

Université du Québec
Institut National de la Recherche Scientifique
Centre Eau Terre Environnement

Traitement des sols pollués par les cendres d'incinération de déchets municipaux

Par
Philippe Jobin

Thèse présentée pour l'obtention du grade de Philosophiae doctor (Ph.D.)
en sciences de la terre

Jury d'évaluation

Président du jury et examineur interne	Mario Bergeron INRS-ETE
Examineur externe	Catherine Mulligan Université Concordia
Examineur externe	Jean-Sébastien Dubé ETS
Directeur de recherche	Guy Mercier INRS-ETE
Codirecteur de recherche	Jean-François Blais INRS-ETE

AVANT-PROPOS

Cette étude présente les travaux réalisés afin de développer et d'optimiser un procédé de décontamination de sols pollués par des cendres d'incinération des déchets municipaux. Les résultats de ce projet de recherche ont mené à la rédaction d'articles scientifiques et à la participation à un congrès international. Cette thèse est composée de deux sections.

La première section présente la synthèse de ce projet de recherche. Elle présente la revue de littérature liée à ce projet, ainsi que les principaux résultats obtenus au cours de notre étude.

La seconde section inclut trois articles soumis dans des journaux internationaux avec comités de lecture :

Understanding the effect of attrition scrubbing on the efficiency of gravity separation of six inorganic contaminants, Philippe Jobin, Guy Mercier, Jean-François Blais et Vincent Taillard (2015). *Water Air Soil Pollut.* 226, 162,1-13.

Magnetic and density characteristics of a heavily polluted soil with municipal solid waste incinerator residues : significance for remediation strategies, Philippe Jobin, Guy Mercier et Jean-François Blais. *International Journal of Mineral Processing* (Soumis le 14 Novembre 2014).

Remediation of inorganic contaminants and polycyclic aromatic hydrocarbons from soils polluted by municipal solid waste incineration residues, Philippe Jobin, Lucie Coudert, Vincent Taillard, Jean-François Blais et Guy Mercier. *Environmental Technology*, (Soumis le 17 juin 2015).

REMERCIEMENTS

Je remercie mes directeurs de recherche, Guy Mercier et Jean-François Blais, pour leurs conseils et leur disponibilité. Ils ont construit une équipe de recherche dynamique et inspirante avec qui j'ai eu plaisir à travailler. Je remercie aussi Tecosol Inc pour son support financier et Vincent Taillard, mon superviseur en entreprise. Je remercie tout particulièrement Lucie Coudert et Myriam Chartier pour leur aide tout au long de ce projet de doctorat. Enfin, merci à tous mes collègues et amis de l'INRS, que j'ai eu le plaisir de côtoyer.

Un merci tout spécial à ma conjointe Katia et mes deux enfants, Marc-Antoine et Maélie Sarah, pour leur amour et support tout au long de ce projet de 3 ans.

RÉSUMÉ

Le développement industriel a engendré la pollution de nombreux sites aux prises avec une problématique de contamination multiple (plomb, cuivre, zinc, antimoine, étain, arsenic, hydrocarbures, etc). La gestion inadéquate des cendres générées par l'incinération des déchets municipaux en est un bel exemple. Au Québec, la décontamination de sites pollués par les cendres d'incinération de déchets municipaux consiste à envoyer les sols excavés directement dans des sites d'enfouissement. Cet état de fait est causé par le manque de connaissances sur ce type de contamination, ce qui limite le développement d'une technologie de traitement efficace et abordable.

L'objectif de ce projet de doctorat était de mettre au point un procédé de traitement des sols pollués par les cendres d'incinération qui soit suffisamment performant pour abaisser les teneurs en contaminants présents dans les sols sous les normes en vigueur et qui soit compétitif par rapport aux coûts de l'enfouissement. Le procédé devait être facilement adaptable afin de traiter autant les contaminants inorganiques que les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP), contaminants parfois présents dans les cendres d'incinération. Afin d'atteindre ces objectifs, les méthodes de séparation physique ont été privilégiées en raison de leur simplicité et de leur faible coût d'opération. La sélection des méthodes de traitement les plus pertinentes a été réalisée à l'aide d'essais comparatifs sur un sol contenant plus de 90% de cendres d'incinération (sol 1). Le procédé de traitement a ensuite été appliqué à deux autres sols étudiés contenant 40-60% (sol 2) et 20-30% (sol 3) de cendres d'incinération afin de valider sa robustesse.

Le procédé développé consiste en l'application d'une séparation magnétique sur les fractions grossières de taille supérieure à 4 mm. Les fractions intermédiaires (0,250 – 4 mm) subissent d'abord un conditionnement d'attrition, après lequel la boue est séparée et envoyée dans le concentré contaminé. Ensuite, les fractions 0,250 - 1 mm et 1 - 2 mm sont traitées sur la table à secousses. La fraction 2 - 4 mm, quant à elle, est traitée à l'aide d'un jig. Lorsqu'une contamination organique particulière ou associée à la fraction légère du sol est aussi présente, le sol traité au jig est ensuite traité dans une colonne d'élutriation. Enfin, la fraction fine du sol (<0,250 mm) est traitée par une étape de flottation/lixiviation. Le procédé global a permis d'enlever entre 18% et 56% des contaminants selon le sol et le contaminant inorganique

considéré. Le procédé a, par ailleurs, permis d'enlever 64% des HAP totaux contenus dans le sol 3.

Le procédé global a permis d'abaisser les teneurs en contaminants inorganiques du sol 2, initialement au-dessus du critère C, sous le critère C. Les teneurs en contaminants du sol 3, initialement au-dessus du critère B, autant pour les contaminants inorganiques que pour les contaminants organiques, n'ont toutefois pas pu être abaissées sous le critère B pour le cuivre et l'étain. L'isolement granulométrique de la fraction inférieure à 0,250 mm, de même que l'utilisation d'une séparation par un milieu dense au lieu de l'utilisation de la séparation par gravité ont été utilisés afin de diminuer les teneurs de tous les contaminants du sol 3 sous le critère B. Le coût du procédé global incluant les coûts directs et indirects a été estimé entre 81\$ et 88\$ par tonne de sol traité selon la proportion de résidus d'incinération présente dans les sols.

Mots clés : Méthodes de séparation physique, attrition, magnétisme, séparation gravimétrique, procédé de décontamination, cendres d'incinération, contaminant organique, contaminant inorganique.

ABSTRACT

Soil contamination is normally associated to industrial development. The mismanagement of municipal solid wastes incineration residues is an example of soil pollution by multiple contaminants such as lead, copper, tin, antimony, zinc, arsenic and hydrocarbons. In the province of Québec, such soils are normally excavated and landfilled as no commercial treatment is available. This situation is caused by the poor knowledge on this specific type of contamination.

The aim of this study was to identify the best remediation technologies to treat soils polluted by municipal solid waste incineration residues to comply with legal criteria and be competitive to landfilling. The process must be suitable to treat polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH) as these contaminants are sometimes presents in incineration residues. Physical separation methods were favored among others because of their low cost and simplicity. The most efficient methods were selected from trials carried out on a soil containing over 90% of incineration residues (soil 1). The process treatment was then tested on two other soils containing 40-60% (soil 2) and 20-30% (soil 3) of incineration residues to validate its robustness.

The process is composed of a magnetic separation applied to the particles over 4 mm. Particles between 0.250 mm and 4 mm are submitted to an attrition scrubbing. The attrition sludge is then removed and sent with the contaminated fraction. The fractions 0.250 - 1 mm and 1 - 2 mm are then treated on a shaking table, while the fraction 2 - 4 mm is treated with a jig. If organic contaminants are present under a particulate form, the 2 - 4 mm soil fraction is also treated on an elutriation column. Finally, the fraction <0.250 mm is treated by flotation/leaching combined step technology. The global process removed from 18% to 56% of the inorganic contaminants depending on contaminant and soil. The process also removed 64% of the total PAHs present in soil 3.

The global process succeeded to lower the inorganic contaminant concentrations from soil 2 below the criteria C. In soil 3, the organic and inorganic contaminant concentrations were initially over the criteria B. However, the global treatment did not succeed to lower these concentrations below the criteria B for copper and tin. The gravity separation had to be replaced by a dense media separation and the soil fraction below 0.250 mm had to be completely removed to meet the criteria B for all contaminants. The cost of the treatment process, including direct and indirect costs, was evaluated between 81\$ and 88\$ per ton of soil.

Keywords : Physical separation methods, attrition, magnetism, gravity separation, remediation technology, incineration residues, organic contaminant, inorganic contaminant.

TABLE DES MATIÈRES

1	CHAPITRE I : SYNTHÈSE.....	5
1.1	REVUE BIBLIOGRAPHIQUE	5
1.1.1	<i>Contamination des sols.....</i>	5
1.1.2	<i>Cadre réglementaire du Québec.....</i>	6
1.1.3	<i>Cendres d'incinération de déchets solides municipaux.....</i>	7
1.1.4	<i>Contaminants étudiés.....</i>	9
1.1.5	<i>Mobilité des contaminants dans les sols.....</i>	12
1.1.6	<i>Méthode de décontamination.....</i>	12
1.2	OBJECTIFS DE RECHERCHE ET ORIGINALITE	21
1.3	DEMARCHE METHODOLOGIQUE	25
1.3.1	<i>Échantillonnage des sols et caractérisation.....</i>	25
1.3.2	<i>Identification des méthodes de traitement efficaces.....</i>	26
1.3.3	<i>Procédé complet de traitement.....</i>	28
1.3.4	<i>Méthodes analytiques.....</i>	28
1.3.5	<i>Évaluation technico-économique.....</i>	30
1.3.6	<i>Calculs.....</i>	31
1.4	RESULTATS ET DISCUSSION	33
1.4.1	<i>Caractéristiques des sols.....</i>	33
1.4.2	<i>Sélection des méthodes de séparation.....</i>	34
1.4.3	<i>Procédé global.....</i>	38
1.4.4	<i>Analyse économique.....</i>	40
1.5	CONCLUSION	43
2	CHAPITRE II.....	47
2.1	RESUME	49
2.2	ABSTRACT	50
2.3	INTRODUCTION.....	51
2.4	MATERIAL AND METHODS	53
2.4.1	<i>Soil sampling.....</i>	53
2.4.2	<i>Attrition treatment.....</i>	53
2.4.3	<i>Gravity separation.....</i>	53
2.4.4	<i>Particle shape analysis.....</i>	55
2.4.5	<i>Scanning electron microscope analysis.....</i>	58
2.4.6	<i>Chemical analysis.....</i>	58
2.4.7	<i>Statistical analysis and calculations.....</i>	58
2.5	RESULTS AND DISCUSSION	60
2.5.1	<i>Attrition.....</i>	60
2.5.2	<i>Gravity separation.....</i>	62
2.5.3	<i>Dense media separation.....</i>	71
2.6	CONCLUSIONS.....	73
2.7	ACKNOWLEDGMENTS	73
3	CHAPITRE III.....	75

3.1	RESUME	77
3.2	ABSTRACT	78
3.3	INTRODUCTION.....	79
3.4	MATERIAL AND METHODS.....	82
3.4.1	<i>Soil sampling</i>	82
3.4.2	<i>Microanalysis</i>	82
3.4.3	<i>Magnetic separation</i>	82
3.4.4	<i>Magnetic and Dense Media (DM) separation</i>	85
3.4.5	<i>Chemical analysis</i>	86
3.4.6	<i>Calculations</i>	86
3.5	RESULTS AND DISCUSSION	87
3.5.1	<i>Soil characteristics</i>	87
3.5.2	<i>Magnetic separation</i>	87
3.5.3	<i>Magnetic and dense media (DM) separation</i>	93
3.6	CONCLUSION	99
3.7	ACKNOWLEDGEMENTS	100
4	CHAPITRE IV	101
4.1	RESUME	103
4.2	ABSTRACT	104
4.3	INTRODUCTION.....	105
4.4	MATERIAL AND METHODS	107
4.4.1	<i>Soil sampling</i>	107
4.4.2	<i>Magnetic separation</i>	107
4.4.3	<i>Density separation</i>	107
4.4.4	<i>Flotation/leaching</i>	109
4.4.5	<i>Upstream elutriation column</i>	109
4.4.6	<i>Microanalysis</i>	110
4.4.7	<i>Analytical</i>	110
4.4.8	<i>Calculations</i>	111
4.4.9	<i>Techno-economic evaluation</i>	111
4.5	RESULTS AND DISCUSSION	113
4.5.1	<i>Soil characteristics</i>	113
4.5.2	<i>Process train</i>	119
4.5.3	<i>Techno-economic evaluation</i>	125
4.6	CONCLUSION	127
4.7	ACKNOWLEDGMENTS	128
5	REFERENCES.....	129

LISTE DES TABLEAUX

TABLEAU 1.1	CLASSIFICATION DES PROCÉDÉS DE DÉCONTAMINATION DES SOLS	13
TABLEAU 1.2	RÉSUMÉ DES RENDEMENTS DE DÉCONTAMINATION OBTENUS PAR CERTAINS AUTEURS EN UTILISANT DES MÉTHODES DE SÉPARATION PHYSIQUE.....	17
TABLEAU 1.3	COMPARAISON DES ENTRAINEMENTS PARTICULAIRES (EP) ET DES ENLEVEMENTS DES CONTAMINANTS OBTENUS POUR LE TRAITEMENT DES FRACTIONS >4 MM DU SOL 1 PAR ATTRITION OU PAR SEPARATION MAGNETIQUE	35
TABLEAU 1.4	COMPARAISON DES ENTRAINEMENTS PARTICULAIRES (EP) ET DES ENLEVEMENTS DES CONTAMINANTS DE LA FRACTION 2-4 MM DU SOL 1 APRES TRAITEMENT PAR SEPARATION MAGNETIQUE OU PAR ATTRITION ET JIG.....	36
TABLEAU 1.5	COMPARAISON DES ENTRAINEMENTS PARTICULAIRES ET DES ENLEVEMENTS DES CONTAMINANTS OBTENUS APRES TRAITEMENT SUR LA TABLE A SECOUSSES OU PAR LA FLOTTATION/LIXIVIATION DES PARTICULES INFERIEURES A 0,250 MM.....	37
TABLE 2.1	CONTAMINANT CONCENTRATIONS (MG/KG) FOR INITIAL SOIL, ATTRITED SOIL AND ATTRITION SLUDGE FOR THE THREE SOIL FRACTIONS.....	61
TABLE 2.2	CONTAMINANT CONCENTRATIONS (MG/KG) IN INITIAL SOIL AND THE SEPARATION PRODUCTS OBTAINED FROM GRAVITY SEPARATION METHODS OF THE ATTRITED AND NON-ATTRITED (N-ATTRITED) SOIL FRACTIONS	65
TABLE 2.3	SOIL MASS PROPORTION (%) OF SEPARATION PRODUCTS FROM THE DENSE MEDIA SEPARATION (DMS) AND FROM THE GRAVITY SEPARATION (GS) FOR THE THREE ATTRITED AND NON-ATTRITED (N- ATTRITED) SOIL FRACTIONS.....	66
TABLE 2.4	MEAN VALUES FOR RAVIER SHAPE FACTOR, ASPECT RATIO AND FERET MAXIMUM DIAMETER FOR ATTRITED AND NON-ATTRITED 0.250-1 MM PARTICLES	70
TABLE 2.5	LIBERATION OF CONTAMINANTS (Pb AND Sn) AND SIZE OF PARTICLES BEFORE AND AFTER ATTRITION TREATMENT OF THE 0.250-1 MM SOIL FRACTION	70
TABLE 2.6	COMPARISON OF REMOVAL (%) AND DENSITIES BETWEEN THE DENSE MEDIA SEPARATION AND THE SHAKING TABLE SEPARATION	72
TABLE 3.1	FLUX DENSITY PRESENT INTO THE MAGNETIC SEPARATION CHAMBER IN GAUSS AND TESLA FOR APPLIED CURRENTS (A).....	85
TABLE 3.2	CONTAMINANT CONCENTRATION (MG/KG) IN THE SOIL FRACTIONS AND LEGAL LIMIT FOR A COMMERCIAL OR INDUSTRIAL USES IMPOSED BY THE QUÉBEC GOVERNMENT.....	88
TABLE 3.3	LINEAR REGRESSION FOR EACH ELEMENT REMOVAL CUMULATIVE PROPORTION CURVE BY MAGNETIC SEPARATION FOR THE SOIL FRACTION 0.250-1 MM AND 1-2 MM.....	93

