manganèse
- (f): solution de nickel
- (g): solution de cadmium
- (h) : solution d'un mélange de l'ensemble des 6 métaux lourds

Les résultats du gonflement libre sont présentés sous forme graphique (figure6.9).

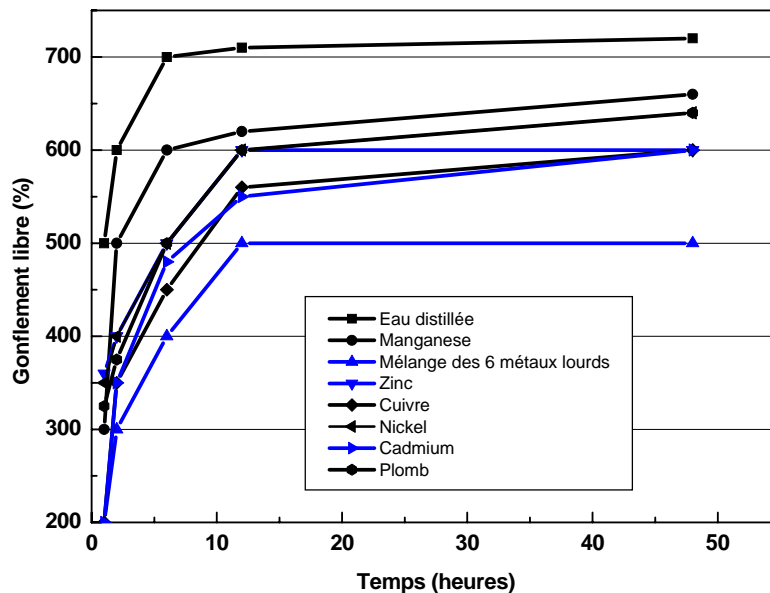


Figure 6.9. Gonflement libre-50 ppm de l'ion métallique

L'examen des courbes de gonflement libre pour les différents polluants montre en effet que, selon la théorie de Gouy-Chapman, la valence des métaux lourds en présence contribue à la diminution de l'épaisseur de la double couche. Ce qui tend à réduire l'épaisseur de la double couche diffuse et agit comme un inhibiteur sur le gonflement (Wu et Khera, 1990). Le lien entre ce que contient la solution et le gonflement libre de la bentonite est mieux défini en exprimant le gonflement en fonction de la valence de la solution. C'est ainsi qu'on pourra expliquer la différence entre ce que provoque l'eau désionisée, le Mn et le  $\text{Cu}^{2+}$ , le  $\text{Pb}^{2+}$ ,  $\text{Cd}^{2+}$  sur le gonflement libre de la bentonite. Le gonflement libre de la bentonite décroît en fonction de l'augmentation de la valence de la solution de façon générale. Cependant les variations

obtenues dans le gonflement libre des différents échantillons peuvent suggérer qu'à valences égales d'autres facteurs peuvent influencer le gonflement.

### 6.11 Effet des lixiviats sur le gonflement de la bentonite

| Temps                | T=1h | T=2h | T=6h | T=12h | T=48h |
|----------------------|------|------|------|-------|-------|
| Gonflement solutions | %    | %    | %    | %     | %     |
| (a)                  | 500  | 600  | 700  | 710   | 720   |
| (b)                  | 260  | 520  | 530  | 550   | 590   |
| (c)                  | 230  | 560  | 570  | 580   | 610   |

Tableau 6.13 Gonflement de la bentonite en présence de lixiviats

- (a) eau distillée + bentonite
- (b) lixiviat I + bentonite
- (c) lixiviat II + bentonite

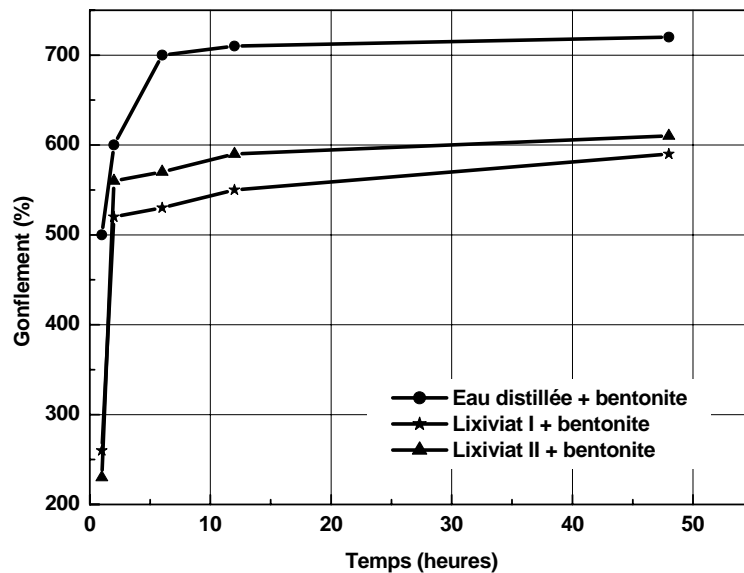


Figure 6.10 Gonflement libre en présence des lixiviats

Le gonflement libre de la bentonite en présence des lixiviats (Lixiviat I et II) représenté sur la figure 6.10 selon les résultats obtenus (tableau 6.13) montrent un comportement proche de celui induit par la solution d'eau distillée avec cependant une légère réduction dans le gonflement finale pour les deux contaminants. La composition très complexe des lixiviats et en particulier de celui généré par les déchets urbains empêche d'imputer cette réduction à un paramètre en particulier. Cependant l'effet du lixiviat I peut être expliqué en partie par la légère augmentation du pH.

## 6.12 Les essais de lixiviation en colonnes

Les essais de lixiviation ont été réalisés selon la procédure décrite au chapitre 5. Cette expérience a pour but, premièrement, de mesurer la conductivité hydraulique des mélanges sable bentonite en fonction du type d'ions métalliques à l'intérieur des solutions qui traversent les échantillons. Deuxièmement, elle a pour but de mesurer les courbes de percée des métaux lourds à l'intérieur des mélanges. Ces résultats seront comparés à ceux obtenus précédemment afin d'établir des liens entre l'impact des métaux lourds sur la bentonite et l'impact de ceux-ci sur les couches de sable bentonite.

Suite aux essais préliminaires, la teneur en bentonite des mélanges sable bentonite est fixée à 10%. Les mélanges sable bentonite ont été compactés afin d'atteindre un poids volumique sec autour de 95% de l'optimum Proctor normal.

Le tableau 6.14 montre les valeurs des perméabilités des mélanges sable bentonite en fonction du temps pour le passage des solutions  $\text{Cu}^{2+}$ ,  $\text{Pb}^{2+}$ ,  $\text{Zn}^{2+}$ , solution contenant du  $\text{Cu}^{2+}$  et  $\text{Pb}^{2+}$  mélangés et une solution d'eau déminéralisée. La perméabilité a été mesurée pour le passage de l'eau et pour le passage des solutions polluantes.

| Solution                                      | Perméabilité (cm/s)   |
|---|-----------------------|
| Eau déminéralisée                             | $2.05 \times 10^{-8}$ |
| Solution de $\text{Cu}^{2+}$                  | $6.70 \times 10^{-7}$ |
| Solution de $\text{Pb}^{2+}$                  | $8.5 \times 10^{-7}$  |
| Solution de $\text{Zn}^{2+}$                  | $5.29 \times 10^{-7}$ |
| Solution de $\text{Cu}^{2+} + \text{Pb}^{2+}$ | $2.3 \times 10^{-6}$  |

Tableau 6.14 Valeurs des perméabilités des mélanges sable bentonite pour des solutions polluantes

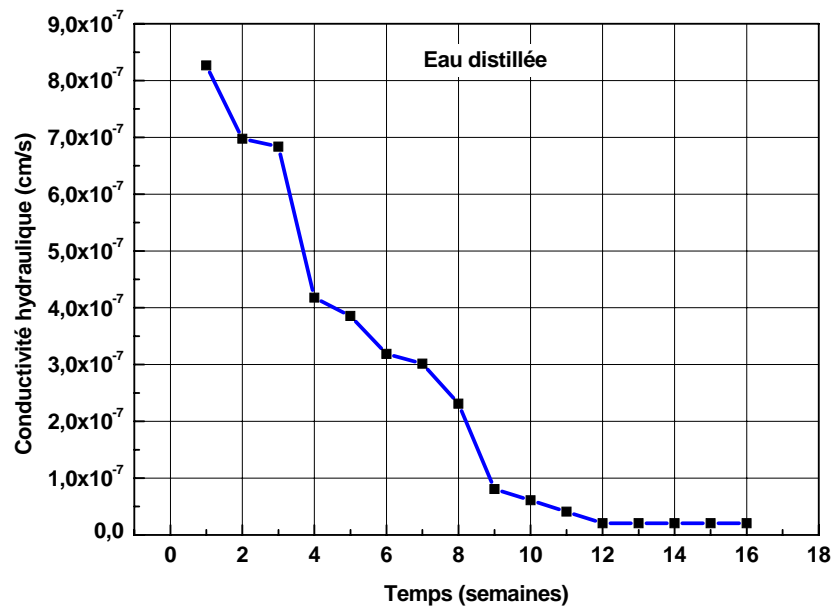


Figure 6.11 : Résultats de l'essai de perméabilité (dans le moule) sur le mélange sable bentonite contaminée par une solution d'eau déminéralisée

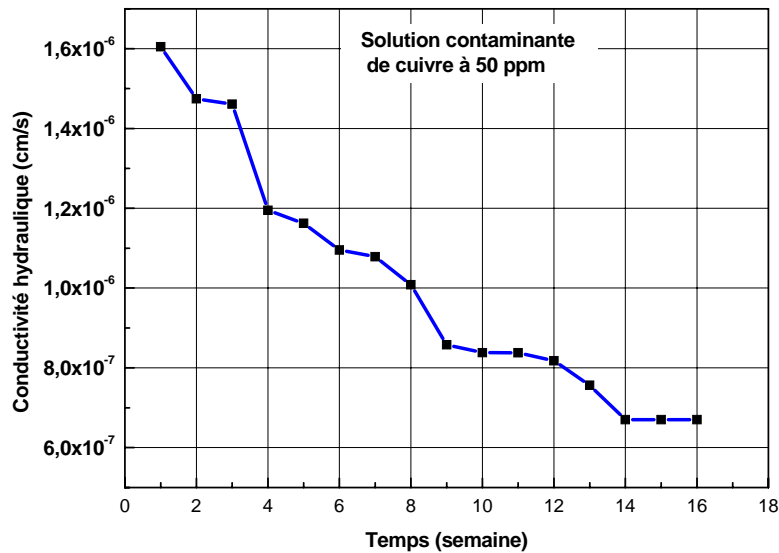


Figure 6.12 : Résultats de l'essai de perméabilité (dans le moule) sur le mélange sable bentonite contaminée par une solution de  $\text{Cu}^{2+}$  à 50 ppm