TABLE 3.4	TOTAL CONTAMINANTS MASS PROPORTION AFTER MAGNETIC AND DENSITY SEPARATION FOR THE 0.250-1 MM SOIL FRACTION	95
TABLE 3.5	TOTAL CONTAMINANTS MASS PROPORTION AFTER MAGNETIC AND DENSITY SEPARATION FOR THE 1-2 MM SOIL FRACTION	96
TABLE 3.6	TOTAL CONTAMINANT MASS PROPORTION REMOVAL EFFICIENCY FOR MAGNETIC AND DENSITY SEPARATION METHODS (0.250-1 MM).....	98
TABLE 3.7	TOTAL CONTAMINANT MASS PROPORTION REMOVAL EFFICIENCY FOR MAGNETIC AND DENSITY SEPARATION METHODS (1-2 MM).....	98
TABLE 4.1	MAIN CHARACTERISTICS OF THE THREE SOILS USED IN THIS STUDY.....	113
TABLE 4.2	INORGANIC CONTAMINANT INITIAL CONCENTRATIONS (MG/KG), PROPORTION OF EACH FRACTION SIZE (%) AND QUÉBEC LEGAL LIMITS FOR THE THREE STUDIED SOILS.....	115
TABLE 4.3	INITIAL AND FINAL PAH CONCENTRATIONS (MG/KG) IN SOIL 3 AND SOIL REMOVAL (SR) DURING THE TREATMENT AND THE EFFICIENCY OF THE TREATMENT IN TERMS OF PAHs REMOVAL YIELDS (%).....	116
TABLE 4.4	INORGANIC CONTAMINANT CONCENTRATIONS AND SOIL REMOVALS (SR) FOR THE THREE STUDIED SOILS AFTER TREATMENT	120
TABLE 4.5	EFFICIENCIES IN TERMS OF INORGANIC CONTAMINANT REMOVALS (%) AND SOIL REMOVALS (SR) FOR THE TECHNOLOGIES USED IN THE PROCESS TRAIN	121
TABLE 4.6	INORGANIC CONTAMINANT CONCENTRATIONS (MG/KG) AND SOIL REMOVALS (SR) AFTER TREATMENT USING DENSE MEDIA (DM) SEPARATION INSTEAD OF GRAVITY SEPARATION AND AFTER REMOVING THE <0.250 MM SOIL FRACTION SIZE IN SOIL 3 (20-30% INCINERATOR RESIDUES)	124
TABLE 4.7	TECHNO-ECONOMIC EVALUATION OF THE TWO SOILS DECONTAMINATION SCENARIOS (SOIL 2 AND SOIL 3) FOR MAGNETIC AND GRAVITY SEPARATION	126

LISTE DES FIGURES

FIGURE 1.1	REPARTITION DES TYPES DE CONTAMINATIONS DES TERRAINS SELON LE SYSTEME DE GESTION DES TERRAINS CONTAMINES DU GOUVERNEMENT DU QUEBEC.....	6
FIGURE 1.2	PHOTO DU SITE À L'ÉTUDE.....	25
FIGURE 1.3	RESULTATS DE L'ANALYSE AU DIFFRACTOMETRE A RAYONS X (DRX) REALISEE SUR LA FRACTION 0,250 - 1 MM DU SOL 1.....	34
FIGURE 2.1	NUMERICAL PICTURE OF SOIL PARTICLES (0.250-1 MM) UNDER BINOCULAR (10X) AND SUBSEQUENT IMAGE ANALYSIS WITH IMAGEJ FREEWARE.....	57
FIGURE 2.2	GRANULOMETRIC DISTRIBUTION OF THE ATTRITION SLUDGE (SIEVED AT 0.250 MM) FROM THE 0.250-1 MM SOIL FRACTION.....	62
FIGURE 2.3	CUMULATIVE DISTRIBUTION OF PARTICLE SIZE BASED ON MAXIMUM FERET DIAMETER FOR ATTRITED AND NON-ATTRITED SOIL FROM THE 0.250-1 MM SOIL FRACTION.....	68
FIGURE 2.4	PICTURES FROM SEM ANALYSIS SHOWING (A) LEAD OXIDE WITH LIBERATION RATIO OF 100%, (B) LEAD OXIDE WITH LIBERATION RATION OF 65%, (C) LEAD CARBONATE WITH LIBERATION RATIO OF 40%, AND (D) TIN OXIDE WITH LIBERATION RATIO OF 15%. LEAD AND TIN CONTAMINANTS APPEAR BRIGHTER ON PICTURES.....	69
FIGURE 3.1	MAGNETIC SEPARATION CHAMBER AND THE SOIL DEVIATION BY THE INVERSED V SHAPE WOODEN BLOCK.....	84
FIGURE 3.2	SOIL DENSITY SEPARATION USING A DENSE MEDIA SEPARATION SET-UP AND TETRABROMOETHANE (TBE) AND ETHANOL AS DENSE MEDIA.....	84
FIGURE 3.3	CUMULATIVE REMOVAL (%) OF CONTAMINANTS AND SOIL TOTAL MASS UNDER INCREASING CURRENTS FROM 0.2 TO 6.0 A FOR THE 0.250-1 MM SOIL FRACTION (A) AND 1-2 MM SOIL FRACTION (B) ..	89
FIGURE 3.4	SEM PICTURES SHOWING THIN LAYER OF TIN (BRIGHTER) ON Fe OXIDE PARTICLES.....	91
FIGURE 4.1	SEM-EDS IMAGES OF SOIL PARTICLES CONTAINING LEAD AND TIN (APPEAR BRIGHTER) A) AND B) THIN LAYER OF TIN OXIDE ASSOCIATED TO IRON OXIDE, C) LEAD CARBONATE ASSOCIATED TO SILICATES, D) LEAD OXIDE WITHOUT CARRYING PHASE.....	117
FIGURE 4.2	DIAGRAM OF THE TREATMENT PROCESS.....	118

LISTE DES ÉQUATIONS

ÉQUATION 1.1.....	31
ÉQUATION 1.2.....	31
ÉQUATION 1.3.....	32
EQUATION 2.1.....	55
EQUATION 2.2.....	55
EQUATION 2.3.....	56
EQUATION 2.4.....	58
EQUATION 2.5.....	59
EQUATION 2.6.....	71
EQUATION 3.1.....	79
EQUATION 3.2.....	86
EQUATION 3.3.....	86

LISTE DES ABRÉVIATIONS

As	Arsenic
CAS	Cocamydopropyl hydroxysultaine
CCME	Conseil canadien des ministres de l'environnement
Cd	Cadmium
CMC	Concentration micellaire critique
Cu	Cuivre
Cr	Chrome
DRX	Diffraction aux rayons X
EP	Entraînement particulaire
Fe	Fer
HAP	Hydrocarbure aromatique polycyclique
Hg	Mercure
MD	Milieu dense
MDDELCC	Ministère du développement durable, de l'environnement et de la lutte contre les changements climatiques
MEB	Microscopie électronique à balayage
Mo	Molybdène
Ni	Nickel
Pb	Plomb
RCQA	Résidus du contrôle de la qualité de l'air
RPRT	Règlement sur la protection et la réhabilitation des terrains
Sb	Antimoine
Sn	Étain
TBE	Tétrabromoéthane
TCLP	Toxic characteristic leaching procedure
TS	Table à secousses
Zn	Zinc

INTRODUCTION

Le développement industriel rapide, conjugué à une législation environnementale et un contrôle inappropriés, a conduit à la contamination de nombreux sites par différents composés toxiques. Les sites contaminés par la gestion inadéquate des cendres générées lors de l'incinération des déchets municipaux (matières résiduelles) en sont des exemples. Entre les années 1930 et 1970, les cendres d'incinération produites à la ville de Québec ont servi à la construction de rues ou à remblayer les terres basses. Les sites contaminés par les résidus d'incinération sont particulièrement nombreux dans la ville de Québec et représentent un défi important pour le développement et l'aménagement urbain. Les sols contaminés par les résidus d'incinération peuvent contenir de nombreux éléments inorganiques, tels que l'arsenic (As), le cadmium (Cd), le chrome (Cr), le cuivre (Cu), le mercure (Hg), le molybdène (Mo), le nickel (Ni), le plomb (Pb), l'antimoine (Sb), l'étain (Sn) et le zinc (Zn), de même que des composés organiques tels que les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) et les dioxines et furanes (Ahmed *et al.*, 2010, Aucott *et al.*, 2010, Chung *et al.*, 2010, Hjelm, 1996, Poletti *et al.*, 2004). Aujourd'hui encore, la décontamination des sols contaminés par les résidus d'incinération consiste à envoyer les sols excavés directement à l'enfouissement. Au Québec, aucun procédé de traitement pour les sols contaminés par les composés inorganiques, incluant les cendres d'incinération, n'est exploité à une échelle commerciale. Cet état de fait est causé par le manque de connaissances sur ce type de contamination ainsi que par l'hétérogénéité importante des cendres et des remblais contaminés, ce qui limite l'utilisation des technologies existantes et le développement de nouvelles technologies efficaces, robustes et abordables. La littérature scientifique sur le sujet du traitement des sols contaminés par les cendres d'incinération est pratiquement inexistante. De plus, les sols contaminés par de multiples éléments inorganiques sont particulièrement difficiles à traiter en raison de la distribution et de la spéciation variable des contaminants. Enfin, la présence d'une mixité de contaminants organiques et inorganiques rend la situation complexe et les solutions plus coûteuses.

L'objectif de ce doctorat est de développer un procédé de traitement pour les sols contaminés par les cendres d'incinération qui soit compétitif sur le plan économique face à l'enfouissement. Ce procédé devra être suffisamment versatile pour faire face à la présence de composés organiques tels que les HAP, contaminants organiques fréquemment rencontrés dans les résidus d'incinération et les remblais urbains. Les méthodes physiques peuvent être utilisées pour séparer autant les contaminants organiques qu'inorganiques, en plus d'être simples et

abordables. Pour cette raison, cette recherche s'intéresse particulièrement aux méthodes de séparation physique. La lixiviation chimique ne sera utilisée qu'en dernier recours sur la fraction fine du sol.

Ce projet s'inscrit dans le contexte d'une collaboration entre l'INRS-ETE et un partenaire industriel. De ce partenariat est né un procédé de traitement *ex-situ* des sols contaminés par le plomb et les HAP. Ce procédé breveté, baptisé METOX[®], a la particularité d'utiliser une étape de flottation en milieu acide et salin en présence d'un surfactant. Cette innovation permet le traitement, en une seule étape, de contaminants organiques et inorganiques à un coût inférieur aux traitements séquentiels. Un projet pilote a été réalisé sur 75 tonnes de sols de la Garrison Valcartier. Le succès de ce projet a incité l'INRS-ETE et le partenaire industriel à poursuivre le développement de METOX[®] en élargissant les possibilités du procédé aux contaminations inorganiques multiples ou mixtes telles que les remblais hétérogènes pollués par les cendres d'incinération.

PARTIE 1 : SYNTHÈSE

1 CHAPITRE I : SYNTHÈSE

1.1 Revue bibliographique

1.1.1 Contamination des sols

La contamination des sols est le résultat des activités humaines. Le développement rapide des activités industrielles a créé un décalage entre les pratiques de gestion des résidus et la législation environnementale. Ainsi, de nombreux sites ont été contaminés par différentes substances, notamment les composés organiques toxiques et les métaux. Ces sites contaminés représentent un danger pour la santé humaine et les écosystèmes, étant donné qu'ils sont souvent localisés dans des zones fortement peuplées et/ou à proximité de cours d'eau. Les sites contaminés constituent donc un défi pour le développement urbain.

Au Québec, un système de gestion des terrains contaminés est géré par le Ministère du développement durable, de l'environnement et de la lutte aux changements climatiques (MDDELCC). Au 31 décembre 2010 ([Figure 1.1](#)), le répertoire des terrains contaminés comptait 8334 enregistrements dont 73% étaient des sites aux prises avec une contamination organique, 15% avec une contamination mixte et 12% avec une contamination inorganique (Hébert *et al.*, 2013).

Il est admis que la remédiation des sites contaminés par des composés inorganiques est particulièrement problématique, notamment en raison de leur répartition spatiale très hétérogène dans les sols, de leur spéciation variable, et du fait qu'ils ne peuvent être dégradés (Dermont *et al.*, 2008b). Ainsi, très peu d'options viables économiquement pour la remédiation d'un sol contaminé par les composés inorganiques sont disponibles à ce jour. C'est pourquoi ces sols prennent habituellement la route des sites d'enfouissement, une solution douteuse de gestion de la contamination sur le long terme. L'intérêt de développer un procédé compétitif applicable à une gamme étendue de sols contaminés par les composés inorganiques est donc important. La situation se complexifie encore lorsque des composés organiques, en plus des composés inorganiques, sont également présents sur un site. Des traitements successifs sont généralement envisagés afin de décontaminer les sites aux prises avec une contamination mixte.

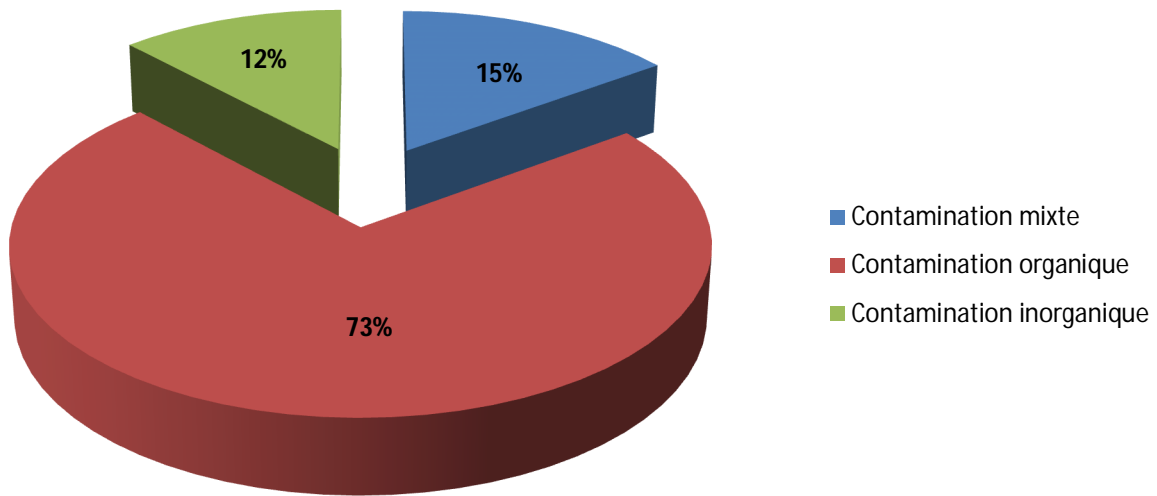


Figure 1.1 Répartition des types de contaminations des terrains selon le système de gestion des terrains contaminés du gouvernement du Québec

1.1.2 Cadre réglementaire du Québec

Au Québec, deux entités différentes émettent des directives concernant la pollution des sols et des eaux souterraines; le Gouvernement du Canada par l'intermédiaire du Conseil canadien des ministres de l'environnement (CCME) et le Gouvernement du Québec sous l'égide du MDDELCC. Ainsi, sur le territoire québécois, seuls les sites du gouvernement du Canada sont soumis aux règles et procédures du CCME (bases militaires, ports, aéroports, etc.). Pour le reste du territoire du Québec, les politiques, lois et règlements du MDDELCC régissent les actions et procédures concernant la gestion des sols contaminés.

La pierre angulaire de la politique de protection des sols et de réhabilitation des terrains contaminés du gouvernement du Québec est la *Loi sur la Qualité de l'environnement* (MDDEP, 2003a). Celle-ci encadre notamment la gestion des terrains contaminés et la gestion des matières résiduelles. En appui à cette loi viennent plusieurs règlements, dont le *Règlement sur la protection et la réhabilitation des terrains* (RPRT) et le *Règlement sur l'enfouissement de sols contaminés*. Un terrain suspecté d'être contaminé doit être caractérisé selon le Guide de

caractérisation des terrains et rencontrer les critères génériques pour les sols (Annexe I de RPRT) et l'eau souterraine (Annexe II du RPRT). Les critères génériques (A,B,C) sont des seuils à respecter pour chacun des contaminants présents sur le terrain en fonction de l'usage actuel ou projeté du terrain (résidentiel, commercial, industriel). La décontamination du sol aux critères génériques ou l'enfouissement sécuritaire permettent d'éviter les restrictions dans l'usage du terrain. Toutefois, selon le *Règlement sur l'enfouissement de sols contaminés*, les sols contaminés dépassant un ou des critères de l'Annexe I (critères communément appelés D) doivent être traités avant de pouvoir être enfouis. Les propriétaires doivent transmettre au MDDELCC les informations relatives à la contamination présente afin que le site soit inscrit au répertoire des terrains contaminés du Québec et inscrire un avis de contamination au registre foncier de la propriété visée.

Il est par ailleurs possible de conserver une contamination sur le terrain suite à une analyse des risques toxicologiques et écotoxicologiques. Des critères différents des critères génériques peuvent alors être déterminés. Des mesures de confinement et des restrictions à l'usage, la diffusion d'informations au public, de même qu'un suivi environnemental à long terme peuvent être nécessaires afin de protéger les utilisateurs du terrain et l'environnement. Ce mode de gestion ne peut toutefois pas être appliqué pour un développement résidentiel en parcelles individuelles et lorsque des hydrocarbures pétroliers sont présents.

La contamination des sols est fréquemment engendrée par le mélange de matières résiduelles avec les sols. Selon la politique du MDDELCC, un sol ne peut être considéré comme un déchet, sauf s'il contient plus de 50% de matières résiduelles et qu'il est impossible de les séparer. Ainsi, le sol 1 de cette étude n'est pas un sol au sens de la loi, mais plutôt une matière résiduelle non dangereuse. Le terme 'sol' est toutefois utilisé dans ce document à des fins de simplification.

1.1.3 Cendres d'incinération de déchets solides municipaux

L'incinération consiste à oxyder les déchets solides par la combustion. L'incinération permet de réduire le volume des déchets d'environ 90%, tout en permettant la récupération de la majeure partie de l'énergie contenue dans ceux-ci (Hjelmar, 1996). L'incinération produit deux types de cendres, soit les cendres de grilles et les cendres volantes. Les cendres de grilles, de densité plus élevée, s'accumulent sur les grilles de la chambre de combustion et représentent environ 80% du volume total des cendres produites. Les cendres volantes, de densité plus faible, sont entraînées par les gaz de combustion et captées via le système de contrôle anti-pollution de

l'incinérateur et représentent le volume restant (Tincelin, 1993). Les cendres volantes sont issues du mélange des cendres de chaudière, des cendres d'électrofiltre et des chaux usées dans le cas particulier de l'incinérateur de Québec (Levasseur, 2004). Ce mélange de cendres est souvent appelé Résidus du contrôle de la qualité de l'air (RCQA).

Les cendres sont considérées comme des matières résiduelles selon la politique québécoise de gestion des matières résiduelles. Les cendres étant des matières potentiellement lixiviables et/ou toxiques, elles seront classées comme matières résiduelles dangereuses ou non dangereuses selon la conformité avec les normes décrites dans le *Règlement sur les matières dangereuses*. Ainsi, les cendres de grilles, qui respectent les critères des matières non lixiviables, sont classées comme une matière résiduelle non dangereuse (Beauchesne *et al.*, 2005). Les cendres volantes se qualifient toutefois comme étant une matière dangereuse et doivent être traitées avant leur enfouissement (Levasseur, 2004).

Les principaux constituants des cendres de grilles sont le verre, les métaux, les céramiques, les minéraux et la matière organique (Chimenos *et al.*, 1999). Évidemment, les proportions de chacun des constituants fluctuent selon la composition et la nature des déchets incinérés. La fraction >4 mm peut représenter plus de la moitié du volume des cendres.

Les cendres volantes, pour leur part, contiennent des minéraux et de la matière organique. Durant l'incinération, les constituants inorganiques peuvent être volatilisés, devenir liquides ou réagir avec l'oxygène. Selon les conditions de combustion et de refroidissement, ces constituants vont se solidifier sous forme cristalline, amorphe ou encore se condenser à la surface des particules constituant la cendre (Kutchko *et al.*, 2006). Les composés toxiques des cendres volantes sont plus facilement lixiviables de par le fait qu'ils sont retrouvés en surface des particules, contrairement aux contaminants des cendres de grilles que l'on retrouve séquestrés dans la matrice dans une proportion plus importante.

Selon Kim *et al.* 2002, les cendres volantes contiennent une grande proportion de particules de tailles comprises entre 1 et 100 µm et la densité de 90% des particules est comprise entre 2 et 3. De plus, les concentrations en contaminants inorganiques retrouvées dans les fractions granulométriques seraient inversement proportionnelles à la taille des particules.

Les principaux contaminants inorganiques retrouvés dans les cendres d'incinération sont l'arsenic (As), le cadmium (Cd), le cuivre (Cu), le mercure (Hg), le molybdène (Mo), le nickel (Ni), le plomb (Pb), l'antimoine (Sb), l'étain (Sn) et le zinc (Zn). Certains contaminants organiques peuvent être retrouvés dans les cendres d'incinération, tels que les dioxines et

furanes et les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) (Chung *et al.*, 2010). La présence et la concentration de ces contaminants dépend du type de résidu (cendre volante ou cendre de grille) (Chimenos *et al.*, 1999), de la composition des déchets incinérés et de la technologie et opération de l'incinérateur (Hjelmar, 1996). La présence d'une grande quantité de fer (Fe) est aussi une caractéristique des cendres d'incinération qui sont d'ailleurs couramment appelées « mâchefer ».

L'ampleur de la problématique des sols contaminés par les cendres d'incinération est mal connue au Québec. En effet, les sites remblayés à l'aide de cendres d'incinération ont généralement aussi été utilisés à des fins industrielles par la suite, et d'autres sources de contamination ont souvent été identifiées sur les mêmes sites. C'est pourquoi les sites contenant des cendres d'incinération sont catégorisés sous l'appellation imprécise de « sites contaminés par des métaux » ou « remblais hétérogènes contaminés par des métaux ».

1.1.4 Contaminants étudiés

1.1.4.1 Plomb

Le plomb (Pb) est un élément de valence (0), (II) ou (IV) non essentiel aux organismes vivants. Le plomb peut notamment former des sels lorsque combiné au soufre (PbS, PbSO₄), au chlore (PbCl₂), à l'oxygène (PbO, PbO₂, Pb₃O₄) et aux carbonates (PbCO₃) (Pichard *et al.*, 2003). La densité de ces sels est comprise entre 6,14 et 11,34. Le plomb métallique a des propriétés diamagnétiques. Des exemples de contamination des sols au plomb incluent les sites miniers, les sites de traitement de minerais tels que le grillage de la pyrite, les sites de recyclage ou de fabrication de batteries, etc. L'intoxication au plomb, plus répandue chez les enfants en bas âge, est appelée saturnisme. Celle-ci provoque à court terme de l'anémie, des troubles digestifs, des troubles moteurs, et à plus long terme, la stérilité, des troubles rénaux et de l'hypertension. L'arséniate de plomb est considéré comme cancérigène pour l'homme et plusieurs autres composés contenant du plomb sont aussi suspectés de l'être (Pichard *et al.*, 2003).

1.1.4.2 Cuivre

Le cuivre (Cu) est un microélément nécessaire à la vie. On le retrouve dans les sols sous forme élémentaire (Cu) mais surtout sous forme de sulfate (CuSO_4) et d'oxyde (Cu_2O , CuO) (Pichard *et al.*, 2005b). Le cuivre est habituellement de valence (0), (I) ou (II). Le cuivre est largement utilisé en raison de ses multiples propriétés, notamment sa conductivité électrique et sa ductilité. Il est donc utilisé dans la fabrication de conducteurs électriques, de conduites d'eau, de différents alliages métalliques (bronze, laiton, etc.) et une multitude d'autres applications en industrie (pigments, fongicides, tannage du cuir, préservation du bois, etc). La principale source de contamination des sols par le cuivre provient des scories lors de l'extraction et du traitement du minerai. Chez l'homme, le cuivre peut provoquer une réduction du taux de globules rouges et des dysfonctions pulmonaires, hépatiques et pancréatiques. Le cuivre n'est pas considéré comme un agent cancérigène pour l'homme (Pichard *et al.*, 2003).

1.1.4.3 Zinc

Le zinc (Zn) est un microélément essentiel à la vie. Le zinc peut-être de valence (0) et (II). Le zinc est largement utilisé pour le placage des métaux, dans les alliages (laiton, bronze, etc), l'alimentation animale, les fertilisants, les pigments, etc. Les sources de contamination des sols sont multiples mais l'extraction et le traitement du minerai, les applications industrielles et l'agriculture sont d'importantes sources (Pichard *et al.*, 2005a). Le zinc métallique est peu toxique pour l'homme et n'est pas considéré comme un agent cancérigène. Toutefois, les sels de zinc vont causer des désordres gastro-intestinaux et des diminutions de la réponse immunitaire (Pichard *et al.*, 2005a).

1.1.4.4 Étain

L'étain (Sn) est considéré un élément non essentiel aux humains mais essentiel pour certains animaux. Lorsque combiné au carbone, il forme des composés organiques nommés organoétains. L'étain peut être de valence (0), (II) ou (IV). L'étain métallique est principalement utilisé pour les alliages, l'étamage des métaux (boîtes de conserve) et la brasure des circuits électroniques. Les sels d'étain peuvent être utilisés comme additifs alimentaires, et ils sont également utilisés dans la fabrication des savons, des parfums, etc. Les organoétains sont utilisés comme pesticide, algicide et dans les plastiques en général. L'étain et ses sels inorganiques sont relativement peu toxiques. Toutefois, les composés organiques de l'étain, tels que le tributylétain, sont particulièrement toxiques (ATSDR, 2005).

1.1.4.5 Arsenic

L'arsenic (As) est un élément toxique bien connu mais c'est aussi un oligo-élément essentiel à l'homme en des quantités infimes. Lorsque lié au carbone et à l'hydrogène, l'As forme des sels organiques (La Rocca *et al.*, 2010). L'arsenic peut être de valence (0), (III) et (V). La forme As(III) est nommée arsénite et la forme As(V) est nommée arséniate. L'arsenic est utilisé pour la préservation du bois (complexe As-Cu-Cr), pour la fabrication des alliages de piles électriques. Il est aussi utilisé afin d'augmenter la dureté des alliages de cuivre, de plomb et d'or. Il est également utilisé comme semi-conducteur, comme pesticide, comme pigment, etc. Les sources importantes de contamination des sols par l'As sont l'extraction de l'arsenic lui-même, mais aussi l'extraction de l'or, du cuivre et du plomb, ainsi que les utilisations industrielles et agricoles. L'arsenic possède des propriétés intermédiaires entre les métaux et les non-métaux. L'arsenic (V) est moins toxique que l'arsenic (III) (La Rocca *et al.*, 2010). Les effets de l'arsenic sur l'homme sont multiples, notamment sur la peau, le système cardiovasculaire, le système nerveux et la reproduction. L'arsenic a été l'un des premiers composés à être classé comme cancérigène. Il cause des cancers du foie, des reins, des poumons et de la vessie.

1.1.4.6 Antimoine

L'antimoine (Sb) est un élément non essentiel à la vie. L'antimoine est généralement de valence (0), (III) ou (V). L'antimoine est principalement utilisé dans les alliages métalliques avec le cuivre, le plomb et l'étain, comme retardateur de flamme et dans la fabrication de verre et de poterie. Les sources de contamination sont liées à son exploitation ou à celle de minéraux comme le plomb ou le cuivre, à son utilisation dans les industries et à la combustion de déchets (Bisson *et al.*, 2007). L'antimoine peut causer des problèmes oculaires et cutanés, de même que des troubles gastriques et de la reproduction. Le trioxyde d'antimoine (SbO_3) est suspecté d'être cancérigène pour l'homme (Bisson *et al.*, 2007). L'antimoine, comme l'arsenic, possède des propriétés intermédiaires entre les métaux et les non-métaux.

1.1.4.7 Hydrocarbures aromatiques polycycliques

Les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) sont des molécules organiques composées de carbone et d'hydrogène. Les HAP contiennent au moins deux cycles aromatiques condensés et le nombre de cycles détermine grandement les caractéristiques physico-chimiques de la molécule. Les HAP sont généralement présents sous forme d'un

mélange de nombreuses molécules différentes (ATSDR, 1995). L'origine principale des HAP est pyrolytique. En effet, la combustion incomplète des matières organiques à haute température, conditions entre autres retrouvées dans les incinérateurs de déchets municipaux, conduit à la formation des HAP. La combustion du charbon et des produits pétroliers est la plus grande source de HAP. Au Québec, 27 HAP sont normés dans l'Annexe 1 du RPRT. Plusieurs HAP sont associés à l'augmentation des risques de développement d'un cancer, notamment des poumons, de la vessie, de l'estomac et de la peau (IARC, 2006).

Les HAP sont de nature hydrophobe et vont généralement s'associer à la matière organique présente dans les sols (CCME, 2008). Une fois adsorbés sur les composantes du sol, les HAP sont difficilement biodégradables. Ils sont par ailleurs de densité beaucoup plus faible que le quartz lorsqu'ils ne sont pas associés à des particules de nature différente.

1.1.5 Mobilité des contaminants dans les sols

La mobilité des contaminants étudiés dans les sols est généralement faible en raison de leur adsorption relativement élevée par les composantes du sol, telles que les oxydes et les hydroxydes de fer, de manganèse et d'aluminium, la matière organique et les argiles. Le lessivage des contaminants inorganiques peut être augmenté par des variations de pH ou du potentiel d'oxydo-réduction et par la dissolution de la phase porteuse, telle que les oxydes de fer hydratés (Blanchard, 2000). Généralement, la solubilité des contaminants inorganiques tend à augmenter lorsque le pH s'éloigne de la neutralité. Le potentiel d'oxydo-réduction influence aussi la mobilité des contaminants inorganiques. Par exemple, des conditions réductrices vont favoriser la réduction du As (V) en As (III), lequel est beaucoup plus mobile que l'As (V). Dans les cendres d'incinération, les contaminants sont réputés d'autant moins mobiles qu'ils sont en partie encapsulés dans la matrice suite au traitement thermique. C'est pourquoi les cendres d'incinération respectent généralement les normes du test de lixiviation TCLP malgré les fortes teneurs en contaminants totaux qu'elles contiennent.

1.1.6 Méthode de décontamination

Les principales méthodes disponibles pour la décontamination des sols sont classées et présentées dans le [Tableau 1.1](#). Certaines méthodes peuvent être appliquées sans excavation du sol (*in-situ*) ou sur le sol excavé (*ex-situ*). Les sols peuvent aussi être traités directement sur le site (on-site) ou sur un site différent (off-site).