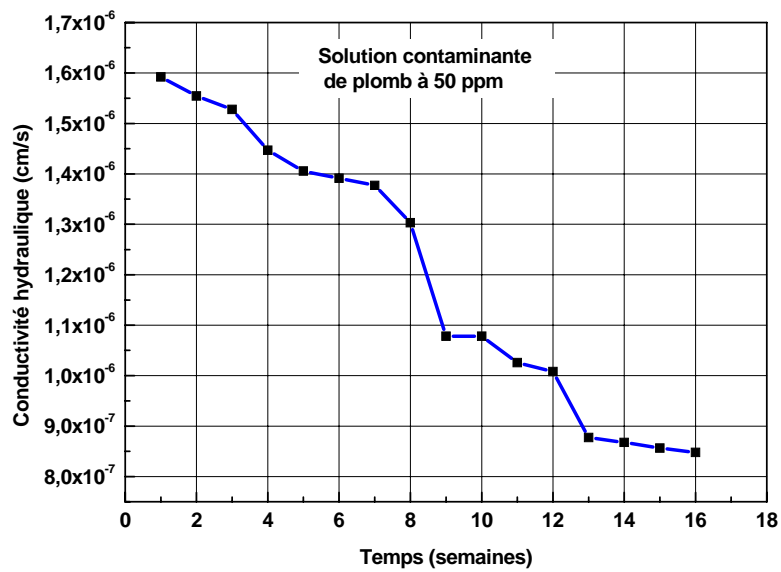


Figure 6.13 : Résultats de l'essai de perméabilité (dans le moule) sur le mélange sable bentonite contaminée par une solution de  $Pb^{2+}$  à 50 ppm

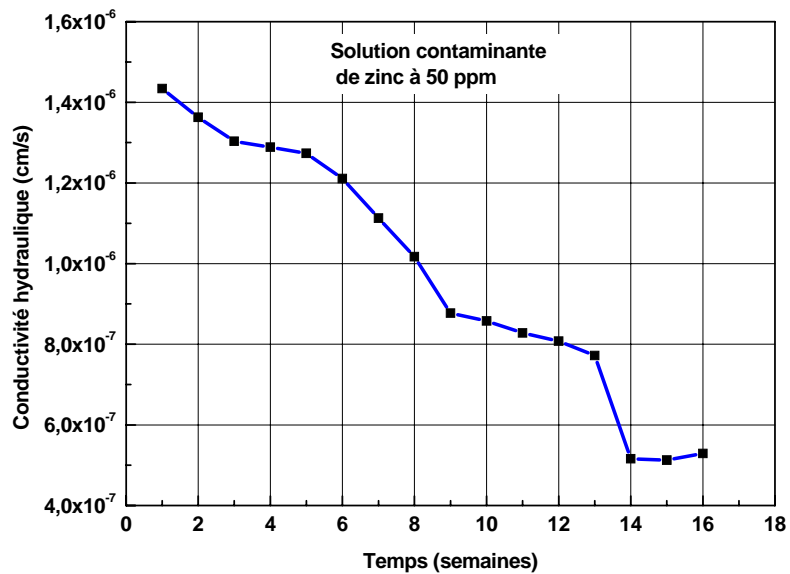


Figure 6.14 : Résultats de l'essai de perméabilité (dans le moule) sur le mélange sable bentonite contaminée par une solution de  $Zn^{2+}$  à 50 ppm

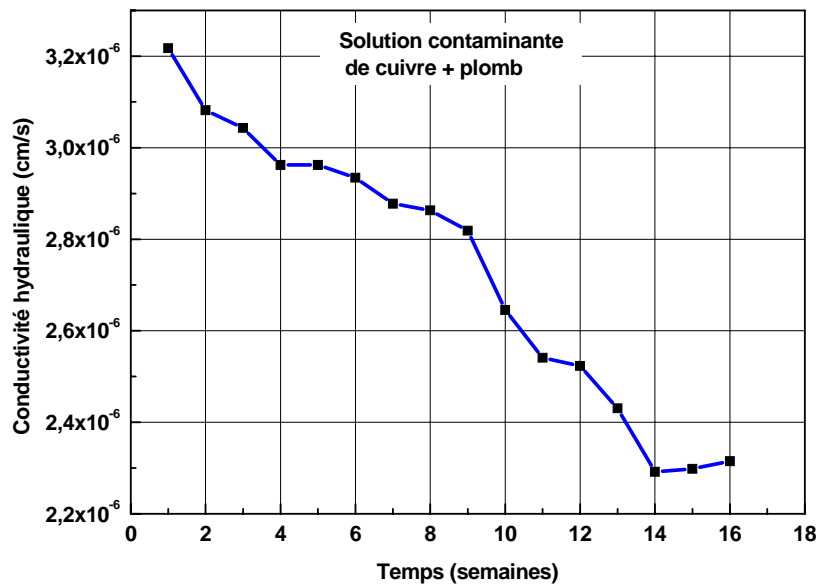


Figure 6.15 : Résultats de l'essai de perméabilité (dans le moule) sur le mélange sable bentonite contaminée par une solution de  $\text{Cu}^{2+}$  et  $\text{Pb}^{2+}$  à 50 ppm

L'évolution de la perméabilité des échantillons de sable bentonite est représentée par les graphes des figures 6.11, 6.12, 6.13, 6.14, et 6.15. Cette évolution de la perméabilité est progressive presque linéaire. La perméabilité du mélange sable bentonite avec la solution d'eau déminéralisée était initialement égale  $8.26 \times 10^{-7}$  cm/s, elle diminue de près de 1 ordre de grandeur pour atteindre  $2.05 \times 10^{-8}$  cm/s et se stabilisée après 12 semaines d'essai. Pour les perméabilités des mélanges contaminés par le  $\text{Cu}^{2+}$ , le  $\text{Pb}^{2+}$  et le  $\text{Zn}^{2+}$ , la diminution a également était de près de 1 ordre de grandeur par rapport à aux valeurs du début de l'essai pour donner respectivement  $1.60 \times 10^{-6}$  cm/s,  $1.59 \times 10^{-6}$  cm/s et  $1.43 \times 10^{-6}$  cm/s et se stabilisés après 14 semaines en donnant respectivement les valeurs  $6.70 \times 10^{-7}$  cm/s,  $8.47 \times 10^{-7}$  cm/s et  $5.29 \times 10^{-7}$  cm/s. On remarque également pour ces valeurs finales des mélanges sable bentonite contaminés, une augmentation de la perméabilité d'1 ordre de grandeur par rapport au mélange testé avec de l'eau déminéralisée. Concernant l'évolution de la perméabilité du mélange contaminé par les contaminants  $\text{Cu}^{2+} + \text{Pb}^{2+}$ , elle a plus ou moins rapide et la diminution assez faible puisqu'elle est passée de  $3.12 \times 10^{-6}$  cm/s à  $2.3 \times 10^{-6}$  cm/s et se stabilisée autour de cette dernière valeur. L'augmentation de la perméabilité a été de 2 ordres de grandeur comparativement à celle obtenue par l'eau déminéralisée quand ces 02 ions métalliques ont été associés dans la même solution contaminante.

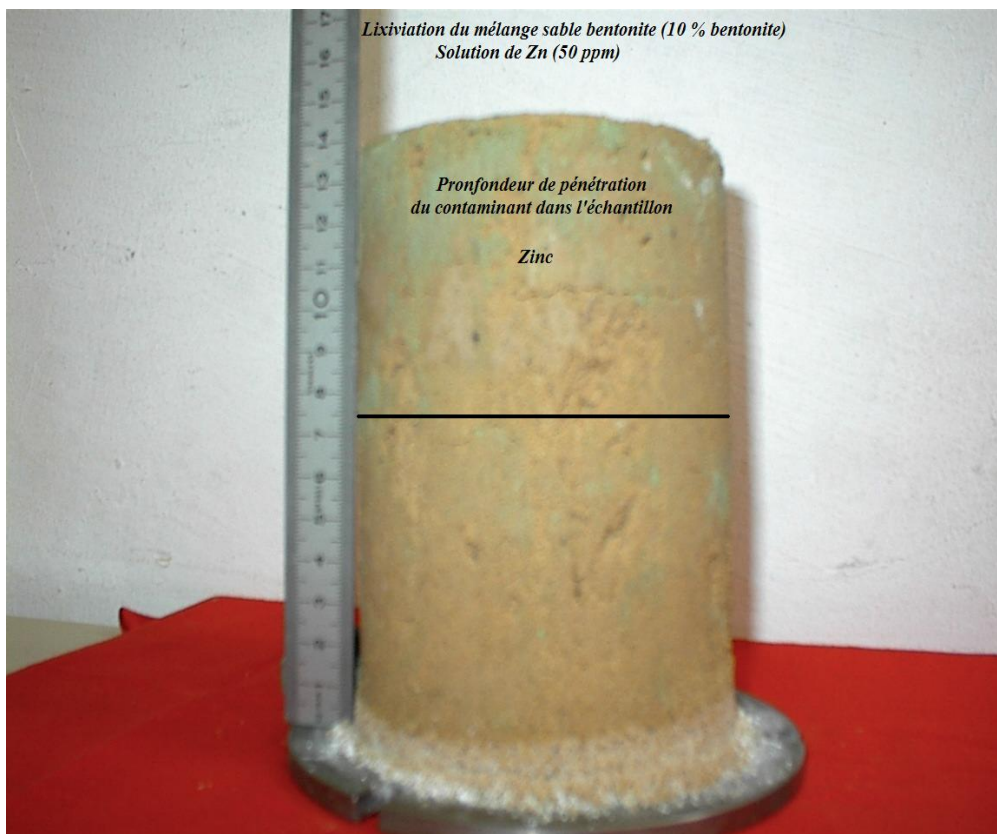


De façon générale par rapport à l'eau déminéralisée, la présence des ions métalliques a provoquée une augmentation de la perméabilité des mélanges après une phase commune à l'ensemble des essais caractérisée par une diminution progressive de la perméabilité. Cette diminution peut s'expliquer par la saturation des échantillons, ainsi que par les fuites probables le long de la surface latérale du moule de lixiviation. Après cette phase, la perméabilité des échantillons s'est plus ou moins stabilisée.

Le gonflement de la bentonite des mélanges sable bentonite, globalement, a diminué en fonction de l'augmentation de la valence des ions métalliques. Ce qui correspond à une diminution de l'épaisseur de la couche diffuse. Le gonflement de la bentonite étant l'élément qui donne au mélange ses propriétés d'imperméabilisation. Plusieurs paramètres contribuent à faire varier la perméabilité des mélanges sable bentonite : l'épaisseur de la couche, le pourcentage de bentonite, le degré de compactage, le type de bentonite employée, etc. Selon cette étude, la valence et la concentration des ions métalliques qui traverse la couche constitue un autre paramètre à considérer.