Tableau 1.1 Classification des procédés de décontamination des sols

Procédés	Immobilisation	Extraction	Dégradation
Physique	Solidification Isolation/confinement Excavation/enfouissement	Séparation physique	Broyage
Chimique	Stabilisation Redox	Lixiviation Électrocinétique	Oxydation
Thermique	Vitrification	Désorption thermique	Incinération Pyrolyse
Biologique	Biostabilisation Phytostabilisation	Phytoextraction Bioextraction	Biodégradation

En pratique, peu d'options existent pour la gestion des sols contenant des contaminants inorganiques. Lorsque des contaminants organiques sont aussi présents, la complexité du traitement est encore accrue. La méthode la plus simple et la plus courante de décontamination d'un site est l'excavation du volume de sol contaminé et son transport vers un lieu d'enfouissement sécuritaire de sols contaminés. Cette méthode de gestion consiste en fait à isoler et à confiner les sols de façon *ex-situ* dans un site d'enfouissement (off-site). Cette façon de faire ne fait toutefois que déplacer la problématique des sols contaminés vers les générations futures qui devront entretenir ces sites ou traiter ces sols. Les principaux avantages de cette méthode de gestion sont son faible coût, sa rapidité et sa simplicité. Les coûts par tonne de sol enfoui varient selon le niveau et le type de contamination, ainsi que selon le site d'enfouissement sélectionné. Les contaminants peuvent aussi être laissés sur le site par l'utilisation de méthodes de confinement et d'isolement afin d'éviter la migration des contaminants vers les écosystèmes voisins. Ce mode de gestion est appelé la gestion de risques et nécessite un suivi environnemental à long terme. Enfin, une option pour la gestion des sols contaminés par les composés inorganiques est l'immobilisation des contaminants par des méthodes de stabilisation/solification. Stablex Canada Inc. possède un certificat d'autorisation et exploite cette technologie sur le territoire québécois pour les sols dont les teneurs en contaminants dépassent un ou plusieurs critères de l'Annexe I (critères D) du *Règlement sur l'enfouissement de sols contaminés*. Par ailleurs, la présence de contaminants organiques est tolérée lorsque celle-ci n'est pas majeure (<30%). À l'extérieur du Québec, des travaux ont été réalisés *in-situ* sur des sols contaminés, notamment au *Sydney tar ponds* en Nouvelle-Écosse (www.tarpondscleanup.ca). C'est d'ailleurs le mode de gestion des sites contaminés par les composés inorganiques le plus utilisé aux États-Unis (EPA, 2007). Ces

méthodes de gestion ne séparent pas les contaminants du sol mais impliquent soit de les laisser en place, soit de déplacer tout le volume de sol dans un site d'enfouissement.

Le présent projet s'intéresse principalement à l'extraction des contaminants présents dans les sols par les méthodes de séparation physique. La lixiviation chimique, en combinaison à la flottation, sera considérée sur la fraction fine seulement en raison des coûts plus importants liés à cette méthode. De façon évidente, les méthodes qui visent la dégradation ne sont pas applicables car les contaminants inorganiques ne peuvent l'être. De plus, les HAP sont des composés particulièrement récalcitrants à la biodégradation. Les méthodes d'immobilisation des contaminants sont souvent considérées comme trop limitantes quant à l'utilisation future des sites. Les méthodes d'extraction biologique telles que la biolixiviation ont également été écartées en raison du peu de versatilité qu'elles offrent devant l'hétérogénéité des contaminants et des sols. Les méthodes thermiques sont, quant à elles, non compétitives comparativement aux coûts de l'enfouissement.

La séparation physique a pour objectif de concentrer les contaminants dans un volume de sol le plus petit possible, en se basant sur les propriétés physiques des particules telles que la susceptibilité magnétique, la taille, la densité ou la tension de surface (Dermont *et al.*, 2008a). Les techniques utilisées sont habituellement dérivées des procédés de l'industrie minière. Ce sont des méthodes peu dispendieuses comparativement aux méthodes chimiques, c'est pourquoi elles sont privilégiées lorsqu'elles sont applicables (Mercier *et al.*, 2001, Wills, 1992). Les paramètres affectant l'efficacité de ces méthodes sont notamment le degré de libération des contaminants, la granulométrie, la forme des particules, le pourcentage d'argile et de matière organique, les différences de densité, les propriétés de surface, les propriétés magnétiques, la conductivité électrique et l'hétérogénéité du sol.

1.1.6.1 Attrition

L'attrition peut être utilisée comme méthode de décontamination en détachant les particules fines contaminées des particules plus grossières peu ou pas contaminées (Strazisar *et al.*, 1999). L'utilisation d'un surfactant lors de l'attrition permet de mobiliser et/ou de solubiliser les contaminants organiques présents dans le sol (Bayley *et al.*, 2005, Bisone *et al.*, 2013, Strazisar *et al.*, 1999). L'attrition peut aussi être utilisée comme prétraitement pour améliorer l'efficacité des méthodes de séparation physique. En effet, l'attrition utilisée en prétraitement améliore l'efficacité de la classification hydraulique (Williford *et al.*, 1999) et de la séparation sur la table à secousses (Bisone, 2012, Marino *et al.*, 1997). Pour leur part, Mercier *et al.* (2001) n'ont pas

obtenu de tendance significative suite à l'utilisation de l'attrition préalablement à une séparation à l'aide d'un milieu dense. L'attrition génère des frictions et des collisions entre les particules elles-mêmes et entre les particules et les hélices, les murs de la cellule ou les déflecteurs, causant l'abrasion (Jiang *et al.*, 2009), le récurage et la désintégration des particules. Ces effets engendrent la suppression des films entourant les particules et la désintégration des agglomérats (Marino *et al.*, 1997, Strazisar *et al.*, 1999), produisant une boue d'attrition composée principalement de particules fines. Les contaminants peuvent possiblement être concentrés dans cette boue. Ces effets peuvent aussi augmenter la libération des contaminants en séparant les particules agglomérées en particules contaminées et en particules propres. Enfin, l'attrition peut aussi modifier la forme des particules. En effet, la forme des particules, de même que leur taille et leur densité, est importante dans l'efficacité des méthodes de séparation gravimétrique (Grobler *et al.*, 2011, Marino *et al.*, 1997).

1.1.6.2 Séparation par gravité

Ces méthodes exploitent la gravité afin de séparer les particules selon leur taille ou leur densité. La forme et la taille des particules, les différences de densité des particules et la proportion de solides de la pulpe sont des paramètres importants dans ces procédés. Les méthodes de classification, qui séparent les particules principalement selon leur taille, ne seront pas discutées ici. À des fins de décontamination, les méthodes gravimétriques qui permettent une séparation selon la densité des particules sont particulièrement utiles. Ces méthodes nécessitent un fort degré de libération des contaminants, une différence de densité d'au moins 1 entre les particules contaminées et les particules de sol et une distribution granulométrique relativement étroite (Gosselin *et al.*, 1999). La séparation par densité utilise le principe de la sédimentation entravée, séparation qui se produit lorsqu'un lit de particules est fluidisé et que les particules de densité supérieure s'accumulent en dessous des particules de densité inférieure. La proportion de solides dans le lit de particules doit être supérieure à 5% (écoulement turbulent) pour que la sédimentation soit entravée. Le jig, la spirale et la table à secousses sont les équipements les plus couramment utilisés (Mercier *et al.*, 2001). Le jig peut traiter des particules de taille entre 0,5 mm et 200 mm, la table à secousse des particules de taille entre 75 µm et 4,75 mm et la spirale des particules de taille entre 75 µm et 3 mm (Gosselin *et al.*, 1999). Les milieux denses (MD) sont des techniques qui permettent une séparation uniquement basée sur la densité des particules. Ces milieux liquides ont des densités nettement supérieures à l'eau et permettent de séparer les particules lourdes des plus légères ; celles plus lourdes que le milieu sédimentent alors que celles plus légères flottent.

Cette technique permet la séparation de particules ayant de très faibles différences de densité, soit aussi peu que 0,1 (Gill, 1991). Selon Mercier *et al.* (2007), les HAP pourraient être séparés par ces méthodes lorsqu'une fraction légère est générée. Le [Tableau 1.2](#) présente un résumé des performances de procédés de séparation physique de décontamination obtenues par plusieurs auteurs au cours de ces dernières années.

Tableau 1.2 Résumé des rendements de décontamination obtenus par certains auteurs en utilisant des méthodes de séparation physique

Références	Rendement d'enlèvement des métaux	Méthode utilisée
(Dermont <i>et al.</i> , 2010)	As, Cd, Cu, Pb, Zn=42-52%	Flottation ¹
(Laporte-Saumure <i>et al.</i> , 2010)	Pb=80-94% ; Cu=98% ; Zn=93%	Jig + Table à secousses (TS) Jig + Spirale + TS
(Marino <i>et al.</i> , 1997)	Pb=96% ; Cu=99% ; Zn=96%	TS
(Bisone, 2012)	Pb=98% ; Cu=96% ; Zn=90%	Attrition + TS
(Benschoten <i>et al.</i> , 1997)	Cu=44-68% ; Zn=30-44%	Jig + TS
(Sierra <i>et al.</i> , 2011)	Pb=22-93%	Séparateur de Mozley
(Mercier <i>et al.</i> , 2001)	As=50% ; Pb=28% ; Zn=0% ; Sb=55%	TS
(Kyllönen <i>et al.</i> , 2004)	Pb=41-61% ; Cu=52-78% ; Zn=34-58% ; Sn=34-50%	Milieu dense + TS
(Mercier <i>et al.</i> , 2007)	Pb=91%	Spirale + Lixiviation + Isolement granulométrique

¹ La flottation est incluse malgré qu'elle soit une méthode physico-chimique.

1.1.6.3 Séparation magnétique

La susceptibilité magnétique est une propriété fondamentale des matériaux. Les minéraux du sol peuvent être classés en trois groupes distincts selon leur susceptibilité au magnétisme; ferro/ferrimagnétique, paramagnétique et diamagnétique. Les éléments ferro/ferrimagnétiques ont une susceptibilité magnétique fortement positive, les éléments paramagnétiques faiblement positive, alors que les éléments diamagnétiques ont une susceptibilité magnétique très faiblement négative. À titre d'exemple, la matière organique, le sable (quartz), et plusieurs métaux (Pb, Cu, Zn, Sn, Sb, As) sont diamagnétiques ou non magnétiques. À l'autre extrémité, les éléments fortement magnétiques ou ferri/ferromagnétiques sont le fer, le nickel, le cobalt et leurs nombreux alliages, de même que certains alliages particuliers composés d'éléments non magnétiques. Ces éléments peuvent être retirés d'un sol à l'aide d'une faible intensité magnétique. Le groupe des paramagnétiques regroupe tous les autres éléments et sels présentant des propriétés intermédiaires, nécessitant des champs magnétiques de haute intensité afin de les séparer des constituants non magnétiques. Les propriétés magnétiques des éléments sont reliées au comportement des électrons libres des atomes, lesquels s'orientent sous l'effet d'un champ magnétique. Toutefois, il peut être possible de retirer d'un sol des contaminants diamagnétiques (Rikers *et al.*, 1998a). En effet, les contaminants du sol peuvent être adsorbés ou coprécipités par les oxydes/hydroxydes de fer ou de manganèse présents dans le sol. Par ailleurs, les contaminants peuvent aussi être associés au fer sur les matériaux

d'origine comme protection contre la corrosion (Sn, Zn et Pb) ou dans les alliages métalliques. De plus, la densité de la fraction magnétique contaminée serait similaire à celle du quartz, suggérant que ces contaminants ne puissent pas être enlevés par des méthodes gravimétriques (Rikers *et al.*, 1998b). Plusieurs auteurs mentionnent également des associations entre la susceptibilité magnétique des sols et leur teneur en contaminants anthropogéniques (Lu *et al.*, 2008, Wang *et al.*, 2005, Zheng *et al.*, 2008).

1.1.6.4 Lixiviation chimique

La lixiviation chimique consiste à solubiliser les contaminants par l'utilisation de réactifs chimiques. Ces réactifs peuvent être des acides organiques ou inorganiques, des bases, des surfactants, des agents chélatants, des sels, des agents oxydants/réducteurs, des solvants organiques, des alcools, etc. Les contaminants organiques et inorganiques peuvent être extraits par ces méthodes (Mulligan *et al.*, 2001a). Bisone *et al.* (2012) ont obtenu des rendements de 30% pour l'As, 88% pour le Cu, 18% pour le Pb et 86% pour le Zn en présence d'acide sulfurique (pH <2) sur la fraction <125 µm d'un sol contaminé par des scories. Mercier *et al.* (2007) ont, pour leur part, obtenu des rendements de lixiviation à l'acide chloridrique de 57% pour le Pb, de 33% pour le Cu et de 49% pour le Zn sur des sols contaminés par des cendres d'incinération. Dans ces essais, le pH de la pulpe était instable, variant entre 1,5 et 3. Les surfactants, quant à eux, ont un mode de fonctionnement très particulier afin de mettre en solution les contaminants. En effet, les surfactants sont des molécules amphiphiles composées d'une tête polaire et hydrophile et d'une queue apolaire et lipophile. Ils peuvent être anioniques, cationiques, non ioniques ou amphotères et ont la propriété de diminuer la tension de surface des liquides (Mouton, 2008). En solution, au-delà de la concentration micellaire critique (CMC), les surfactants forment des micelles ayant la propriété de solubiliser les composés hydrophobes tels que les HAP et les hydrocarbures pétroliers. En phase aqueuse, les queues hydrophobes s'assemblent pour former des zones hydrophobes. Les surfactants peuvent aussi être utilisés pour améliorer la solubilisation des métaux (désorption ou dispersion) en présence de chélatants ou en milieu acide ou basique (Dermont *et al.*, 2008a). Des biosurfactants anioniques ont aussi été utilisés pour extraire des contaminants cationiques (Mulligan *et al.*, 2006, Mulligan *et al.*, 2001b).

1.1.6.5 Flottation

La flottation utilise les propriétés de surface des particules, plus particulièrement l'affinité des particules hydrophobes pour les bulles d'air. L'air injecté dans la pulpe de sol remonte vers la

surface en entraînant les particules hydrophobes. L'hydrophobicité des particules peut être naturelle comme c'est le cas des HAP ou encouragée par un agent collecteur. L'ajout d'un surfactant permet la formation d'une mousse dans laquelle s'accumulent les composés hydrophobes. Cette mousse est retirée par raclage de surface et permet ainsi l'élimination des composés ou particules hydrophobes. Les hydrocarbures aliphatiques et les HAP peuvent être efficacement séparés par flottation (Gosselin et al., 1999). Encore une fois, l'utilisation de surfactants pour créer la mousse est nécessaire, mais aussi afin de déloger les hydrocarbures des particules de sol. Un procédé novateur combinant la lixiviation chimique et la flottation en une seule étape a été développé afin d'extraire le plomb et les HAP présents dans un sol contaminé (Mouton, 2008, Mouton *et al.*, 2009a, Mouton *et al.*, 2010, Mouton *et al.*, 2009b) . La lixiviation du plomb est réalisée par l'utilisation d'acide sulfurique (pH = 3) et de NaCl, alors que la flottation des HAP est réalisée à l'aide de cocamidopropylhydroxysultaine (CAS). Les rendements d'extraction obtenus sont de 54% pour les deux contaminants.

1.2 Objectifs de recherche et originalité

À ce jour, peu de travaux ont porté sur les sols contaminés par les cendres d'incinération de déchets municipaux. Les chercheurs se sont tournés vers les méthodes de séparation physique, notamment le magnétisme, la concentration gravimétrique, l'isolement granulométrique, ainsi que vers la lixiviation chimique (Mercier, 2000, Mercier *et al.*, 2007). Les méthodes de séparation physique basées sur la densité des particules semblent particulièrement intéressantes en raison de leur simplicité et de leur faible coût comparativement aux méthodes chimiques. De plus, pour les fractions granulométriques visées par ces méthodes, les HAP pourraient être séparés et récupérés dans la fraction légère, permettant ainsi un traitement simultané des contaminants organiques et inorganiques (Bisone, 2012). Toutefois, la faible libération présumée des contaminants dans les résidus d'incinération rend l'efficacité de ces méthodes incertaine. Par ailleurs, la lixiviation chimique ne sera utilisée que sur la fraction fine, soit la fraction réputée la plus difficile à traiter. Afin de faire face à une éventuelle contamination mixte, la technologie de flottation/lixiviation développée par Mouton (2008) a été choisie. Par ailleurs, lorsqu'utilisée en prétraitement, l'attrition pourrait permettre d'augmenter l'efficacité des méthodes de séparation gravimétrique. Celle-ci sera explorée plus en profondeur dans le cadre de ce doctorat. L'intérêt d'utiliser le magnétisme vient évidemment des quantités importantes de fer anthropique contenu dans ces sols. Ainsi, certains contaminants aux propriétés non magnétiques pourraient quand même être séparés du sol par l'utilisation du magnétisme, de par leur association avec les composantes ferri/ferromagnétiques du sol (Rikers *et al.*, 1998a, Rikers *et al.*, 1998b). Le chevauchement avec les méthodes gravimétriques sera aussi examiné.

L'objectif de ce projet de doctorat est de mettre au point un procédé de traitement des sols pollués par des cendres d'incinération qui soit performant, robuste et compétitif par rapport aux coûts de l'enfouissement. Afin d'atteindre ces objectifs, les méthodes de séparation physique sont privilégiées en raison de leur simplicité et de leurs faibles coûts d'opération.

Les sous-objectifs de ce projet de doctorat sont donc :

- Caractériser la contamination et les interactions avec le sol, notamment par la réalisation d'une granulochimie, par des observations en microscopie électronique à balayage (MEB) et l'établissement des propriétés magnétiques et densimétriques;
- Sélectionner les méthodes de séparation les plus efficaces et optimiser leur efficacité afin d'obtenir un train de technologies capable de traiter le sol en entier;
- Déterminer les bénéfices de l'attrition comme méthode de conditionnement préalable des sols afin d'améliorer l'efficacité des méthodes de séparation par gravité;
- Expérimenter le nouveau procédé sur des sols de niveaux de contamination variables (~25 et ~50% de cendres d'incinération) afin de valider sa robustesse;
- Réaliser l'évaluation technico-économique du procédé.

L'hypothèse de cette recherche est qu'il est possible d'abaisser le niveau de contamination de sols pollués par des cendres d'incinération du critère C au critère B ou du critère B au critère A et ce, à un coût comparable à l'enfouissement sécuritaire.

L'originalité de ce projet de recherche réside notamment dans le développement d'un nouveau procédé de décontamination des sols pollués par des cendres d'incinération, sols qui ont été peu étudiés à ce jour et pour lesquels il n'existe aucun procédé commercial disponible au Québec. Le défi est de taille car les cendres d'incinération contiennent une diversité de contaminants qui sont réputés pour être peu libérés en raison du traitement à la chaleur qu'ils ont subi. Étant donné que l'applicabilité des méthodes de séparation par densité est fonction de la libération des contaminants, un conditionnement du sol sera utilisé afin d'améliorer la traitabilité du sol par ces méthodes. En effet, un conditionnement du sol par attrition préalablement aux méthodes de séparation physique a été expérimenté afin d'en comprendre précisément les causes et les impacts, ainsi que les bénéfices. L'optimisation des paramètres opératoires des appareils de séparation gravimétrique sera réalisée par le biais de séparations par un milieu dense. Cette méthode d'optimisation novatrice permet, en se basant sur les proportions massiques obtenues pour chacune des densités sélectionnées, d'établir rapidement les conditions opératoires optimales pour chaque fraction granulométrique traitée. Enfin, certaines études mentionnent une association entre les composés ferreux des sols et les contaminants, rendant possible leur traitement par l'utilisation du magnétisme. Ainsi, une caractérisation exhaustive des propriétés magnétiques et densimétriques à l'aide d'une expérience factorielle sera réalisée afin d'identifier d'éventuelles associations dans le cas précis

des sols contaminés par des cendres d'incinération. Cette caractérisation permettra par la même occasion de prédire les rendements des méthodes de séparation par densité.

Enfin, la grande majorité des études ne s'intéressent qu'au traitement des particules de sol de taille inférieure à 2 mm, alors que cette étude propose un procédé de traitement pour l'ensemble du sol. Cet aspect est primordial compte tenu que les remblais contaminés par des résidus d'incinération sont généralement composés de plus de 50% de particules de taille supérieure à 4 mm.

1.3 Démarche méthodologique

1.3.1 Échantillonnage des sols et caractérisation

Le site à l'étude se situe dans le secteur de la Pointe-aux-Lièvres, au 30, rue du Cardinal Maurice Roy (entre la rue du Cardinal-Maurice-Roy et l'autoroute Laurentienne) (Figure 1.2). Les cendres d'incinération sont présentes seules ou en mélange avec des remblais sur une épaisseur d'environ 3 m. Trois sols contaminés ont été échantillonnés à l'aide d'une pelle mécanique et transportés dans des sceaux de plastique jusqu'aux installations de recherche de l'INRS-ETE. Les trois sols comportent trois niveaux de contamination différents. Le sol 1 contient plus de 90% de cendres d'incinération, le sol 2 entre 40% et 60% de cendres d'incinération, alors que le sol 3 contient entre 20% et 30% de cendres d'incinération. Environ 160 kg du sol 1 et 80 kg des sols 2 et 3 ont été tamisés afin de séparer les fractions granulométriques suivantes et d'établir leurs proportions relatives: <0,250 mm, 0,250 - 1 mm, 1 - 2 mm, 2 - 4 mm, 4 - 12 mm 12 - 25 mm et >25 mm. Des analyses chimiques réalisées sur chaque fraction granulométrique ont permis de dresser un portrait de la nature et de la distribution des contaminants retrouvés dans ces sols. Le carbone organique, le carbone total, les pourcentages d'argile et de limon, ainsi que le pH des trois sols étudiés ont aussi été évalués. La méthodologie détaillée de cette section est présentée au [Chapitre 4](#).



Figure 1.2 Photo du site à l'étude

Les essais de sélection des traitements ont été réalisés sur le sol 1 uniquement, sol composé principalement de résidus d'incinération, afin d'évaluer et d'identifier les méthodes les plus adaptées au type de contamination en présence. Le sol 1 est considéré, selon la législation du Québec, comme une matière résiduelle et le terme sol est utilisé uniquement à des fins de simplification. Le sol 1 constitue ainsi le pire scénario rencontré sur le site en termes de contamination. Une fois le procédé établi, celui-ci a été appliqué sur les sols 2 et 3 pour en valider l'efficacité et la robustesse. Aucun objectif de décontamination n'a été fixé pour le sol 1.

1.3.2 Identification des méthodes de traitement efficaces

1.3.2.1 Fractions grossières (>4 mm)

Il existe peu d'options de traitement pour les particules de taille supérieure à 4 mm qui n'impliquent pas un concassage préalable. Le concassage réduit la taille des particules et rend ainsi possible l'utilisation d'un plus grand nombre de technologies. Toutefois, le concassage représente une étape coûteuse dans un procédé de traitement des sols. Pour cette raison, deux méthodes de traitement sans concassage, soit l'attrition et la séparation magnétique, ont été expérimentées. L'attrition, en tant que traitement, a été utilisée afin de déloger les particules fines, généralement plus contaminées, des particules plus grossières. L'attrition a été réalisée selon les conditions opératoires présentées au [Chapitre 2](#). Toutefois, ces essais se sont révélés inefficaces car l'attrition ne permettait pas de concentrer les contaminants dans la boue générée. De plus, les volumes de boue étaient très élevés en raison de la friabilité des particules grossières, soit 57% pour la fraction 4 - 12 mm, 71% pour la fraction 12 - 25 mm et 74% pour la fraction >25 mm. La séparation magnétique a donc été expérimentée afin d'exploiter l'association possible entre les contaminants et le fer contenu dans le sol. La séparation magnétique a été réalisée à l'aide d'un aimant permanent au néodyme passé à 1 cm au-dessus des particules de sol, les exposant à un champ magnétique d'une intensité d'environ 0,3 Tesla. Cette façon de faire simule le traitement réalisé par les convoyeurs magnétiques à aimants permanents utilisés à une échelle industrielle. Le détail de la méthode de séparation magnétique des fractions grossières est décrit au [Chapitre 4](#).

1.3.2.2 Fraction intermédiaire (0,250 - 4 mm)

Caractérisation magnétique et densimétrique du sol 1

Afin de sélectionner des méthodes de traitement pour un sol, il faut caractériser les propriétés que l'on veut exploiter. Pour les fractions granulométriques intermédiaires, soit entre 0,250 -

4 mm, deux méthodes de séparation physique ont été expérimentées, soit la séparation par densité et la séparation magnétique. La fraction 2 - 4 mm a été traitée soit par magnétisme grâce au passage d'un aimant permanent à 1 cm au-dessus des particules de sol, soit par densité grâce au passage dans un jig avec un conditionnement d'attrition au préalable. Les deux méthodes ont ainsi pu être comparées afin de sélectionner la plus efficace des deux pour cette fraction granulométrique. Pour les fractions 0,250 - 1 mm et 1 - 2 mm, une première caractérisation des propriétés magnétiques des particules du sol a été réalisée à huit intensités magnétiques différentes ([Tableau 3.1](#)) à l'aide d'un séparateur magnétique CARPCO à intensité variable. Une seconde caractérisation a été réalisée lors d'une expérience factorielle utilisant trois intensités magnétiques (0,08 – 0,40 et 0,70 Tesla) et trois densités (<2,40, 2,40 – 2,95 et >2,95 g cm⁻³). La séparation par densité a été réalisée à l'aide d'un milieu dense, le tétrabromoéthane ([Figure 3.2](#)). Cette expérience a permis de sélectionner la méthode de séparation la plus efficace, de même que de quantifier le chevauchement existant entre les deux méthodes de séparation. L'identification des minéraux présents dans les échantillons avant et après les séparations a été effectuée par diffractométrie des rayons X (DRX). La méthodologie complète est présentée au [Chapitre 3](#).

Attrition

L'intérêt de l'attrition comme traitement ou comme conditionnement préalablement à la séparation gravimétrique a été évalué au cours de ce projet. L'attrition peut être utilisée afin de concentrer les contaminants dans la boue générée, modifier la forme des particules ou augmenter la libération des contaminants. Les boues générées lors de l'attrition ont donc été caractérisées afin d'établir s'il est possible d'y concentrer les contaminants. Par ailleurs, des essais de séparation gravimétrique sur les fractions granulométriques de 0,250 - 4 mm ont été réalisés avec ou sans conditionnement d'attrition afin d'en valider les bénéfices. La libération des contaminants a été évaluée avant et après l'attrition par des observations au microscope électronique à balayage (MEB). La forme des particules a aussi été évaluée par l'analyse d'images prises au binoculaire optique. La méthodologie complète sur l'attrition et ses effets est présentée au [Chapitre 2](#).

Séparation gravimétrique

La séparation par gravité pour les fractions 0,250 - 1 mm et 1 - 2 mm a été réalisée sur une table à secousses de Wilfley. Les paramètres opératoires ont été obtenus lors d'essais préliminaires basés sur les proportions massiques obtenues lors de séparations basées sur la densité à l'aide du tétrabromoéthane (TBE). Les rendements obtenus par la séparation sur la

table à secousses ont été comparés à ceux obtenus par séparation à l'aide du TBE. La séparation par gravité de la fraction 2 - 4 mm a été réalisée sur un jig de laboratoire de type Denver. Les mesures de densité réelle ont été réalisées à l'aide d'un pycnomètre à gaz AccuPyc™ 1330 (Micromeritics inc). Le détail de la méthodologie est présenté au [Chapitre 4](#).

1.3.2.3 Fraction fine <0,250 mm

Des essais de traitement de la fraction inférieure à 0,250 mm ont tout d'abord été réalisés en utilisant la densité des contaminants. Les essais préliminaires ont montré que les rendements d'enlèvement du sol traité sur la table à secousses étaient trop faibles pour justifier cette méthode. Ce fait a été confirmé par les résultats de séparations avec le TBE. La technologie de flottation/lixiviation a donc été choisie pour son potentiel de traitement des composés organiques et des composés inorganiques. La méthodologie complète est décrite au [Chapitre 4](#).

1.3.3 Procédé complet de traitement

Les essais décrits plus haut ont permis la sélection des méthodes de traitement les plus efficaces et applicables dans un contexte industriel. Le procédé a donc été appliqué sur les sols 2 et 3, qui contiennent respectivement 40-60% et 20-30% de cendres d'incinération. L'objectif de traitement des sols 2 et 3 était d'abaisser les niveaux des contaminants sous le critère générique précédent. Ainsi, le sol 2, qui se situait initialement dans la plage C-D, devrait minimalement se situer dans la plage B-C après traitement. Le sol 3, qui se situait initialement dans la plage B-C, devrait se situer dans la plage A-B après traitement.

Le schéma du procédé est présenté à la [Figure 4.2](#). Il consiste en une séparation magnétique pour les fractions grossières de taille supérieure à 4 mm. Les fractions intermédiaires (0,250 - 4 mm) subissent d'abord un conditionnement d'attrition, après lequel la boue est séparée et envoyée dans la fraction contaminée. La fraction 2 - 4 mm est traitée à l'aide d'un jig. Lorsqu'une contamination organique particulière ou associée à la fraction de faible densité est aussi présente, le sol traité au jig est ensuite traité dans une colonne d'élutriation. Les fractions 0,250 - 1 mm et 1 - 2 mm sont, quant à elles, traitées sur la table à secousses. Enfin, la fraction fine du sol (<0,250 mm) est traitée par flottation/lixiviation.

1.3.4 Méthodes analytiques

Les méthodes utilisées pour la quantification des éléments inorganiques et les HAP sont décrites en détail au [Chapitre 4](#). Pour chaque traitement, un minimum de trois répétitions ont été effectuées et les analyses pour les métaux ont été réalisées en deux ou trois réplicats

d'analyse selon la variabilité du matériel. Pour les HAP, compte tenu du coût des analyses, trois répétitions ont été réalisées mais un seul réplicat d'analyse a été fait. Le contrôle de qualité des analyses impliquait l'utilisation de blancs de digestion, de blancs d'analyse, de solutions certifiées ou de standards de recouvrement, d'échantillons fortifiés (ajouts dosés) et d'un sol certifié. Par ailleurs, les bilans de masse des contaminants ont systématiquement été réalisés pour les éléments inorganiques. Un écart de +/- 20% maximum était toléré, sinon des analyses supplémentaires étaient réalisées. Afin d'y parvenir, un contrôle rigoureux de la variabilité a été réalisé lors des étapes de préparation des sols, de sous-échantillonnage et de broyage des sols. Tout d'abord, tout les contenants d'un même sol ont été homogénéisés par mélange mécanique. Par la suite, le tamisage humide de tout le volume de sol en une seule fois a aussi vraisemblablement contribué à homogénéiser le sol. Par ailleurs, chaque prélèvement de sol était réalisé afin de minimiser l'erreur de ségrégation et de sélection en utilisant des rifleurs de dimension appropriée au volume de sol à échantillonner. En effet, ces deux types d'erreurs sont particulièrement problématiques dans les sols contaminés par les cendres d'incinération, en raison de la présence de contaminants lourds sous forme particulaire. De plus, l'erreur de préparation a aussi été identifiée comme problématique lors de l'étape de broyage des échantillons à analyser. En effet, les contaminants ductiles tels que le plomb et l'étain forment des flocons lors du broyage. C'est pourquoi les échantillons broyés étaient passés sur un tamis d'environ 0,5 mm afin d'identifier la présence ou non de tels flocons. Si des flocons étaient retenus sur le tamis, le broyage était poursuivi afin de les éliminer. Parfois, la présence de grandes quantités de contaminants ductiles a rendu nécessaire la minéralisation séparée des flocons et particules retenus sur le tamis. Après analyse, la concentration des contaminants dans l'échantillon complet était reconstituée par calcul en utilisant les masses et les concentrations des deux fractions analysées séparément.