### **6.13 Percée des métaux lourds à l'intérieur des mélanges sable bentonite**

Les photographies présentées sur la figure 6.16 a, b et c montrent la distribution géochimique des métaux lourds à travers les mélanges de sable bentonite. Cette distribution géochimique permet de connaître les capacités de rétention des mélanges. Les profondeurs des courbes de percées pour chaque contaminant sont visibles sur les coupes réalisées sur chaque échantillon testé (figure 6.17) et le détail pour chaque coupe sur la figure 6.18.a),b) et c). Ces photographies font apparaître les capacités assez élevées de rétention des métaux lourds des mélange sable bentonite sur le long terme, du moment que la partie supérieur de l'échantillon, sur une hauteur moyenne de 5cm pour les 03 tests, a joué le rôle de tampon pour bloquer les métaux lourds sur une période de plus de deux ans. Le mélange sable bentonite a montré un grand pouvoir épuratoire vis à vis des 03 métaux lourds utilisés dans ces essais en colonnes sans perdre ses caractéristiques mécaniques et d'imperméabilisation.



(a)



(b)



(c)

Figure 6.16 Percée des métaux lourds à l'intérieur des mélanges sable bentonite  
(a) percée du Zn (b) percée du Pb (c) percée du Cu



Figure 6.17 Coupes effectuées sur les échantillons au niveau des courbes de percées des  
métaux lourds



a)



b)



c)

Figure 6.18 Détails des coupes effectuées

a) Cu

b) Pb

c) Zn

## 6.14 Résultats des essais de conductivité hydraulique sur perméamètre à charge variable sur les mélanges sable bentonite

### a- Effets des métaux lourds

| Conductivité hydraulique (cm/s) | Cu <sup>2+</sup>       | Pb <sup>2+</sup>       | Cu <sup>2+</sup> +Pb <sup>2+</sup> | Eau distillée           |
|---------------------------------|------------------------|------------------------|------------------------------------|-------------------------|
| Temps (jours)                   |                        |                        |                                    |                         |
| 1                               | 7.56 x10 <sup>-8</sup> | 8.44 x10 <sup>-8</sup> | 6.7x10 <sup>-8</sup>               | 1.9 x 10 <sup>-9</sup>  |
| 2                               | 6.01 x10 <sup>-8</sup> | 8.04 x10 <sup>-8</sup> | 6.1x10 <sup>-8</sup>               | 1.83 x 10 <sup>-9</sup> |
| 3                               | 5.88 x10 <sup>-8</sup> | 7.66 x10 <sup>-8</sup> | 5.9x10 <sup>-8</sup>               | 1.79 x 10 <sup>-9</sup> |
| 4                               | 4.82 x10 <sup>-8</sup> | 7.11 x10 <sup>-8</sup> | 5.5x10 <sup>-8</sup>               | 1.7 x 10 <sup>-9</sup>  |
| 5                               | 5.09 x10 <sup>-8</sup> | 6.55 x10 <sup>-8</sup> | 5.4x10 <sup>-8</sup>               | 1.5 x 10 <sup>-9</sup>  |
| 6                               | 5.2 x10 <sup>-8</sup>  | 5.01 x10 <sup>-8</sup> | 5.35x10 <sup>-8</sup>              | 1.23 x 10 <sup>-9</sup> |
| 7                               | 5.3 x10 <sup>-8</sup>  | 4.25 x10 <sup>-8</sup> | 5.35x10 <sup>-8</sup>              | 9.6 x 10 <sup>-10</sup> |
| 8                               | 5.0 x10 <sup>-8</sup>  | 4.11 x10 <sup>-8</sup> | 5.35x10 <sup>-8</sup>              | 9.6 x 10 <sup>-10</sup> |

Tableau 6.15 Evolution de la perméabilité des mélanges sable bentonite en fonction du type de contaminant (métaux lourds)

Le tableau 6.15 et la figure 6.19 montrent l'évolution de la conductivité hydraulique des mélanges sable bentonite en fonction de la solution passée à dans l'échantillon. La conductivité hydraulique a été mesurée pour l'eau distillée et pour les solutions de cuivre, plomb et cuivre plus plomb. L'évolution de la perméabilité du mélange obtenue avec de l'eau a été très faible et égale  $9.6 \times 10^{-10}$  cm/s. L'évolution obtenue avec le Cu et le Pb a été différente mais les conductivités hydrauliques se sont stabilisées autour de valeurs très proches et supérieures d'environ un ordre de grandeur et demi à celle obtenue avec de l'eau. L'association du Cu et du Pb a donnée une évolution comparable au comportement individuel de chaque élément seul et l'accroissement de la conductivité hydraulique par rapport à celle de l'eau est resté comparable à celle de l'élément seul (environ un ordre de grandeur).

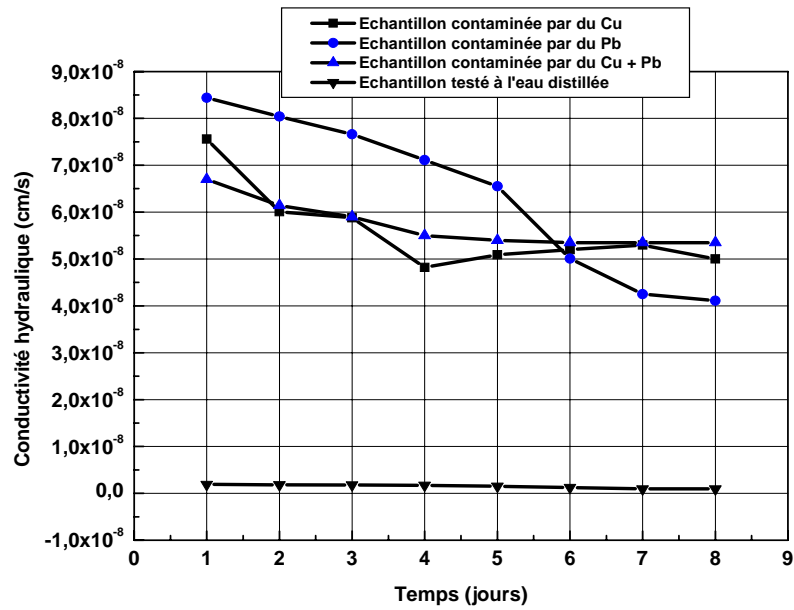


Figure 6.19 Evolution de la perméabilité des mélanges sable bentonite en fonction du type de contaminant (métaux lourds)

### b- Effets des lixiviats

| Conductivité hydraulique (cm/s) | Lixiviat I            | Lixiviat II           | Eau distillée         |
|---------------------------------|-----------------------|-----------------------|-----------------------|
| <b>Temps (jours)</b>            |                       |                       |                       |
| 1                               | $5.58 \times 10^{-7}$ | $5.04 \times 10^{-8}$ | $1.9 \times 10^{-9}$  |
| 2                               | $5.36 \times 10^{-7}$ | $4.2 \times 10^{-8}$  | $1.83 \times 10^{-9}$ |
| 3                               | $4.32 \times 10^{-7}$ | $3.69 \times 10^{-8}$ | $1.79 \times 10^{-9}$ |
| 4                               | $3.65 \times 10^{-7}$ | $3.02 \times 10^{-8}$ | $1.7 \times 10^{-9}$  |
| 5                               | $3.21 \times 10^{-7}$ | $2.46 \times 10^{-8}$ | $1.5 \times 10^{-9}$  |
| 6                               | $2.2 \times 10^{-7}$  | $2.4 \times 10^{-8}$  | $1.23 \times 10^{-9}$ |
| 7                               | $2.32 \times 10^{-7}$ | $2.4 \times 10^{-8}$  | $9.6 \times 10^{-10}$ |

Tableau 6.16 Evolution de la perméabilité des mélanges sable bentonite en fonction du type de contaminant (lixiviats)

Le tableau 6.16 et la figure 6.20 illustrent les résultats des essais de conductivité hydraulique effectués sur des mélanges sable bentonite à une teneur de 10 % de bentonite. L'analyse de ces résultats montre que la perméabilité du mélange avec de l'eau est égale à  $9.6 \times 10^{-10}$  cm/s. Celle-ci est environ 01 fois plus faible que celle obtenue pour le Lixiviat II et elle est de 02 fois plus faible pour le Lixiviat I. La conductivité hydraulique du mélange avec le Lixiviat I a augmentée rapidement pour atteindre une valeur de  $2.32 \times 10^{-7}$  cm/s. On remarque par contre que l'augmentation de la conductivité hydraulique pour le cas de l'eau et du Lixiviat II, s'est faite d'une manière presque linéaire

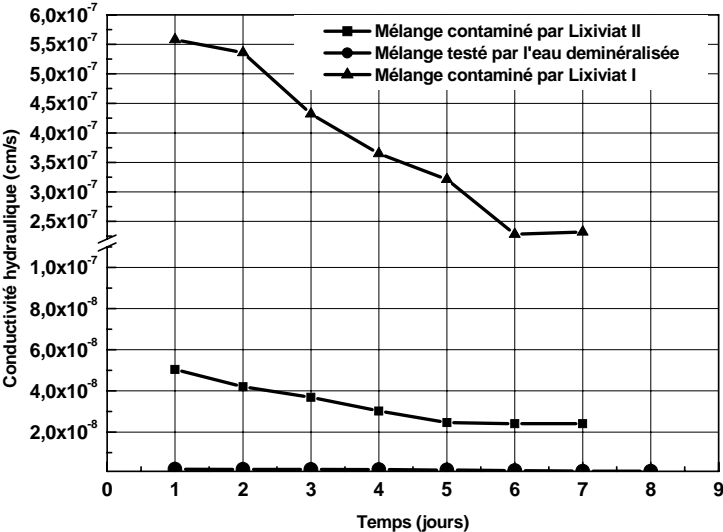


Figure 6.20 Evolution de la perméabilité des mélanges sable bentonite en fonction du type de contaminant (lixiviats)

## 6.15 Résultats des essais de caractérisation mécanique à la boîte des mélanges sable bentonite

### a- Résultats pour les spécimens contaminés par des métaux lourds

| $\sigma_n$ (kPa / cm <sup>2</sup> ) | $\tau$ = (kPa / cm <sup>2</sup> ) | Caractéristiques mécaniques du mélange sable bentonite<br>c : kPa.      Ø : en degrés. |
|-------------------------------------|-----------------------------------|--|
| 100                                 | 55                                | c = 9.33<br>Ø = 25   |
| 200                                 | 106                               |  |
| 300                                 | 149                               |  |