Enfin, des masses conséquentes de sols pour les fractions granulométriques de taille supérieure à 4 mm ont été échantillonnées et préalablement concassées avant d'être riflées. À titre d'exemple, des masses de près de 5 à 6 kg de la fraction >25 mm étaient nécessaires afin de générer des échantillons représentatifs de 100 g en vue de l'analyse chimique. Les masses de sol nécessaires étaient proportionnelles à la taille des particules de la fraction granulométrique car la variabilité à l'intérieur d'un échantillon augmente avec la dimension des particules qui le composent.

1.3.5 Évaluation technico-économique

Une évaluation technico-économique a été réalisée pour une capacité de traitement de 200 t.m. de sol sec par jour pour un total de 50 400 t.m. de sol sec par année (280 jours d'activité par an et 24 h par jour). Les coûts des équipements ont été obtenus par des équations mettant en relation le coût d'investissement et la capacité de traitement et actualisés par l'indice "Marshall and Swift Equipment". L'investissement total inclut les coûts directs (coûts des équipements et d'installation, de raccordement, etc), les coûts indirects (ingénierie et supervision, dépenses de construction), les frais de gestion et de contingence et le fond de roulement. Le coût du capital inclut une période d'amortissement de 10 ans à un taux d'intérêt de 5%. Un coût de main d'œuvre de 25\$ par heure a été utilisé pour six employés à temps plein. Un coût de 65\$ par tonne sèche de concentrés contaminés a été utilisé pour déterminer les coûts d'enfouissement. Les coûts suivants ont été utilisés: 0,07 US\$ kWh⁻¹ pour l'électricité, 0,5 US\$ m³ pour l'eau, 0,088 US\$ kg⁻¹ pour H₂SO₄, 0,35 US\$ kg⁻¹ pour NaOH, 1,00 US\$ kg⁻¹ pour le CAS et 7,00 US\$ kg⁻¹ pour le polymère. Un facteur d'efficacité de 90% et un facteur de sécurité sur le dimensionnement des équipements de 20% ont été utilisés. L'évaluation économique considère toutes les étapes d'un procédé industriel, même celles qui n'ont pas été réalisées dans le cadre de ce doctorat, telles que les différentes séparations solides/liquides, l'acheminement des sols entre les différentes stations de traitement, la recirculation des eaux de procédé, la précipitation des métaux, etc. La séparation solide/liquide à la sortie des équipements de séparation gravimétrique est effectuée par des tamis tangentiels.

1.3.6 Calculs

Les pourcentages d'enlèvement des contaminants sont présentés sur une base massique dans les [Chapitres 2 et 3](#) et sont calculés à partir de l'[Équation 1.1](#).

Équation 1.1

$$\% \text{ d'enlèvement massique} = 100 - \left(\frac{\text{Concentration finale (mg/kg)} * \text{Proportion massique (\%)}}{\text{Concentration initiale (mg/kg)}} \right)$$

Dans le cas des enlèvements calculés pour le procédé de traitement au [Chapitre 4](#), la méthode de calcul, dictée par le MDDELCC, est décrite à l'[Équation 1.2](#).

Équation 1.2

$$\% \text{ d'enlèvement} = \left(1 - \left(\frac{\text{Concentration finale (mg/kg)}}{\text{Concentration initiale (mg/kg)}} \right) \right) * 100$$

Les bilans de masse des contaminants sont calculés afin d'informer sur la variabilité du matériel traité, et dans une moindre mesure, sur la qualité des méthodes d'échantillonnage et d'analyse. Ils sont obtenus à partir de l'[Équation 1.3](#).

Équation 1.3

$$\text{Bilan de masse \%} = 100 * \sum \frac{\text{Concentration dans la fraction (mg/kg)} * \text{Proportion massique}}{\text{Concentration initiale (mg/kg)}}$$

1.4 Résultats et discussion

1.4.1 Caractéristiques des sols

Les trois sols traités, soit les sols 1, 2 et 3, ont été contaminés par des quantités variables de cendres d'incinération. Le sol 1 contient plus de 90% de cendres d'incinération, le sol 2 contient entre 40 et 60% et le sol 3 contient entre 20 et 30%. Le pH des trois sols est légèrement alcalin et se situe entre 8,2 et 8,3. Le carbone total varie entre 3,3% et 7,0%, alors que le carbone organique varie entre 1,9% et 5,8% (Tableau 4.1). Basé sur les proportions de sable, de limon et d'argile, les classes texturales du sol 1 et du sol 2 sont des sables, alors que le sol 3 est un loam sableux. Le pourcentage d'argile est très faible pour les trois sols avec des proportions inférieures à 1,1%. Ces sols sont classifiés comme des sols urbains ou des technosols (IUSS, 2014).

La répartition granulométrique des particules de sol montre que les fractions supérieures à 4 mm représentent des proportions importantes dans les trois sols, soit 55%, 50% et 34% respectivement (Tableau 4.2). Les contaminants inorganiques sont répartis dans toutes les fractions granulométriques du sol 1. Dans les sols 2 et 3, les fractions supérieures à 4 mm sont moins contaminées mais doivent tout de même faire l'objet d'un traitement. Enfin, les teneurs en contaminants inorganiques sont proportionnelles à la quantité de cendres présentes dans les sols. Selon la législation québécoise, le sol 1 se situe dans la plage C-D pour cinq métaux (Cu, Pb, Sb, Sn, Zn), le sol 2 dans la plage C-D pour trois métaux (Cu, Pb, Sn) et le sol 3 dans la plage B-C pour quatre métaux (Cu, Pb, Sn, Zn) ainsi que pour cinq HAP (Tableau 4.3).

Les analyses au diffractomètre à rayons X (DRX) ont montré que les principaux minéraux présents dans la fraction 0,250 - 1 mm du sol 1, par ordre d'importance, sont la calcite, le quartz, la magnétite, la goethite, l'hématite et le fer (Figure 1.3). La fraction 1 - 2 mm contient, en plus des minéraux énumérés plus haut, de l'albite ($\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$), de la microcline (KAlSi_3O_8) et de la lépidocrocite ($\text{FeO}(\text{OH})$).

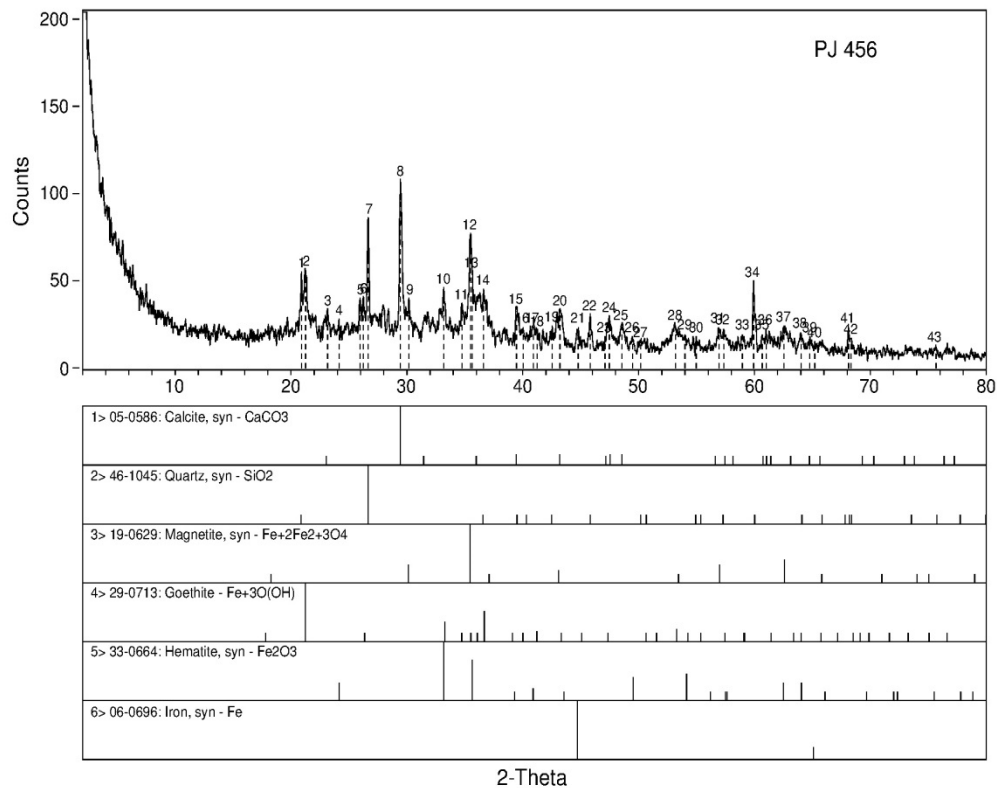


Figure 1.3 Résultats de l'analyse au diffractomètre à rayons X (DRX) réalisée sur la fraction 0,250 - 1 mm du sol 1

1.4.2 Sélection des méthodes de séparation

1.4.2.1 Fraction >4 mm

Deux méthodes de séparation ont été testées pour traiter les fractions grossières du sol, soit la séparation magnétique et l'attrition. Les résultats de la séparation magnétique, méthode qui a été retenue pour le procédé, seront discutés plus loin en détails dans la section procédé global ([Section 1.4.3](#)). Le [Tableau 1.3](#) présente une comparaison des entraînements particuliers et des enlèvements des contaminants obtenus entre le traitement d'attrition et la séparation magnétique. L'attrition des fractions grossières n'a pas été retenue en raison des plus faibles rendements d'enlèvement en général et des entraînements particuliers plus importants que ceux observés pour la séparation magnétique. L'entraînement particulier très élevé durant l'attrition est attribué à la friabilité des scories et des matériaux contenus dans ces fractions granulométriques. L'entraînement particulier découlant du traitement par magnétisme est aussi

très élevé, ce qui peut limiter l'intérêt d'utiliser cette technologie. Toutefois, dans le cas présent, il faut s'intéresser à l'entraînement particulaire du traitement global et non uniquement à une ou quelques fractions granulométriques. Par ailleurs, en plus du volume, la teneur finale en contaminants du concentré généré par le procédé revêt une grande importance dans la justification économique d'un procédé de traitement. Il faut donc aussi s'intéresser aux coûts de gestion des concentrés contaminés et non uniquement aux entraînements particuliers.

Tableau 1.3 Comparaison des entraînements particuliers (EP) et des enlèvements des contaminants obtenus pour le traitement des fractions >4 mm du sol 1 par attrition ou par séparation magnétique

Procédés/fractions	EP (%)	Arsenic (%)	Cuivre (%)	Plomb (%)	Antimoine (%)	Étain (%)	Zinc (%)
Attrition							
>25 mm	74	3	31	37	6	0	18
12-25 mm	71	43	36	67	79	66	13
4-12 mm	57	47	30	33	41	56	38
Magnétisme							
>25 mm	69	85	4	57	60	91	44
12-25 mm	52	82	50	29	61	88	43
4-12 mm	50	79	17	50	54	78	30

1.4.2.2 Fraction 2 - 4 mm

Les essais sur la fraction 2 - 4 mm ont porté sur la séparation magnétique à l'aide d'un aimant permanent et d'un traitement au jig précédé d'un traitement par attrition. La séparation magnétique n'a pas été retenue en raison des très mauvais rendements d'enlèvement obtenus pour le cuivre, le plomb, l'antimoine et le zinc (Tableau 1.4). Le magnétisme concentre plutôt trois de ces quatre contaminants dans la fraction traitée, ce qui est particulièrement indésirable. Le jig a donc été retenu pour traiter cette fraction.

Tableau 1.4 Comparaison des entraînements particuliers (EP) et des enlèvements des contaminants de la fraction 2-4 mm du sol 1 après traitement par séparation magnétique ou par attrition et jig

Procédés	EP (%)	Arsenic (%)	Cuivre (%)	Plomb (%)	Antimoine (%)	Étain (%)	Zinc (%)
Magnétisme	50	63	-18	-24	-16	64	-1
Attrition + Jig	34	26	47	35	23	30	16

1.4.2.3 Fractions 0,250 - 1 mm et 1 - 2 mm

La caractérisation magnétique et densimétrique a permis de sélectionner la méthode de séparation la plus efficace pour le traitement des fractions 0,250 - 1 mm et 1 - 2 mm. La [Figure 3.3](#) montre que seuls le Fe, l'As et le Sn peuvent être concentrés par séparation magnétique et ce, en utilisant une faible intensité magnétique. Ces intensités magnétiques (0,2 A et 0,5 A ou 0,04 et 0,08 Tesla) permettent de retirer ou de séparer les particules ayant un comportement ferro-magnétique. L'association entre le fer et l'étain est vraisemblablement due à la présence de boîtes de conserve étamées que l'on retrouvait dans les cendres d'incinération. Les observations au MEB confirment d'ailleurs que le Sn est presque systématiquement associé aux oxydes et hydroxydes de fer ([Figure 3.4](#)). Quant à l'As, la sorption et/ou la coprécipitation sur les hydroxydes ou les oxy-hydroxydes de fer est connue et présumée (Bowell, 1994). Cette affinité est d'ailleurs mise à profit dans le traitement de l'eau contaminée par l'As par des hydroxydes ou des oxy-hydroxydes de fer (Daus *et al.*, 2004). L'analyse au DRX montre que la magnétite (Fe_3O_4) est le plus important minéral ferreux présent dans les fractions 0,250 - 1 mm et 1 - 2 mm du sol 1. La magnétite étant un minéral ferromagnétique, il est donc très probable que l'As et le Sn y soit associé.

La séparation subséquente des différentes fractions magnétiques obtenues par densité a permis de démontrer qu'un chevauchement important existe entre les deux méthodes de séparation ([Tableau 3.5](#)) pour les fractions 0,250 - 1 mm et 1 - 2 mm du sol 1. Ce chevauchement important indique qu'il est préférable de sélectionner une seule des deux méthodes de séparation car dans notre cas précis, les méthodes ne sont pas complémentaires. Le [Tableau 3.5](#) montre par ailleurs que la séparation par densité est supérieure à la méthode magnétique en termes d'enlèvement des contaminants et d'entraînement particulière. C'est pourquoi, dans le procédé global, les fractions 0,250 - 1 mm et 1 - 2 mm sont traitées par densité et non par magnétisme.

1.4.2.4 Fraction <0,250 mm

Les essais réalisés sur les particules inférieures à 0,250 mm du sol 1 ont porté sur la séparation sur la table à secousses et sur la flottation/lixiviation. Le [Tableau 1.5](#) présente les entraînements particuliers et les enlèvements obtenus par la table à secousses et la flottation/lixiviation. Les rendements d'enlèvement des deux méthodes sont relativement faibles mais la flottation/lixiviation offre malgré tout des rendements d'enlèvement supérieurs à ceux obtenus avec la table à secousses. Seul le rendement d'enlèvement de Sb est plus élevé pour le traitement sur la table à secousse. Les rendements d'enlèvement du Cu et du Zn sont même négatifs, indiquant que ces deux contaminants se sont légèrement concentrés dans le sol traité lors de l'utilisation de la table à secousses. La flottation/lixiviation a donc été préférée à la table à secousses, en plus d'offrir l'opportunité de traiter les composés organiques pouvant être présents dans certains sols.

Tableau 1.5 Comparaison des entraînements particuliers et des enlèvements des contaminants obtenus après traitement sur la table à secousses ou par la flottation/lixiviation des particules inférieures à 0,250 mm

Procédés	EP (%)	Arsenic (%)	Cuivre (%)	Plomb (%)	Antimoine (%)	Étain (%)	Zinc (%)
Table à secousses	36	5	-9	1	14	5	-1
Flottation/lixiviation	24	53	15	21	2	12	32

1.4.2.5 Effet de l'attrition sur l'enlèvement des contaminants

Le [Tableau 2.1](#) montre les proportions et les enlèvements obtenus suite au traitement d'attrition. L'analyse statistique des données montre que l'attrition concentre peu les contaminants inorganiques dans la boue générée, sauf le Zn pour les fractions 1 - 2 mm et 2 - 4 mm et l'As et le Cu dans la fraction 2 - 4 mm. Ainsi, en se basant sur les rendement d'enlèvement, plus les particules attritées sont grosses, plus l'attrition permet de concentrer les contaminants dans la boue. Malgré ces résultats, il a tout de même été choisi de retirer la boue d'attrition et de la combiner au concentré contaminé. En effet, la boue d'attrition contient des proportions importantes de contaminants, variant de 26% à 41% selon les contaminants initialement présents dans la fraction 2 - 4 mm. Toutefois, des enlèvements importants sont nécessaires afin d'obtenir des différences statistiquement significatives en raison de la variabilité entre les répétitions.

Le [Tableau 2.2](#) montre les rendements d'enlèvement obtenus sur la table à secousses et le jig pour les sols attrités et non attrités. L'effet de l'attrition est significatif pour cinq des six contaminants présents dans la fraction 0,250 - 1 mm, deux des contaminants pour la fraction 1 - 2 mm et un seul contaminant pour la fraction 2 - 4 mm. Encore une fois, l'effet de l'attrition est fonction de la taille des particules traitées. Cette fois-ci toutefois, l'attrition a un effet plus marqué sur les particules les plus fines. Malgré les différences importantes observées pour les rendements d'enlèvement entre le sol attrité et le sol non attrité, l'importante variation dans les données rend difficile l'obtention de différences significatives au niveau statistique. Les effets de l'attrition sur les rendements d'enlèvement par les méthodes gravimétriques peuvent être expliqués par la modification de la forme des particules et la libération des contaminants. Le [Tableau 2.4](#) montre que l'attrition augmente significativement d'environ 3% l'indice de Ravier et le ratio de Feret, ce qui indique que l'attrition rend les particules de sol plus sphériques. Le [Tableau 2.5](#) montre que l'attrition augmente significativement de 17% le degré de libération du Pb et du Sn. La forme des particules et la libération des contaminants sont deux paramètres importants lors de la séparation gravimétrique.

Le [Tableau 2.6](#) compare les enlèvements entre la séparation sur la table à secousses et la séparation par le TBE. Bien que l'attrition améliore l'efficacité de la séparation sur la table à secousses, les rendements restent significativement inférieurs à ceux obtenus avec le TBE pour l'As, le Cu le Pb, le Fe et le Sn. Ces différences sont particulièrement importantes pour l'As (34%), le Sn (25%) et le Fe (20%). Il est logique de constater qu'un enlèvement moindre du Fe soit aussi accompagné d'un enlèvement plus faible pour l'As et le Sn car les essais sur le magnétisme ont démontré une étroite relation entre ces deux contaminants et le Fe ([Chapitre 3](#)). La différence d'efficacité entre la séparation sur la table à secousses et celle à l'aide d'un milieu dense est vraisemblablement causée par la forme des particules et par la confusion granulométrique basée sur la taille des particules.

1.4.3 Procédé global

Les résultats précédents ont permis une meilleure compréhension des méthodes physiques mises à l'essai ainsi que la sélection des méthodes plus appropriées. Le procédé global ([Figure 4.2](#)) consiste en une séparation magnétique pour les fractions grossières de taille supérieure à 4 mm. Les fractions intermédiaires (0,250 - 4 mm) subissent d'abord un conditionnement par attrition, après lequel la boue est séparée et envoyée dans la fraction contaminée. La fraction 2 - 4 mm est traitée à l'aide d'un jig. Lorsqu'une contamination organique particulière ou associée à la fraction de faible densité est aussi présente, le sol traité

au jig est ensuite traité dans une colonne d'élu-triation. Les fractions 0,250 - 1 mm et 1 - 2 mm sont, quant à elles, traitées sur la table à secousses. Enfin, la fraction fine du sol (<0,250 mm) est traitée par flottation/lixiviation.

Dans cette section sont présentés les résultats des essais de traitement par ce procédé sur trois sols de niveaux de contamination variés. Tel que mentionné précédemment, le sol 1 n'est pas un sol selon la réglementation québécoise. C'est pourquoi aucun objectif de traitement n'était visé. Les objectifs de traitement pour les sols 2 et 3 étaient d'atteindre minimalement les plages B-C et A-B, respectivement.

Le [Tableau 4.4](#) montre les entraînements particuliers ainsi que les concentrations en contaminants inorganiques après le traitement de toutes les fractions granulométriques des trois sols à l'étude. Le sol 1 se situe toujours dans la plage C-D, le sol 2 est maintenant dans la plage B-C, alors que le sol 3 est toujours dans la plage B-C. Les entraînements particuliers pour le procédé global sont respectivement de 46%, 30% et 25% pour les sols 1, 2 et 3. Les concentrations finales de Cu et de Sn dans le sol 3 sont toujours trop élevées pour que ce sol atteigne la plage A-B. Le Cu et le Sn sont trop élevés de 165% et de 256% respectivement par rapport aux critères B qui sont de 100 mg Cu kg⁻¹ et 50 mg Sn kg⁻¹ de sol. Ces critères sont particulièrement faibles compte tenu de la toxicité de ces deux éléments, en comparaison du plomb, par exemple. Ces deux contaminants sont donc les plus problématiques lors du traitement de sols contaminés par les cendres d'incinération.

Le [Tableau 4.5](#) montre les rendements d'enlèvement pour chaque méthode de séparation utilisée dans le procédé. Les données montrent que la séparation magnétique a un rendement d'enlèvement supérieur à celui du procédé global en général, et ce, avec un entraînement particulière en deçà du procédé global pour les sols 2 et 3. La séparation par gravité a un rendement d'enlèvement intermédiaire entre la séparation magnétique et la lixiviation/flottation. Enfin, la lixiviation/flottation est la méthode de séparation qui a les rendements d'enlèvement les plus faibles. Un aspect intéressant qui ressort du [Tableau 4.5](#) est que les rendements du procédé global sont inversement proportionnels à la contamination initiale. En effet, les rendements d'enlèvement pour les cinq contaminants présentés sont plus élevés pour le sol 3, sol qui est le moins contaminé au départ, alors que les rendements d'enlèvement sont plus faibles pour le sol 1, sol le plus contaminé initialement.

Le [Tableau 4.6](#) montre une alternative au procédé global afin d'atteindre l'objectif de traitement pour le sol 3. Ainsi, la séparation des fractions 0,250 - 4 mm par le TBE, ainsi que l'isolement granulométrique de la fraction <0,250 mm, ont permis d'atteindre la plage A-B. Ces deux

modifications au procédé permettent d'atteindre des teneurs en Cu et Sn tout juste sous les critères B. Évidemment, l'entraînement particulaire est augmenté de 30% à 42% mais cela permet de retourner 58% du sol sur le site, au lieu d'envoyer à l'enfouissement la totalité du sol. L'isolement granulométrique est souvent proposé dans les procédés utilisant les méthodes physiques car les particules les plus fines du sol sont souvent plus difficiles et plus coûteuses à traiter. Enfin, les rendements supérieurs obtenus par l'utilisation d'un milieu dense permettent d'être optimiste sur la possibilité d'utiliser des milieux denses dans le traitement des sols contaminés. En effet, les suspensions de magnétite et de ferrosilicone sont couramment utilisées dans l'industrie minérale afin de réaliser des séparations basées sur la densité. Ces mêmes méthodes pourraient être appliquées au traitement des sols contaminés. Toutefois, des essais devraient être conduits afin d'identifier les limitations techniques et l'intérêt économique d'un tel procédé à grande échelle.

Le [Tableau 4.3](#) montre les teneurs initiales et finales des cinq HAP problématiques présents dans le sol 3. Les teneurs initiales en HAP, qui se situent dans la plage B-C, ont été diminuées pour finalement se retrouver dans la plage A-B. Le traitement des fractions granulométriques entre 0,250 et 4 mm a le plus contribué à réduire la teneur finale du sol en ces 5 HAP. La somme des teneurs des 27 HAP analysés est passée de 27 mg kg⁻¹ à 10 mg kg⁻¹, une réduction de près de 64%. Il est par ailleurs pertinent de rappeler que l'utilisation de la table à secousses a permis de traiter en un seul passage autant les contaminants organiques que les contaminants inorganiques, alors que le sol traité au jig a, par la suite, été traité sur la colonne d'éluatriation. La séparation par densité est donc possible pour les HAP présents sous forme particulaire. Une séparation des HAP basée sur la densité serait aussi possible lorsque le contaminant organique est associé à la matière organique par exemple.

1.4.4 Analyse économique

Le [Tableau 4.7](#) présente les coûts associés à l'application du procédé global pour les sols 2 et 3. Étant donné que l'étape de flottation/lixiviation n'apporte pas de valeur ajoutée au traitement proposé, cette étape n'est pas incluse dans l'estimation des coûts présentée au [Tableau 4.7](#). En effet, l'étape de flottation/lixiviation ne contribue pas à l'atteinte des objectifs de décontamination et ce, pour les deux sols étudiés. Les coûts estimés sont donc de 81\$ par tonne sèche pour le traitement du sol 2 et de 88\$ par tonne sèche pour le traitement du sol 3. Ces estimés se situent dans le bas des intervalles de prix proposés par Bisone *et al.* (2013) (70\$ - 187\$ par tonne) et par Mulligan *et al.* (2001a) (60\$ - 245\$ par tonne) pour le traitement de sols contaminés par des procédés de séparation physique. L'élément de coûts ayant le plus

grand impact est la gestion des concentrés contaminés séparés durant le traitement. Ils représentent 41% et 45% du coût du procédé pour les sols 2 et 3, respectivement. Par ailleurs, la différence qui existe entre le traitement des sols 2 et 3 peut être expliquée par la proportion plus grande de sol traité par magnétisme que par séparation gravimétrique pour le sol 2. En effet, la séparation magnétique est l'étape la moins coûteuse du procédé. De plus, la gestion des concentrés contaminés est plus coûteuse pour le sol 3 en raison de sa masse humide plus élevée. En effet, bien que les masses sèches des concentrés contaminés soient similaires (39% et 40% du sol total), le concentré du sol 3 a une granulométrie plus fine que le sol 2, et donc une teneur en eau plus élevée à la sortie du procédé de traitement. Les autres éléments contribuant de façon importante aux coûts du procédé sont les coûts de main d'œuvre et de supervision, le coût du capital et l'énergie. Par ailleurs, malgré qu'elle ne soit pas incluse dans l'estimation du coût du procédé, il a été estimé que l'étape de flottation/lixiviation augmenterait d'environ 18\$ par tonne le coût du procédé.

Enfin, le coût de la gestion des sols par enfouissement est estimé entre 100\$ et 150\$ par tonne, en assumant un coût du matériel de remplacement (<A) d'environ 13\$ par tonne livrée et tassée et un coût pour l'enfouissement sécuritaire entre 50\$ et 75\$ par tonne. Les autres coûts comprennent le transport jusqu'au centre d'enfouissement et les frais de gestion environnementale. Ainsi, le procédé global démontre le potentiel d'être compétitif avec les coûts de l'enfouissement sécuritaire.

1.5 Conclusion

Les travaux réalisés dans le cadre de cette thèse visaient à sélectionner des méthodes de séparation permettant de traiter des sols contaminés par des cendres d'incinération de déchets municipaux. Les trois sols utilisés contenaient des proportions variables de cendres d'incinération et six contaminants inorganiques problématiques. L'un des sols contenait aussi des HAP. Le procédé obtenu a permis le traitement de toutes les fractions granulométriques du sol.

Les essais de sélection ont permis d'identifier les meilleures méthodes de séparation pour chacune des fractions granulométriques. La séparation magnétique a été retenue pour les fractions grossières supérieures à 4 mm. Le jig et une séparation sur colonne d'élutriation (étape facultative lorsque des HAP particuliers sont présents) ont été retenus pour traiter la fraction de 2 - 4 mm. La caractérisation magnétique et densimétrique a permis de conclure que les méthodes de séparation par densité sont plus appropriées pour les fractions 0,250 - 1 mm et 1 - 2 mm. En effet, le magnétisme est particulièrement efficace pour séparer l'As et le Sn mais il l'est beaucoup moins pour les autres contaminants inorganiques. De plus, la séparation par densité offre aussi le bénéfice de séparer les HAP présents dans le sol. La table à secousses a donc été sélectionnée pour le traitement de ces fractions. Enfin, la flottation/lixiviation a été retenue pour le traitement des particules les plus fines du sol (<0,250 mm).

Les essais sur l'attrition ont montré que celle-ci permettait d'augmenter les rendements d'enlèvement des méthodes gravimétriques. L'étude de la libération des contaminants au MEB et la quantification de la forme des particules ont permis de conclure que l'attrition augmente la sphéricité des particules et la libération du Pb et du Sn. L'attrition comme conditionnement du sol préalablement à la séparation gravimétrique a donc été retenue pour les fractions 0,250 - 1 mm, 1 - 2 mm et 2 - 4 mm.

Le procédé, développé sur le sol 1, a permis d'abaisser les teneurs en contaminants inorganiques du sol 2, initialement au-dessus du critère C, sous le critère C. Les teneurs en contaminants du sol 3, initialement au-dessus du critère B, autant pour les contaminants inorganiques que pour les contaminants organiques, n'ont toutefois pas pu être abaissées sous le critère B. L'isolement granulométrique de la fraction fine inférieure à 0,250 mm, de même que l'utilisation d'une séparation par un milieu dense au lieu de l'utilisation de la séparation par gravité, ont dû être utilisés afin de diminuer les teneurs en Cu et Sn du sol 3 sous le critère B.

Le coût total du procédé incluant les coûts directs et indirects varie entre 81\$ et 88\$ la tonne, selon les teneurs initiales en contaminants et les volumes de sol à enfouir.

Traitement des sols pollués par les cendres d'incinération de déchets municipaux

PARTIE 2 : ARTICLES

2 CHAPITRE II

Understanding the effect of attrition scrubbing on the efficiency of gravity separation of six inorganic contaminants

Effets de l'attrition sur l'efficacité de separation par gravité de six contaminants inorganiques

Revue : Water Air & Soil pollution

Soumis le 23 septembre 2014, accepté le 26 février 2015, publié le 29 avril 2015

Auteurs

Philippe Jobin étudiant au doctorat, Institut national de la recherche scientifique (Centre Eau, Terre et Environnement), Université du Québec, 490 rue de la Couronne, Québec, Qc, Canada, G1K 9A9, tel: (418) 654-4677, Fax: (418) 654-2600, email: philippe.jobin@ete.inrs.ca

Guy Mercier Professeur, Institut national de la recherche scientifique (Centre Eau, Terre et Environnement), Université du Québec, 490 rue de la Couronne, Québec, Qc, Canada, G1K 9A9, tel: (418) 654-2633, Fax: (418) 654-2600, email: guy.mercier@ete.inrs.ca

Jean-Francois Blais Professeur, Institut national de la recherche scientifique (Centre Eau, Terre et Environnement), Université du Québec, 490 rue de la Couronne, Québec, Qc, Canada, G1K 9A9, tel: (418) 654-2575, Fax: (418) 654-2600, email: blaisjf@ete.inrs.ca

Vincent Taillard Chargé de projet, Tecosol inc, 159, rue Caouette Ouest, Thetford Mines, QC, Canada, G6G 7M6, tel : (418) 654-3787, email : v.taillard@tecosol.com

Note

L'étudiant est le premier auteur de cet article. Toute les manipulations, la rédaction, ainsi que le traitement des données ont été réalisés par l'étudiant en tenant compte des commentaires des autres auteurs.