#### - Contaminant Cuivre (Cu<sup>2+</sup>) –

| $\sigma_n$ (kPa / cm <sup>2</sup> ) | $\tau$ = (kPa / cm <sup>2</sup> ) | Caractéristiques mécaniques du mélange sable bentonite<br>c : kPa.      Ø : en degrés. |
|-------------------------------------|-----------------------------------|--|
| 100                                 | 59                                | c = 5<br>Ø = 27  |
| 200                                 | 107                               |  |
| 300                                 | 164                               |  |

#### - Contaminant Plomb (Pb<sup>2+</sup>) –

| $\sigma_n$ (kPa / cm <sup>2</sup> ) | $\tau$ = (kPa / cm <sup>2</sup> ) | Caractéristiques mécaniques du mélange sable bentonite<br>c : kPa.      Ø : en degrés. |
|-------------------------------------|-----------------------------------|--|
| 100                                 | 54                                | c = 9.6<br>Ø = 25  |
| 200                                 | 103                               |  |
| 300                                 | 145                               |  |

#### - Contaminant Plomb (Cu<sup>2+</sup> + Pb<sup>2+</sup>) –



| $\sigma_n$ (kPa / cm <sup>2</sup> ) | $\tau$ = (kPa / cm <sup>2</sup> ) | Caractéristiques mécaniques du mélange sable bentonite<br>c : kPa.      Ø : en degrés. |
|-------------------------------------|-----------------------------------|--|
| 100                                 | 65                                | c = 7<br>Ø = 25  |
| 200                                 | 99                                |  |
| 300                                 | 169                               |  |

- Eau déminéralisée –

Tableau 6.17 Résultats des essais de cisaillement sur des mélanges sable bentonite en présence de métaux lourds

Les résultats des essais de cisaillement à la boîte donnés ci-dessus (tableau 6.17) montrent que les métaux lourds utilisés (Cu et Pb), ainsi que leur combinaison n'ont pas altérés d'une manière remarquable les caractéristiques mécaniques des mélanges sable bentonite testés et ceci en comparaison avec l'essai réalisé à l'eau déminéralisée. L'ensemble des essais a montré un pic de cisaillement observé d'une façon plus ou moins claire après un déplacement relatif d'environ de 12%. Le cisaillement s'est fait par une augmentation de volume (dilatance).

**b- Résultats pour les spécimens bentonite contaminés par des lixiviats :**

| $\sigma_n$ (kPa / cm <sup>2</sup> ) | $\tau$ = (kPa / cm <sup>2</sup> ) | Caractéristiques mécaniques du mélange sable bentonite<br>c : kPa.      Ø : en degrés. |
|-------------------------------------|-----------------------------------|--|
| 100                                 | 58                                | c = 3<br>Ø = 26  |
| 200                                 | 101                               |  |
| 300                                 | 162                               |  |

c- Lixiviats I (âgé de 1 mois)

| $\sigma_n$ (kPa / cm <sup>2</sup> ) | $\tau$ = (kPa / cm <sup>2</sup> ) | Caractéristiques mécaniques du mélange sable bentonite<br>c : kPa.      Ø : en degrés. |
|-------------------------------------|-----------------------------------|--|
| 100                                 | 24                                | c = 0.33<br>Ø = 15   |
| 200                                 | 55                                |  |
| 300                                 | 75                                |  |

d- Lixiviat I (âgé de 24 mois)

| $\sigma_n$ (kPa / cm <sup>2</sup> ) | $\tau$ = (kPa / cm <sup>2</sup> ) | Caractéristiques mécaniques du mélange sable bentonite<br>c : kPa.      Ø : en degrés. |
|-------------------------------------|-----------------------------------|--|
| 100                                 | 56                                | c = 7.66<br>Ø = 25.5   |
| 200                                 | 103                               |  |
| 300                                 | 152                               |  |

e- Lixiviat II-

Tableau 6.18 Résultats des essais de cisaillement sur des mélanges sable bentonite en présence de lixiviats

Pour la deuxième série d'essais consacrée aux mélanges sable bentonite contaminés par des lixiviats, les résultats sont présentés dans le tableau 6.18 ci-dessus.

Le lixiviat organique (Lixiviat I) a provoqué une chute remarquable dans les valeurs des caractéristiques mécaniques des mélanges spécialement pour le lixiviat âgé. L'effet du contaminant a été important sur la cohésion du mélange jusqu'à la ramener à une valeur résiduelle. Le lixiviat industriel (Lixiviat II) n'a pas provoqué apparemment de dégradation dans la résistance mécanique du mélange. Les essais aux lixiviats ont eu aussi montrés des pics de cisaillement après un déplacement relatif d'environ 12% et sont accompagnés d'une dilatance.

## 6.1.6 Interprétation des résultats des essais chimiques

### 6.1.6.1 Interprétation des résultats des essais sur les lixiviats

| Paramètres   | Lixiviat I                |                            |
|--|---------------------------|----------------------------|
|  | Avant                     | Après                      |
| pH <sup>1</sup>  | 8.49<br><i>T= 9.00 C°</i> | 10.08<br><i>T= 9.00 C°</i> |
| Conductivité $\chi$ ( $\mu\text{s}/\text{cm}$ ) <sup>2</sup> | 4.13<br><i>T= 10.5 C°</i> | 8.41<br><i>T= 9.0 C°</i>   |
| Salinité (%) <sup>2</sup>                                    | 2.0<br><i>T= 10.6 C°</i>  | 4.6<br><i>T= 9.0 C°</i>    |
| MES* (mg / l) <sup>3</sup>                                   | 534                       | 2046                       |
| MVS* (mg / l) <sup>3</sup>                                   | 236                       | 1840.67                    |
| DCO* (mg de O <sub>2</sub> / l) <sup>4</sup>                 | 2260.07                   | 2069.93                    |
| Nitrates NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> (mg / l) <sup>5</sup>  | 10.305                    | 12.341                     |
| N – NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> (mg / l)                    | 2.327                     | 2.787                      |
| Nitrites NO <sub>2</sub> <sup>-</sup> (mg / l) <sup>6</sup>  | 0.257                     | 0.094                      |
| N – NO <sub>2</sub> <sup>-</sup> (mg / l)                    | 0.0781                    | 0.0286                     |
| Ammoniac NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> (mg / l) <sup>7</sup>  | 39.42                     | 11.16                      |
| N-NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> (mg / l)                      | 8.68                      | 30.66                      |
| NTK* <sup>8</sup>  | 66.08                     | 144.48                     |

\* *MES : Matières En Suspension.*

*MVS : Matières Volatiles Suspension.*

*DCO : Demande Chimique en Oxygène.*

*NTK : Dosage de l'azote Kjeldhal.*

1. *mesuré par PHM210.Meter Lab.*

2. *mesurées par Multiline P4.*

3. *méthode par filtration (NF T 90-101).*

4. *méthode par le dichromate de potassium.*

5. *dosage direct par photométrie dans l'U.V.*

6. *méthode au réactif de Zambelli.*

7. *NF T 90 – 015.*

8. *méthode de dosage par titrimétrie après minéralisation et distillation (NF T 90 – 110)*

Tableau 6.19 Analyse chimique du Lixiviat I, Avant et Après contact prolongé avec la bentonite de Maghnia

Le tableau 6.19 contient les compositions chimiques du Lixiviat I avant et après contact avec la bentonite. Comme mentionné dans le chapitre précédent, ce lixiviat a été obtenu à partir

d'une mini décharge expérimentale réalisée au laboratoire. Les résultats des analyses chimiques peuvent être résumés comme suit :

- une augmentation du pH ;
- une augmentation de la salinité et de la conductivité ;
- une augmentation des *MES* et des *MVS* ;
- pas de variation significative de la *DCO* ;
- une augmentation des nitrates, avec diminution des nitrites ;
- une augmentation de l'azote.

| Paramètres                                      | H <sub>2</sub> O<br>Distillée | Lixiviat I                 | Lixiviat II               |
|---|-------------------------------|----------------------------|---------------------------|
| pH  | 9.82<br><i>T= 9.00 C°</i>     | 10.08<br><i>T= 9.00 C°</i> | 9.76<br><i>T= 9.00 C°</i> |
| Conductivité $\chi$ ( $\mu\text{s}/\text{cm}$ ) | 1235<br><i>T= 8.8 C°</i>      | 8.41<br><i>T= 9.0 C°</i>   | 1744<br><i>T= 9.0 C°</i>  |
| Salinité (%)                                    | 0.4<br><i>T= 9.0 C°</i>       | 4.6<br><i>T= 9.0 C°</i>    | 0.7<br><i>T= 7.5 C°</i>   |
| MES (mg / l)                                    | 125                           | 2046                       | 1674.86                   |
| MVS (mg / l)                                    | 1770.64                       | 1840.67                    | 1541.14                   |
| DCO (mg de O <sub>2</sub> / l)                  | 1770.64                       | 2069.93                    | 557.26                    |
| Nitrates NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> (mg / l)  |                               | 12.341                     | 10.334                    |
| N – NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> (mg / l)       |                               | 2.787                      | 2.333                     |
| Nitrites NO <sub>2</sub> <sup>-</sup> (mg / l)  | 0.111                         | 0.094                      | 0.077                     |
| N – NO <sub>2</sub> <sup>-</sup> (mg / l)       | 0.0338                        | 0.0286                     | 0.0234                    |
| Ammoniac NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> (mg / l)  | 0.18                          | 11.16                      | 1.98                      |
| N-NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> (mg / l)         | 0.14                          | 30.66                      | 1.54                      |
| NTK   | 11.536                        | 144.48                     | 10.416                    |

Tableau 6.20. Analyse chimique du Lixiviat I, Lixiviat II et de l'Eau Distillée après un contact prolongé avec la bentonite

Le tableau 6.20 donne une comparaison des résultats des analyses chimiques réalisées sur les 02 types de lixiviat et l'eau distillée qui ont été ayant été mis en contact avec la bentonite pour une durée de 02 mois. L'eau distillée est utilisée comme une solution neutre. A partir de ces résultats, on peut observer :

- le Lixiviat I, issu de déchets d'origine domestique, présente un pH élevé ce qui peut être associé un processus de précipitation plus important que pour les autres solutions.
- le Lixiviat I est également le plus chargé en matières en suspension et volatiles.

- le processus de biodégradation a été intense pour le Lixiviat I, il est relativement assez faible pour le lixiviat d'origine industriel (Lixiviat II de notre étude) comme on peut le voir par la concentration de la DCO.

### 6.1.6.2 Interprétation des résultats des essais de rétention du Cuivre par la bentonite

#### a- Effet du temps de contact

Par l'application de la procédure expérimentale décrite précédemment, on a pu suivre la

variation de  $q = f(t)$  « tel que la capacité de rétention est donnée par :  $q = \frac{(C_0 - C_t)V}{m}$  »

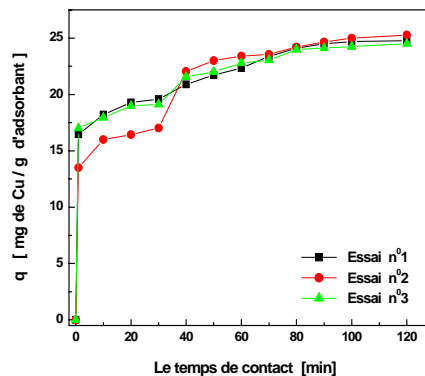


figure.6.21 Effet du temps de contact sur la rétention du cuivre par la bentonite  
Conditions:  $C_0=25\text{mg/l}$ ,  $V=200\text{ rpm}$ ,  $r=1\text{ g/l}$ ,  $\text{pH} \approx 6$ ,  $d \leq 2\mu\text{m}$ ,  $T=20^\circ\text{C}$

L'évolution des courbes de la capacité de rétention du cuivre sur la bentonite en fonction du temps de contact, représentées dans la figure 6.21, montre clairement que ces dernières possèdent la forme des courbes de saturation, ainsi l'adsorption se fait rapidement donc l'équilibre chimique est rapidement atteint. La fixation rapide s'explique par la grande affinité du support à la rétention du cuivre et aussi par la grande mobilité de ce dernier dans le milieu aqueux.

Les résultats ci-dessous montre l'amélioration de la rétention du cuivre par la bentonite en fonction du temps

| Support   | Rendement après 10 min de contact | Rendement après 120 min de contact |
|-----------|-----------------------------------|------------------------------------|
| bentonite | 72.84 %                           | 99.12 %                            |

### b- Effet du rapport solide liquide

Afin d'examiner l'influence du rapport solide/ liquide sur le taux de rétention, nous avons fait varier la quantité initiale du support, mais en gardant toujours le volume de la solution constant. Les résultats expérimentaux trouvés sont représentés dans la courbe suivante:

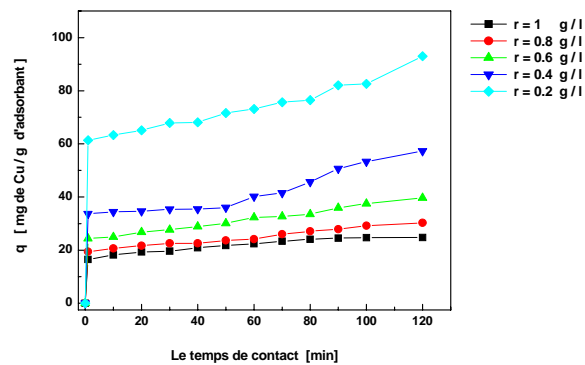


Fig 6.22. Effet du rapport Solide / liquide (r) sur rétention du cuivre  
Conditions:  $C_0=25\text{mg/l}$ ,  $V=200\text{ rpm}$ ,  $\text{pH} \approx 6.0$ ,  $d \leq 2\mu\text{m}$ ,  $T=20^\circ\text{C}$

La figure 6.22 montre que le rapport solide/liquide influe négativement sur la capacité de rétention et par conséquent positivement sur la quantité du cuivre adsorbée, c'est-à-dire une augmentation de la masse du support entraîne une amélioration dans le rendement de fixation. Ceci est attribué à l'augmentation de la surface disponible aux valeurs élevée du rapport. En effet si la masse d'adsorbant dans la solution est élevée, le nombre de sites le sera aussi, et par conséquent, la probabilité de rencontre augmente également ce qui influence positivement la rétention.

### c- Effet de la température

Afin d'étudier l'effet de la température, des expériences ont été réalisées en considérant trois températures différentes : 20, 40 et 60°C.

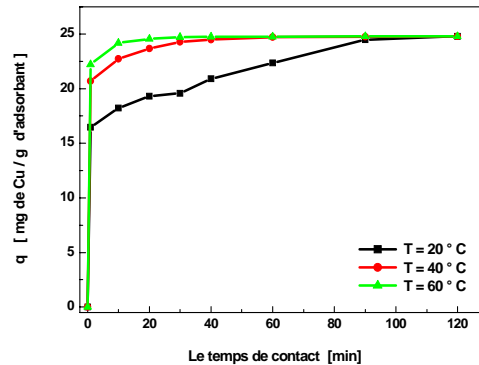


Fig 6.23. Effet de la température sur la rétention du cuivre par la bentonite  
Conditions:  $C_0=25\text{mg/l}$ ,  $V=200\text{ rpm}$ ,  $r=1\text{ g/l}$ ,  $\text{pH} \approx 6.0$ ,  $d \leq 2\mu\text{m}$

L'étude de l'influence de ce paramètre, nous a permis de tracer la courbe présentée ci-dessus (figure 6.23) et de remarquer que l'effet de la température sur la rétention du cuivre s'explique par le fait qu'une élévation de la température conduit à une augmentation moyennement considérable de la capacité d'adsorption, et qui devient de plus en plus moins efficace après 90 min de contact. Après cette phase, les courbes de températures deviennent superposées. L'augmentation de la température fournit de l'énergie pour les particules ioniques qui leur permet à leur tour de surpasser les forces de répulsion avec les supports jusqu'à une certaine limite, au delà de laquelle la température devient inefficace « état de saturation ».

#### d- Effet du pH

L'élimination des métaux lourds par adsorption est généralement reportée dans la littérature comme intimement dépendante du pH [4]. Pour cela le pH de la solution a été varié de 2 à 12, et les résultats suivants ont été trouvés:

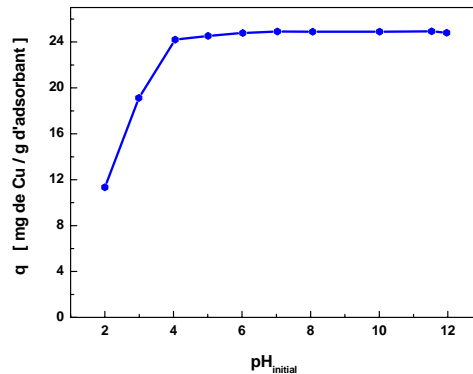


Fig 6.24. Effet du pH sur la rétention du cuivre par la bentonite  
Conditions:  $C_0=25$  mg/l,  $V=200$  rpm,  $r=1$ ,  $d \leq 2\mu\text{m}$ ,  $T=20^\circ\text{C}$

D'après la figure 6.24, on observe que pour des petites valeurs de pH, le rendement de rétention est relativement faible. En augmentant celui-ci de 3 à 4 unités, le taux de rétention accroît d'une manière considérable. Pour des valeurs importantes de pH, la rétention reste presque constante, et les courbes correspondantes aux grandes valeurs de pH (8 et 9), seront superposées, donc dans cet intervalle de pH, la rétention n'est plus influencée par l'augmentation de ce dernier.

#### e - Les isothermes d'adsorption

Il existe de nombreux modèles théoriques qui ont été développés pour décrire les isothermes d'adsorption, mais dans cette étude, on ne s'intéresse qu'aux modèles de Langmuir et de Freundlich car ils sont les plus simples et les plus répandus. Ces isothermes d'adsorption peuvent être obtenus par la représentation graphique de  $Q_e = f(C_e)$ .

Les isothermes retrouvés pour l'adsorption du cuivre sur la bentonite sont représentés comme suit (figure 6.25) :



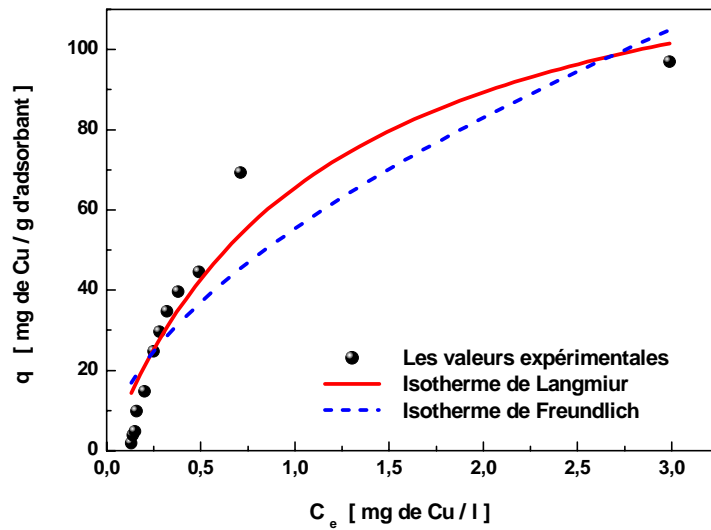


Fig. 6.25 Isothermes d'adsorption du cuivre par la bentonite

| Modèles    | Equations   | a        | b       | R       |
|------------|---|----------|---------|---------|
| Langmuir   | $Q_e = \frac{a \cdot b \cdot C_e}{1 + b \cdot C_e}$ | 140.1507 | 0.87837 | 0.91028 |
| Freundlich | $Q_e = a \cdot C_e^b$                               | 55.41617 | 0.58198 | 0.83100 |

Tableau 6.21: Constantes des isothermes d'adsorption du cuivre sur la bentonite

D'après les résultats précédents, on peut conclure que l'adsorption du cuivre sur la bentonite est mieux décrite par une isotherme de type Langmuir.

## Conclusions et Perspectives

Les mélanges sable bentonite, utilisées entre autre pour le confinement des déchets solides, ont comme fonction principale d'isoler les contaminants de l'environnement extérieur et d'empêcher toute contamination des sols, des eaux souterraines et de l'air. Certains contaminants dont les lixiviats et les métaux lourds ont un impact sur les propriétés de ces mélanges étanches. Dans ce domaine, un des enjeux scientifiques est la prédiction du comportement à court et long terme des argiles gonflantes utilisées comme barrière de confinement. La littérature contient peu d'information à ce sujet et il est ainsi difficile de généraliser à partir des études réalisées à ce jour.

Cette thèse vise à étudier les impacts des lixiviats et des métaux lourds sur les propriétés de la bentonite de Maghnia seule et sur des mélanges sable bentonite. Ceci afin d'observer les liens possibles entre le comportement de la bentonite seule, en présence de lixiviats et en présence de métaux lourds et la performance des mélanges sable bentonite en présence de ces mêmes contaminants.

La première partie de la méthodologie expérimentale consistait à caractériser les mélanges sable bentonite d'un point de vue physico-chimique d'une part et d'un point de vue mécanique d'autre part.

Les principaux résultats : nous avons vérifié l'hypothèse qui consiste à considérer la fraction sableuse comme inerte et que son rôle dans le mélange se limite à un remplissage du volume. C'est ainsi que la valeur au bleu de méthylène  $V_B$  ainsi que les limites d'Atterberg varient presque linéairement avec le pourcentage de bentonite incorporé dans le mélange.

La perméabilité  $k$  diminue avec l'augmentation du taux de bentonite dans le mélange jusqu'à une valeur limite voisine de 10 % au-delà de laquelle les valeurs de  $k$  tendent à se stabiliser.

Le comportement au compactage des mélanges sable bentonite est fortement lié à la fraction argileuse qui y incorporée. Celle-ci en augmentant fait accroître la compacité jusqu'à une proportion optimale de 8%. Après cette limite, son rôle de lubrifiant devient de plus en plus faible.

Les résistances au cisaillement : parmi les paramètres principaux qui influent sur les caractéristiques mécaniques des mélanges sable bentonite, on a trouvé le pourcentage de bentonite et la teneur en eau.

Si la bentonite a tendance à diminuer l'angle de frottement d'une façon continue, par contre elle conduit à un accroissement de la cohésion jusqu'à une valeur maximale et ensuite elle provoque sa diminution. La teneur en eau, en augmentant, conduit à une réduction des deux paramètres de la résistance mécanique, l'angle de frottement et la cohésion.

La deuxième partie de la méthodologie expérimentale consistait à étudier les propriétés de la bentonite de Maghnia en présence des métaux lourds  $\text{Cu}^{2++}$ ,  $\text{Pb}^{2++}$ ,  $\text{Zn}^{2+}$ , Cd, Mn, Ni en solution et des lixiviat (Lixiviat I et Lixiviat II). La bentonite a été préalablement caractérisée selon sa minéralogie, sa granulométrie, sa surface spécifique, ses limites d'Atterberg, sa valeur au bleu de méthylène et son pH. Des solutions contaminées par les métaux lourds énumérés plus haut ont été produites. La concentration des métaux a d'abord été définie selon des rapports massiques. Un lixiviat organique (Lixiviat I) a été produit, récupéré et puis stocké dans des conditions anaérobiques. Le lixiviat industriel (Lixiviat II) a quant lui été collectionné puis stocké dans un endroit à l'abri de la lumière.

Les analyses chimiques sur la bentonite de Maghnia ont montrées la prépondérance du pourcentage de sodium sur celui de calcium ce qui a permis de la classer dans la catégorie montmorillonite sodique. Ce classement indique que cette bentonite possède un pouvoir de rétention d'eau très élevé et donc une grande capacité de gonflement. Toutes ces propriétés de la bentonite de Maghnia ont été approfondies et confirmées par des essais tels que : la surface spécifique, l'indice de plasticité, la limite de retrait, l'indice de gonflement, le ratio de gonflement ( $\beta$ ) et l'absorption de l'eau à la plaque.

Suite à la contamination de la bentonite, les propriétés de celle-ci ont été observées et mesurées.

De façon générale, le gonflement de la bentonite a diminué en fonction de l'augmentation de la valence des ions métalliques, ce qui correspond à une diminution de l'épaisseur de la double couche diffuse selon la théorie de Gouy-Chapman.

En ce qui concerne l'effet des lixiviats sur le gonflement de la bentonite, cet effet a été faible puisqu'il n'a entraîné qu'une légère réduction.

Dans cette seconde partie, l'étude de la variation de la conductivité hydraulique, la rétention des métaux lourds à travers les couches sable bentonite a également faite. Des essais de lixiviation ont été réalisés en colonne sur le mélange sable bentonite contenant 10% de bentonite. La distribution géochimique des ions métalliques (Cu, Pb et Zn) dans les colonnes représente les courbes de percée du polluant à l'intérieur du mélange. Ces courbes renseignent sur la capacité des mélanges sable bentonite à agir comme barrière naturelle de rétention de la pollution. Ces courbes de percée ont été identifiées physiquement pour les trois métaux lourds (Cu, Pb et Zn) sur les colonnes de sable bentonite. La profondeur de pénétration des divers polluants dans les colonnes expérimentales d'épaisseur 14 cm ont été d'environ 5cm en moyenne pour les 03 échantillons.

La présence des ions métalliques à l'intérieur de la solution de percolation a entraînée une augmentation de près de deux ordres de grandeur la perméabilité. L'étude de la conductivité hydraulique sur perméamètre à charge variable de mélanges sable bentonite contenant 10 % de bentonite a aussi été conduite en présence des métaux lourds. Les résultats obtenus montrent également une augmentation de la valeur de la perméabilité de près de un ordre et demi de grandeur.

Concernant l'effet des lixiviats sur la conductivité hydraulique des mélanges sable bentonite (contenant 10% de bentonite), de façon générale la présence des ces polluants a provoqué une augmentation de la conductivité hydraulique. Cette augmentation a été de ordres de grandeur pour le lixiviat d'origine organique (Lixiviat I), alors que pour le lixiviat industriel (Lixiviat II), l'augmentation a été plus faible.

L'effet des contaminants sur la résistance au cisaillement des mélanges sable bentonite a également été abordé dans cette partie expérimentale de cette étude. Des essais de cisaillement à la boîte ont été faits sur des mélanges sable bentonite contenant 10 % de bentonite en présence de solution de métaux lourds (Cu, Pb, Cu+Pb). Des essais similaires ont été menés avec des lixiviats (organique et industriel) comme solutions contaminantes.

Les caractéristiques de résistance mécanique des mélanges sable bentonite ne sont que très peu altérées par la présence des métaux lourds. L'angle de frottement et la cohésion de tous les échantillons testés ont gardés des valeurs comparables à ceux obtenus pour une solution neutre (eau déminéralisée). Pour l'effet des lixiviats, les résultats sont beaucoup plus contrastés puisque le lixiviat organique ' âgé ' a entraîné une réduction importante dans les

caractéristique de résistance du mélange en comparaison avec son effet plus modéré à normal sur ces mêmes caractéristiques quand il est plus 'jeune'. Les caractéristiques de résistance mécanique des mélanges sable bentonite n'ont pas été dégradées par la présence du lixiviat industriel et son effet a été comparable à celui des métaux lourds.

La partie chimique de cette étude consistait à étudier les modifications produites par des contaminants type métaux lourds et lixiviats (organique et industriel) sur la composition chimique de la bentonite d'une part et l'analyse de la composition chimique de lixiviats ayant été mis en contact prolongé avec la bentonite d'autre part. Les phénomènes d'interaction à l'interface solide-liquide ont été étudiés avec la bentonite de Maghnia comme absorbant. Plusieurs facteurs ont ainsi été étudiés tels que ; le temps de contact, le rapport solide/liquide, la température et le pH.

Des échantillons de bentonite contaminée par les différents polluants ont également été prélevés et soumis à une diffraction par rayons X.

L'action des contaminants sur la composition chimique de la bentonite s'est traduite surtout par une augmentation de la teneur en Ca. Cette augmentation, bien que très modeste, peut s'accompagner d'une dégradation des capacités de gonflement de la bentonite. Des variations dans les teneurs de Mg, SiO<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> et CaCO<sub>3</sub> sont également apparues et peuvent être associés à un processus d'échange cationique entre la bentonite et les différents contaminants. L'analyse chimique du lixiviat ayant lessivé la bentonite a montré un pH élevé responsable probablement de l'augmentation de la teneur en calcium de la bentonite (comme montré par l'analyse de la composition chimique). L'augmentation de la salinité et de la conductivité est le signe d'un processus de biodégradation intense bien que la DCO soit restée assez faible.

Pour les essais d'adsorption du cuivre par la bentonite, les résultats obtenus ont montrés que les isothermes d'équilibre d'adsorption du cuivre sur la bentonite naturelle sont bien décrites par le modèle de Langmuir et Freundlich avec une prépondérance des isothermes de type Langmuir. L'adsorption est de nature physique. Le taux d'adsorption est important pour les hautes températures par contre il est proportionnel aux valeurs élevées de la concentration initiale et du rapport solide/liquide.

Les résultats de la diffraction aux rayons X ont donnés des spectres qui laissent apparaître une modification de la bentonite qui a été soumis au lixiviat organique (Lixiviat I) par l'apparition d'un pic calcium (Ca). Le spectre du lixiviat industriel ne montre pas des

changements notables dans la composition de la bentonite ; contrairement à celui des métaux lourds ou on peut voir un nouveau pic .Ce pic correspond à du magnésium (Mg) .

De façon générale, les spectres de diffraction sur l'ensemble des échantillons ont confirmés les résultats de l'analyse chimique quant aux modifications subies par la bentonite en présence des contaminants étudiés dans cette recherche.

Les mélanges de sable bentonite (appelés aussi bentonite enrichie ou enhanced sand) sont des matériaux fréquemment utilisés la construction de CET. L'ajout d'une faible quantité de bentonite assure l'exigence en terme de conductivité hydraulique sans compromettre la stabilité mécanique. Mais étant donné le nombre de variables influençant le comportement de ces mélanges (type, concentration, valence du contaminant présent, minéralogie, surface spécifique de la bentonite ; etc.), il est nécessaire de recueillir les résultats de plusieurs essais et observations pour comprendre l'impact de la contamination sur ce type de barrière de confinement, afin de mieux prévoir l'efficacité et la pérennité de ces mélanges. Cependant cette étude d'un matériau argileux local, la bentonite de Maghnia, vue dans le contexte de sites de stockage de déchets solides apporte des connaissances sur son utilisation comme barrière d'étanchéité. Il est bien évident que le choix de ce matériau et les différentes solutions de mise en œuvre sont dépendants d'une part des problèmes techniques rencontrés sur place, mais aussi des critères économiques. C'est l'ensemble de ces paramètres qui permettra de définir l'option la plus intéressante.

La bentonite de Maghnia, par son fort pourcentage de smectite et ses paramètres rhéologiques, dans des conditions normales d'utilisation, présente une forte rétention des métaux lourds et des propriétés hydrauliques comparables à celles des smectites modèles, nous a paru favorable pour une utilisation sur site de stockage de déchets. Parce que parmi les propriétés essentielles qui font que les matériaux argileux sont souvent utilisés pour les barrières de stockage de surface ou en site profond, on peut citer leur aptitude à s'hydrater, à gonfler, à échanger leurs cations compensateurs de charge et à former un réseau de particules délimitant une porosité généralement peu connectée (Andreoli *et al.*, 1989; Ben Rhaiem *et al.*, 1998; Gaboriau, 1991; Tessier, 1984; Touret *et al.*, 1990). Ce comportement vis à vis de l'eau leur confère la propriété d'avoir à saturation, une perméabilité faible (10-12 m.s-1 à 10-11 m.s-1).

Pour ces raisons, dans la suite de ce travail, nous avons travaillé avec la bentonite de Maghnia. En gardant toujours en mémoire l'intérêt pratique du travail, les études expérimentales ont été effectuées, autant que possible, sur le matériau à l'état naturel, sans aucun pré-traitement chimique afin de ne pas modifier *à priori* ses propriétés.

Les smectites naturelles sont rarement d'une grande pureté minéralogique et leur comportement s'écarte de celui des smectites-modèles pures qu'on trouve dans la plupart des études fondamentales. L'échantillon de Maghnia est un cas typique d'une bentonite ordinaire qu'on utiliserait, dans la pratique, comme couche compactée dans une décharge de déchets ménagers. Elle illustre toutes les difficultés aussi bien expérimentales que théoriques pour caractériser ce genre de matériaux.

Même, comparée avec une bentonite « modèle », la bentonite de Wyoming, la durabilité de la bentonite de Maghnia dans un fond de décharge, comme couche d'imperméabilisation, ne peut être mise en question. Même après un contact prolongé avec un 'vieux' lixiviat ménagers, la perméabilité ne s'est élevée pas au-dessus de la valeur réglementaire de  $10^{-7}$  cm/s.

Les perspectives futures de ce travail seraient de mener des études expérimentales sur le comportement des mélanges S-B en contact avec des lixiviats 'vieux' de quelques années. Il est également recommandé de développer un programme expérimental plus approfondi sur le phénomène de rétention des polluants par la bentonite et explorer les éventuelles modifications physico-chimiques que peut subir l'argile sur le long terme en contact avec différents lixiviats.

Pour des applications pratiques, des études sont nécessaires afin de dégager des procédures de mise en œuvre des mélanges S-B à l'échelle du chantier.

## ANNEXE A

### PROCEDURES EXPERIMENTALES

#### A1 Détermination de la perméabilité à l'odomètre (essai à charge variable).

##### A1.1. Matériel.

Le perméamètre est fixé sur le support solidaire du bâti à l'aide de vis et d'écrous à oreilles. Il importe de bien régler la hauteur du tableau. L'échelle du perméamètre est graduée de 10 à 60 cm. Le niveau de sortie de l'eau de la cellule est celui du trou de la goupille, c'est le niveau 0. Le bas de l'échelle (10) doit être exactement à 10 cm au dessus du niveau 0. Le perméamètre ne sera donc pas à la même hauteur selon que l'échantillon a une épaisseur de 12 ou 24 mm. Pour ce réglage, il est prévu un index de réglage que l'on pose sur le bâti à la place de la cellule. Il suffit alors de placer le « 10 » de la règle sur le « 12 » ou le « 24 » repéré sur l'index. Le perméamètre a fait l'objet d'un tarage, afin de déterminer la section du tube calibré.

##### A1.2 Tarage du perméamètre.

- Prendre un petit tube en caoutchouc muni d'un robinet terminé par une partie effilée et le brancher sur le perméamètre.
- Remplir d'eau distillée par l'entonnoir et faire couler jusqu'à purge complète de l'air dans le circuit.
- Fermer les robinets du tube rallonge R2 et du perméamètre R1.
- Tarer un petit cristalliseur à 0.001 près.
- Ouvrir le robinet R2 pour laisser s'écouler l'eau jusqu'à la graduation 60 exactement. Ne pas recueillir cette fraction de liquide.



- Ouvrir le robinet R2 et recueillir l'eau qui coule dans le cristalliseur taré. Refermer le robinet R2 quand le niveau est exactement à 50.
- Peser le cristalliseur à 0.001gr près si possible .Calculer le volume en  $\text{mm}^3$  et en déduire le volume moyen par mm de graduation ente 60 et 50 (tenir compte de la température pour déterminer la masse spécifique de l'eau.).
- Recommencer l'opération entre 50 et 40 ; 40 et 30 ; 30 et 20 et 20 et 10.
- La section du tube varie toujours légèrement et il est impossible de garantir une section rigoureuse d'un bout à l'autre.

### A1.3 Manipulations.

- Accrocher le tube souple.
- Remplir le récipient du permeametre avec de l'eau distillée. Les deux tubes (calibré et souple) vont se purger et déborder.
- Fermer le robinet R1 et remplir le récipient du permeametre.
- Remplir le tube coudé avec de l'eau distillée.
- Saisir entre le pouce et le majeur, le bouchon de caoutchouc en fermant avec l'index l'extrémité du tube souple.
- Ouvrir R1 et d'un mouvement rapide introduire le bouchon dans le tube coudé sans emprisonner d'air. Fermer le robinet R1.
- Vérifier qu'aucune bulle d'air ne s'est introduite dans le circuit, sinon on recommence l'opération.
- Le tube étant rempli d'eau à l'aide du robinet R1.Observier le niveau de l'eau  $h_0$  et le temps  $t_0$ .
- Laisser l'appareil jusqu'à ce que le niveau de l'eau arrive dans la partie inférieure de l'échelle ce qui nécessite plusieurs heures.
- Noter le niveau  $h_1$  et le temps  $t_1$ .
- Lorsque l'essai est terminé, vérifier que les lectures sur les comparateurs n'ont pas variées.
- Noter la température T de l'eau au début et à la fin de l'essai en plongeant un thermomètre dans le tube coudé plein d'eau.

### A1.14 Calcul.

- La formule utilisée pour le calcul du coefficient de conductivité hydraulique est sous la forme.

$$k = 2.3 \frac{s}{S} \log \frac{h_0}{h_1} \frac{H - \Delta h}{t} \dots\dots \text{cm/s}$$

s : section du tube déterminé par tarage en cm<sup>2</sup>.

S : section de l'éprouvette en cm<sup>2</sup>.

H : épaisseur de l'éprouvette en cm.

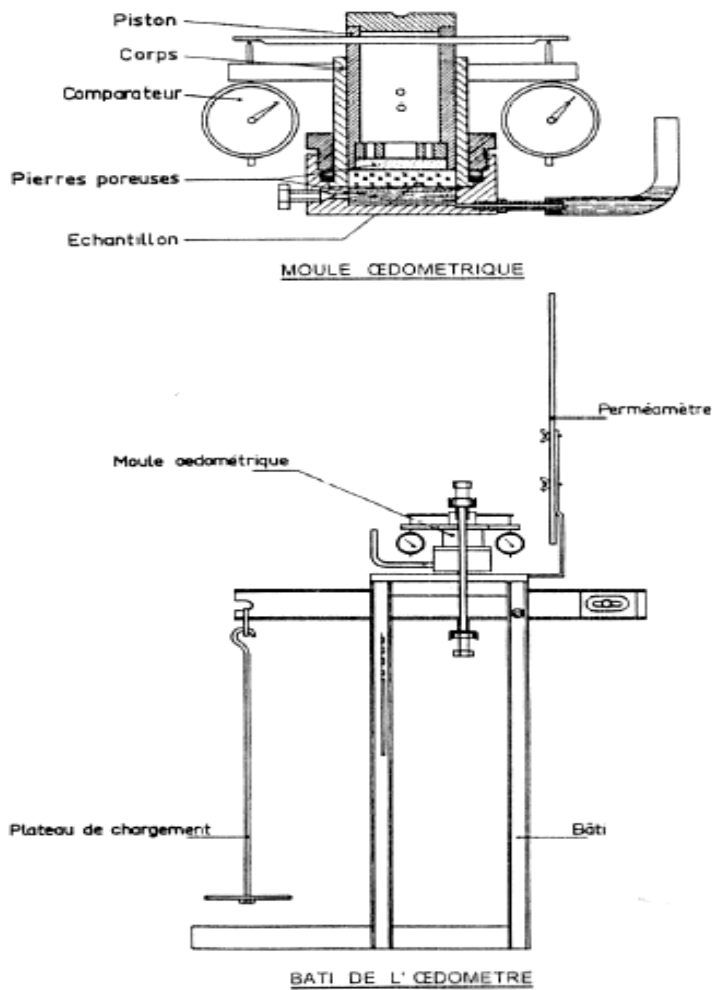
Δh : variation de la pression en cm.

h : lecture sur la règle graduée en cm.

log : logarithme décimale.

t : temps en seconde.

k : conductivité hydraulique en cm/s.



## A2. Détermination du gonflement libre de la bentonite.

### A2.1 Matériels.

- 2gr. de bentonite sèche.
- 100 ml d'eau distillée /échantillon.
- Tamis ASTM N°.100
- Cylindre gradué de 100 ml /échantillon
- Petite spatule
- Balance analytique ( $\pm 0,01$ g).

### A2.2 Manipulations.

- Sécher et tamiser l'échantillon au tamis N°.100
- Peser, sur la balance analytique,  $2 \pm 0,01$  g de l'échantillon sec passant le tamis N°.100. Faire décanter la bentonite dans 100 ml d'eau distillée contenue dans un cylindre gradué par petites quantités, soit environ 0,05 à 0,01g .Utiliser une petite spatule .Allouer le temps nécessaire pour que chaque portion ait le temps d'atteindre le fond du cylindre avant d'ajouter la portion suivante. Prendre soin de ne pas perdre une partie de l'échantillon par adhérence des particules aux parois internes du cylindre gradué. L'intervalle de temps entre chaque addition ne doit, dans aucun cas, être plus petit que 5 minutes. Idéalement, le temps pour ajouter l'échantillon complet, soit 2g de bentonite, sera de 2 heures.
- Après l'ajout complet, laisser l'échantillon se stabiliser pendant 2 heures avant de prendre la première lecture. Reporter cette lecture comme étant le gonflement après 2 heures .Fréquemment, les sédiments de bentonite au fond du cylindre auront une surface irrégulière et il sera nécessaire, à l'oeil, de faire une lecture moyenne du gonflement. Ce problème peut être évité en laissant le temps aux sédiments de se stabiliser suffisamment en prenant des lectures après 12 ou 24 heures .La surface des sédiments aura alors le temps de s'aplanir et la lecture sera plus facile à prendre.
- Reporter chaque volume de sédiments mesuré au millimètre le plus près et inscrire comme suit « X ml /2g (Y heures) » où le volume de bentonite gonflé et le temps correspondant sont précisés.

### A2.3 Facteurs importants.

- La vitesse de l'ajout de l'échantillon : une addition rapide, c'est à dire des intervalles de temps plus courts entre chaque addition, aura tendance à réduire le gonflement apparent de la bentonite .Tandis, qu'au contraire, une addition plus lente aura une tendance à augmenter le gonflement de la bentonite .Cependant, les différences seront mineures à moins d'une addition très rapides ou très lente.
- La quantité de bentonite pour chaque addition : les bentonites qui possèdent une forte capacité gonflante peuvent former une couche qui s'apparente à un gel sur la surface de l'eau à l'intérieur du cylindre lorsque la quantité d'argile par ajout est trop grande ou lorsque les additions se font trop rapidement. Ceci peut augmenter de façon significative le temps de décantation de la bentonite par addition et ainsi le temps total pour l'ensemble de l'expérience. La quantité de bentonite ajoutée doit être uniforme et assez petite pour tenir les particules éloignées des parois intérieures du cylindre.

## ANNEXE B

### Lexique

**Anaérobie :** Dont le milieu ne contient pas d'oxygène moléculaire. Se développant en l'absence d'oxygène moléculaire, comme les bactéries anaérobies. Se dit d'un processus, par exemple biochimique, se produisant en l'absence d'oxygène moléculaire.

**Anaérobie :** Dont le milieu ne contient pas d'oxygène moléculaire. Se développant en l'absence d'oxygène moléculaire, comme les bactéries anaérobies. Se dit d'un processus, par exemple biochimique, se produisant en l'absence d'oxygène moléculaire.

#### **Bentonite**

1/ Actuellement, argiles dont le constituant principal est un minéral de la famille de la montmorillonite.

2/ Argile colloïdale du type montmorillonite dont les particules constitutives sont suffisamment fines pour n'apparaître qu'au microscope électronique; leur dimension est en effet de l'ordre du dixième de micron.

3/ Argile ayant la propriété de se disperser finement sous forme de suspension colloïdale dans l'eau et de ce fait utilisée pour la préparation des boues de forage.

4/ Argiles colloïdales surtout formées de montmorillonite .Elles peuvent contenir des alcalis, de la chaux, de la magnésie, du fer, de l'alumine en faible proportion .Ce sont des minéraux phylliteux (découverts en 1888 à Fort Benton au USA), formés par la superposition de 2 ou 3 feuillets de 10 Angstrom d'épaisseur. Ces bentonites présentent la propriété remarquable d'absorber de grandes quantités d'eau et de gonfler, car les molécules d'eau peuvent se placer entre les feuillets dont les espacements passent de 10 à 20 Angstrom (gonflement inter-cristallin).

**Biogaz :** Mélange gazeux, résultant de la méthanisation (décomposition biologique anaérobie) de matières organiques et composé à plus de 50% de méthane.

**Capacité d'échange :** Charge ionique totale du complexe d'adsorption qui joue un rôle dans l'adsorption d'ions.

**Capacité d'échange anionique :** Quantité total d'anions échangeables que le sol peut adsorber. S'exprime en milliéquivalents par 100 g de sol ou d'une autre matière adsorbante, comme l'argile.

**Capacité d'échange cationique :** Quantité totale de cations échangeables que le sol peut adsorber. Se dit parfois: capacité totale d'échange; pouvoir d'échange de cations; ou capacité d'adsorption de cations. Elle s'exprime en milliéquivalents par 100 g de sol ou de toute autre substance adsorbante, comme l'argile

**Centre d'enfouissement technique (CET) :** site souterrain ou de surface pour le stockage final des déchets ultimes. Les CET font l'objet de contrôles et de réglementations très strictes.

**Décharge :** lieu de stockage ultime de déchets appelé également Centre d'Enfouissement Technique ou centre de stockage. On distingue :

- la "classe I" pour les Déchets Industriels Spéciaux
- la "classe II" recevant les résidus urbains ou déchets assimilés
- la "classe III" pour les inertes : gravats et déblais

Installations de stockage de déchets : Ce sont les installations d'élimination de déchets par dépôts ou enfouissement sur le sol ou dans des cavités artificielles ou naturelles du sol et couverture ultérieure, sans intervention de reprise ultérieure, à l'exclusion du stockage dans des cavités naturelles ou artificielles dans le sous-sol.

**Déchets :** Le terme déchet désigne :

Selon la loi n° 01-19, "tout résidu d'un processus de production, de transformation ou d'utilisation, toute substance, matériau, produit ou plus généralement tout bien meuble abandonné ou que son détenteur destine à l'abandon".

Selon la Directive-Cadre de la Communauté Européenne n° 91-156/CEE du 18 mars 1991, "toute substance ou tout objet dont le détenteur se défait ou dont il a l'intention ou l'obligation de se défaire". On peut classer les déchets selon leur origine (déchets municipaux, déchets industriels, déchets agricoles et déchets toxiques en quantités dispersées, etc.) ou selon leur nature (déchets organiques, déchets ultimes, etc.).

La jurisprudence communautaire avec l'arrêté de mars 1990 considère qu'un déchet est une matière usée tant qu'elle n'a pas fait l'objet d'un traitement en vue de sa régénération ou de son recyclage.

**Déchets agricoles :** Déchets résultant de l'agriculture, de la sylviculture et de l'élevage. On distingue les déchets organiques (résidus de récolte, déjections animales) des déchets spéciaux (produits phytosanitaires non utilisés et les emballages vides de produits phytosanitaires).

**Déchets assimilés aux ordures ménagères :** Ce sont les déchets issus des activités économiques de l'artisanat, des commerces, des bureaux et petites industries ou d'établissements collectifs (éducatifs, socioculturels, militaires, pénitentiaires...) et utilisant les mêmes circuits d'élimination que les déchets ménagers non dangereux. La loi prévoit leur prise en charge par les services communaux ( loi du 15 juillet 1975,CEE) à condition qu'ils n'entraînent pas, eu égard à leurs caractéristiques et aux quantités produites, de sujétions techniques particulières et de risque pour les personnes et l'environnement. C'est aux communes de fixer les limites du service d'enlèvement liées aux quantités produites.

**Déchets dangereux :** Déchets présentant une ou plusieurs propriétés de danger et qui, de ce fait, doivent faire l'objet de sujétions spéciales d'élimination. Ils sont constitués des déchets dangereux des ménages, des déchets d'activités de soins et des déchets industriels spéciaux.

**Double couche** : En chimie des colloïdes, l'ensemble des deux couches de charges électriques entourant les molécules colloïdales de la phase dispersée, la première, généralement négative, correspondant aux charges des molécules proprement dites, et la seconde, diffuse, de signe opposé, correspondant aux ions en solution.

**Incinération** : Traitement thermique qui consiste en l'oxydation de la partie combustible des déchets dans des fours aménagés à cet effet. Lorsque l'énergie produite lors de la combustion n'est pas récupérée, on parlera d'incinération simple. Lorsqu'il y a une valorisation de l'énergie produite, on parlera d'incinération avec récupération d'énergie.

**Lixiviat** : Liquide résiduel qui provient de la percolation de l'eau à travers les déchets. Celle-ci se charge de polluants organiques, minéraux et métalliques, par extraction des composés solubles (lixiviation facilitée par la dégradation biologique des déchets).

**Lixiviat de décharge** : Ils sont constitués des eaux d'infiltration, de ruissellement et de précipitation qui percolent à travers la masse de déchets enfouis se chargeant tant en matières minérales qu'organiques

**Matière organique** : Matière biodégradable, matière putrescible. Dans les déchets, il s'agit des résidus alimentaires, des déchets végétaux, des papiers, des cartons et de certains textiles.

**Métaux lourds** : terme générique pour des substances généralement toxiques

**Méthane** : Gaz produit lors de la dégradation bactérienne de composés organiques. Il a un potentiel de réchauffement climatique 22 fois plus élevé que le dioxyde de carbone.

**Méthanisation** : Fermentation anaérobie (en absence d'air) contrôlée qui aboutit à un dégagement de biogaz, qui peut être récupéré. On parlera de tri-méthanisation, lorsque la fraction de déchets destinée à subir une fermentation contrôlée a subi au préalable un tri, éliminant tous les indésirables.

### **Montmorillonite**

Groupe de minéraux argileux (silicates d'Al) dont les cristaux ont une structure réticulaire 2/1, extensible (une couche octaédrique de  $Al_2O_3$  entre deux couches tétraédriques de  $SiO_2$ ), et une forte capacité d'échange de cations. Un des alumino-silicates du groupe de la smectite. L'un des constituants principaux des argiles, caractérisé par une aptitude particulière au gonflement, due à sa structure cristalline qui permet à des molécules d'eau de s'insérer entre les feuillets. D'autres minéraux argileux, de même structure réticulaire 2/1, extensible, appartenant au même groupe, sont la nontronite, la beidellite et la saponite; la terre à foulon est un type non plastique. Très onctueuse au toucher, elle provient de l'altération continentale de roches éruptives basiques.

**PEHD** : polyéthylène haute densité (flacons opaques). En recyclage, le PEHD permet la fabrication de nouveaux flacons opaques non alimentaires.

**PET** : polyéthylène téréphtalate. Il s'agit d'un polyester utilisé pour certaines bouteilles de liquide alimentaire (ex : boissons gazeuses...). Le PET recyclé peut servir à la fabrication de fibres synthétiques (couettes, oreillers...).

**Recyclage** : Ré-introduction directe d'un matériau dans son propre cycle de production, en remplacement total ou partiel d'une matière première neuve. Exemple : fabrication de papier en incorporant des fibres issues de vieux papiers au lieu de pâte vierge (Source : Norme NFX30-0 7 1). Opération permettant de transformer le matériau d'un emballage usagé en une nouvelle matière première. Le matériau ainsi traité sert à la fabrication d'un emballage de même type ou, plus fréquemment, d'objets destinés à un usage différent.

**Smectique**: Minéral argileux ayant un réseau cristallin 2: 1 expansible.

1/ Caractérise la phase structurale des corps ou les molécules sont disposées en "feuilles" capables de glisser les unes sur les autres. Qualifie un état mésomorphe (état intermédiaire entre l'état cristallin et l'état liquide) de certains "cristaux liquides".

2/ Se dit des substances onctueuses comme le savon.

Notes: La substitution isomorphe donne naissance aux divers types de montmorillonite et crée une charge nette permanente équilibrée par les cations, de telle sorte que l'eau peut s'infiltrer entre les feuillets, produisant un échange réversible de cations et lui donnent des propriétés notables de plasticité.

Synonyme: argile smectique.

**Valorisation** : toutes les opérations qui permettent de réintroduire dans le circuit économique tout ou partie d'un résidu par son réemploi, sa réutilisation, sa régénération et son recyclage (valorisation matière) ou la récupération des calories par combustion (valorisation énergétique) (Source : Norme NFX30-0 7 7).

**Valorisation des déchets** : utilisation de un ou de plusieurs déchets en profitant de leurs qualités, soit à la production de matériaux neufs dans un cycle de production (recyclage), soit à d'autres fins (utilisation agricole de compost, production d'énergie à partir de l'incinération des déchets...). Les grandes formes actuelles de valorisation des déchets d'emballage sont :

- le réemploi
- le recyclage (valorisation matière)
- la valorisation énergétique (par incinération)
- le compostage

**Volatil** : Qui passe facilement à l'état de vapeur.