Modifications exigées par le comité de lecture de la revue

L'article a été accepté avec des modifications mineures. Les commentairess les plus significatifs demandaient d'inclure une meilleure description du site échantillonné et les propriétés du sol utilisées tels le carbone total et le carbone organique, ainsi que l'estimation du coût de l'attrition en lien avec les bénéfices qu'elle procure.

2.1 Résumé

Les méthodes de séparation physique sont généralement préférées aux méthodes de séparation chimique. Toutefois, leur efficacité n'est pas toujours suffisamment élevée pour atteindre les objectifs de traitement des sols contaminés. L'attrition peut être utilisée afin d'augmenter l'efficacité des méthodes de séparation physique. L'objectif de cette étude était de démontrer l'intérêt de l'attrition utilisée en conditionnement afin d'augmenter l'efficacité des méthodes de séparation par gravité, ainsi que de comprendre les effets en cause. Trois fractions granulométriques (0,250-1 mm, 1-2 mm and 2-4 mm) d'un sol contaminé par six éléments inorganiques ont été attritées préalablement à une séparation par gravité (table à secousse ou jig). Les proportions et les teneurs en contaminants des boues d'attrition ainsi que des fractions obtenues de la séparation par gravité ont été caractérisées. Une séparation par milieu dense a été réalisée afin de prédire et d'optimiser les rendements d'enlèvement des méthodes de séparation par gravité. La forme des particules et le degré de libération des contaminants ont été caractérisés par l'analyse d'image pour la fraction 0,250-1 mm. L'attrition a significativement augmenté l'efficacité de la séparation par gravité pour cinq des six contaminants de la fraction 0,250-1 mm, allant de 5% pour le Zn à 16% pour le Cu. Toutefois, l'attrition a eu un impact plus modeste sur les deux fractions plus grossières. L'attrition a significativement augmenté la spécificité des particules d'environ 3% et significativement réduit la taille des particules de la fraction 0,250-1 mm. L'attrition a aussi augmenté la libération du Pb et du Sn (combinés) de 17% pour cette même fraction. Enfin, malgré l'amélioration de l'efficacité des méthodes de séparation par gravité suite à l'utilisation de l'attrition, l'efficacité de ces méthodes est toujours passablement inférieure à celle obtenue avec le milieu dense. Les différences vont de 7% à 34% pour le Zn et le As pour la fraction 0.250-1 mm et de 0% à 29% pour le Pb et le As pour la fraction 1-2 mm. Cette étude suggère que les effets de l'attrition sont dépendant de la taille des particules traitées.

Mots clés : décontamination des sols, contaminants inorganiques, attrition, forme des particules, séparation par gravité, milieu dense

2.2 Abstract

Physical separation methods are normally preferred over chemical methods, but their efficiency often fails to meet the remediation targets for various reasons. Attrition scrubbing could possibly be used to improve their effectiveness. The aim of this study was to demonstrate the usefulness of attrition scrubbing prior to a gravity separation technique and to understand the mode of action involved. Contaminated soil divided into three fractions (0.250-1 mm, 1-2 mm and 2-4 mm) and containing six inorganic contaminants was submitted to attrition scrubbing prior to a gravity separation method (shaking table or jig). The proportions and contaminant contents of attrition sludges and separation products were characterized. A dense media separation was realized to predict the efficiency of gravity separation. The shape of particles and the liberation of contaminants for the 0.250- to 1-mm soil fraction were characterized from image analysis. Attrition significantly improved the gravity separation efficiency for five out of six contaminants from the soil fraction 0.250-1 mm, ranging from 5% for Zn to 16% for Cu. However, attrition moderately impacted the gravity separation efficiency of contaminants for coarser soil fractions. Attrition significantly improved the sphericity of particles from the 0.250- to 1-mm fraction of 3% and significantly reduced their size. The liberation of contaminants was also increased for Pb and Sn together from 17% for the same soil fraction. However, despite the attrition scrubbing treatment, differences in the removal efficiencies between the dense media separation and the gravity separation remain important for most of the contaminants. The differences are from 7% to 34% for Zn and As for the 0.250-1 mm soil fraction and from 0% to 29% for Pb and As for the 1-2 mm soil fraction. This study suggests that the attrition scrubbing effects and mode of action depend on the size of particles.

Keywords: soil remediation, inorganic contaminant, attrition scrubbing, shape of particles, gravity separation, dense media separation

2.3 Introduction

Human activities, such as agriculture, improper waste disposal or industrial activities, pollute or contaminate soils with various organic and/or inorganic chemicals. Inorganic contaminations are usually treated using physical separation methods, which are commonly encountered in the mineral processing industry (Blais *et al.*, 2010). Physical separation methods are normally preferred over chemical methods because of their low cost and simplicity (Mercier *et al.*, 2001). However, physical separation methods sometimes fail to meet the remediation target for various reasons (Rikers *et al.*, 1998a). Attrition scrubbing can be used as a physical decontamination treatment in itself (Bayley *et al.*, 2005, Bisone *et al.*, 2013, Strazisar *et al.*, 1999), as well as a step prior to gravity separation methods. Attrition scrubbing can improve the efficiency of gravity separation methods, such as hydro-classification (Williford *et al.*, 1999) or shaking table (Bisone, 2012, Marino *et al.*, 1997). Mercier *et al.* (2001) showed that attrition scrubbing has no clear effect prior to a dense media separation, and the efficiency depended on the soil origins and type of inorganic contaminants. Attrition creates frictions and collisions between particles themselves, the impeller, the attrition cell walls and the deflectors, causing abrasion, scrubbing, scouring and particle disintegration (Jiang *et al.*, 2009). These effects can result in 1) the removal of coating and films surrounding soil particles as well as the disintegration of agglomerated particles (Marino *et al.*, 1997, Strazisar *et al.*, 1999), generating fine particles called attrition sludge. Contaminants may concentrate in this sludge. Attrition scrubbing can also 2) increase the liberation of contaminants by breaking and separating agglomerated particles into clean and contaminated particles (Bunge *et al.*, 1995). Finally, attrition can 3) modify the shape of particles. Particle shape, as well as the size and density, affect the gravity separation efficiency (Grobler *et al.*, 2011, Marino *et al.*, 1997).

Jigs and shaking tables are common gravity separation apparatus used to separate particles based on their density as well as their size and shape (Iskandar, 2001). A Wilfley table is a type of wet shaking table that separates particles based on the principle of hindered settling and asymmetrical acceleration in an inclined flowing film of water (Gosselin *et al.*, 1999). A jig consists of a tank filled with soil and a layer of small balls at the bottom that create a density barrier. The constant upward and downward water pulses fluidize the bed of balls and soil particles to facilitate density separation on the principle of hindered settling (Laporte-Saumure *et al.*, 2010, Wills, 1992). However, density misclassification caused by the size and shape of the particles and the low degree of liberation of the contaminants can lead to an important loss in the efficiency of the separation process. The misclassifications can be reduced

by narrowing the feed size interval of the treated soil (Manser *et al.*, 1991). Conditioning with attrition scrubbing can also modify the shape of the particles and the degree of liberation of the contaminants to increase the efficiency of the gravity separation. Marino *et al.* (1997) and Williford *et al.* (1999) increased the gravity separation efficiency when conditioning contaminated soil with attrition scrubbing.

Dense media separation is often used to predict the efficiency of gravity separation methods (Duchesne *et al.*, 2003, Mercier *et al.*, 2001). It is also used in the mineral industry to recover indicator minerals (McClenaghan, 2011). Dense media separation allows a separation based on the density only, without taking into account the effect of the size and the shape of the particles. It is considered the perfect density separation method.

The objective of this study was to evaluate the use of attrition scrubbing as a conditioning treatment prior to a gravity separation method and identify the associated mechanisms. The gravity separation efficiencies for both attrited and non-attrited soil fractions will be compared to the separation efficiency obtained from a dense media separation.

2.4 Material and Methods

2.4.1 Soil sampling

Soil polluted by Municipal Solid Waste (MSW) incinerator bottom ash that contained arsenic (As), copper (Cu), lead (Pb), antimony (Sb), tin (Sn) and zinc (Zn) was collected from a brownfield located in Québec City (Québec, Canada). Over 160 kg of soil were excavated using a backhoe-loader from a single trench at a depth of 0.3 m to 1 m and transported to the research facility in plastic containers. The soil was wet sieved using a mechanical 76 cm diameter Sweco™ to characterize the granulometric distribution and isolate the three soil fractions (0.250-1 mm; 1-2 mm; 2-4 mm) used in these experiments. The initial inorganic contaminant contents were characterized by randomly collecting six samples of approximately 100 g from each fraction during the sieving operation.

2.4.2 Attrition treatment

A 10-L attrition cell equipped with three deflectors and a Lightnin™ attrition scrubber (EV1P25 model) was used to treat three batches of 1.5 kg from each soil fraction. Tap water was added to the soil to produce a 30% solid slurry (w/w). The mixing speed was set to 1,500 rpm, and the attrition time was 10 min. After the attrition treatment, the sludge composed of the fine particles (below 0.250 mm for the 0.250-1 mm fraction, below 1 mm for the 1-2 mm fraction and below 2 mm for the 2-4 mm fraction) was separated by wet sieving from the soil. The resulting sludges and attrited soils were dried at 65°C and weighed to determine their mass proportions. The granulometric distribution of the attrition sludge from the 0.250-1 mm soil fraction was measured with a Mastersizer laser granulometer (Malvern inc, Orsay, France). Six representative samples of approximately 100 g were collected using a laboratory splitter (Sepor inc, Wilmington, CA) to characterize the metal contents of both the attrited soil and attrition sludge for the three soil fractions.

2.4.3 Gravity separation

The 0.250-1 mm and the 1-2 mm soil fractions were gravity separated on a Wilfley™ table from Outokumpu Technology equipped with a 13A-SA model table deck that was 1.02 m long and 0.46 m wide. The adjustable parameters for treating the 0.250-1 mm soil fraction were set to 500 strokes per minute, a table desk tilt of 11° and primary and secondary water flows set of 4 L.min⁻¹. The strokes and the tilt to treat the 1-2 mm soil fraction were the same, but both water

flows were set to $5 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$. Dry soil samples were fed with a Fritsh vibratory feeder (Laborette 24 model) at a rate of 100 g per minute. Six samples (replicates) of 300 g of non-atrited and attrited soil were randomly treated on the shaking table and separated into three products: tailing (low density), middling (intermediate density) and concentrate (high density). For the attrited samples, the sludge was separated before the gravity separation and thus was not treated with the soil. The adjustable parameters of the shaking table had been determined during preliminary trials and were based on the soil mass proportion obtained from a dense media separation. Indeed, dense media separation allows separation based on the density of the particles only and was used to predict the efficiency of the gravity separation. Tetrabromoethane (TBE) was used as a dense medium to separate soil particles at a density of 2.95. Ethanol was used to dilute TBE and obtain a TBE/ethanol solution of density of 2.40 for a second separation. Soil samples of approximately 80 g were mixed in a decantation flask with approximately 200 mL of TBE. A time of approximately 8-12 h was sufficient to separate the soil particles according to their density. Heavy or settled soil particles were first collected from the bottom of the decantation flask on a funnel with a 25- μm porosity paper filter. The soil was allowed to drain to remove the excess TBE. The light or floating soil fraction was left inside the decantation flask for a second separation with TBE/ethanol solution (density = 2.40). The density of the TBE/ethanol solution was verified and corrected between each separation batch because of the ethanol volatility, despite the use of stoppers to reduce this effect. The collected soil fractions were rinsed with ethanol and dried at 65°C for five days to volatilize the residual ethanol and TBE, which would cause weight and density measurement errors. Hence, the dense media separation generated three separation products from the original soil sample: concentrate (density >2.95), middling (density 2.40-2.95) and tailing (density <2.40).

The 2-4 mm soil fraction was gravity separated on a laboratory jig. The separation chamber had a total volume of 140 cm^3 , and the volume of balls/total volume ratio was 0.15. The balls were made of silicon nitride (Si_3N_4) with a diameter of 5.6 mm and a density of 3.2. A water flow of $2.2 \text{ L}\cdot\text{min}^{-1}$ was used. Dry soil samples were fed with a Fritsh vibratory feeder (Laborette 24 model) at a rate of 50 g per minute. Six 150-g samples (replicates) of non-atrited and attrited soils were randomly treated on the jig and separated into two products: treated soil (low and intermediate density) and concentrate (higher density). The adjustable parameters of the jig were obtained from preliminary trials. Dense media separation was not performed on this soil fraction. Each generated product was collected, dried at 65°C and weighed. Representative samples of approximately 100 g or less were obtained using a laboratory splitter for inorganic

analysis. The density of all generated separation products was measured using an AccuPyc™ 1330 gas pycnometer (Micromeritics inc, Norcross, GA).

2.4.4 Particle shape analysis

The shape of the particles is an important parameter when treating soil with gravity separation methods. A high-density particle can be misclassified because of a flat shape or a low sphericity, decreasing the effectiveness of the treatment. Two shape factors were selected to characterize the shape of the particles from the 0.250-1 mm soil fraction, the Ravier shape factor and the aspect ratio. The Ravier shape (Ψ_R) factor (Ravier, 1988) is defined as the ratio of the surface area of a particle (A) to the surface area of the circle obtained from the maximum Feret diameter (Feret_{\max}):

Equation 2.1

$$\Psi_R = A / (\pi (\text{Feret}_{\max})^2 / 4)$$

The maximum Feret diameter can be defined as the maximum distance between two parallel planes restricting an object perpendicular to that direction. It is also called the caliper diameter. The aspect ratio (Ψ_A) is a very common shape factor and was calculated from the ratio of the minimum Feret diameter to the maximum Feret diameter.

Equation 2.2

$$\Psi_A = \text{Feret}_{\min} / \text{Feret}_{\max}$$

Both shape factors have values between 0 and 1 and are independent of the particles size. Both shape factors of a perfect circle are equal to 1.

Representative random samples of 2 g of attrited and non-attrited soil particles (0.250-1 mm) were sprinkled over a layer of partly set epoxy glue, allowing the particles to remain in the exact same position as when they touched the glue. This procedure prevents large and flat particles from systematically sitting on their flat side and allows a valid 2 dimensions particle shape analysis. Numerical pictures (AxioCam HRc Zeiss) of particles were taken under an optic binocular microscope (Leica Wild M10) with 10x magnification, and the images were processed with ImageJ 1.47t freeware (National Institutes of Health, USA). The images were scaled to convert the pixels into millimeters. The images were segmented using the thresholding method, and the surface area, maximum Feret diameter and minimum Feret diameter were software calculated. Data from the particles touching the others or the edge of the image were rejected. An example of a numerical picture and subsequent image processing is presented in Figure 2.1. The perimeters measured with this method were not accurate. Hence, the perimeter values were discarded, and the selected two shape factors did not include the perimeter of the particles in their calculation.

The number of particles analyzed was important (attrited soil = 629 and non-attrited soil 728), as we wanted to infer the results from the sampled particles to the entire population of particles before and after attrition. The particle sample size, n , was calculated from Cochran 's equation for continuous data and a large population (Cochran, 1977):

Equation 2.3

$$n = (t^2 \times s^2) / d^2$$

where t is the confidence interval (95% = 1.96), s^2 is the variance of the particles for the Ravier shape factor measured from preliminary analysis (0.147) and d is the margin of error (0.05). We obtained a sample size equal to or greater than 225 particles to characterize each population of attrited and non-attrited soil particles. Because a greater number of soil particles have been analyzed, our confidence interval and margin of error are met, and we assumed the samples were representative (Bartlett *et al.*, 2001).

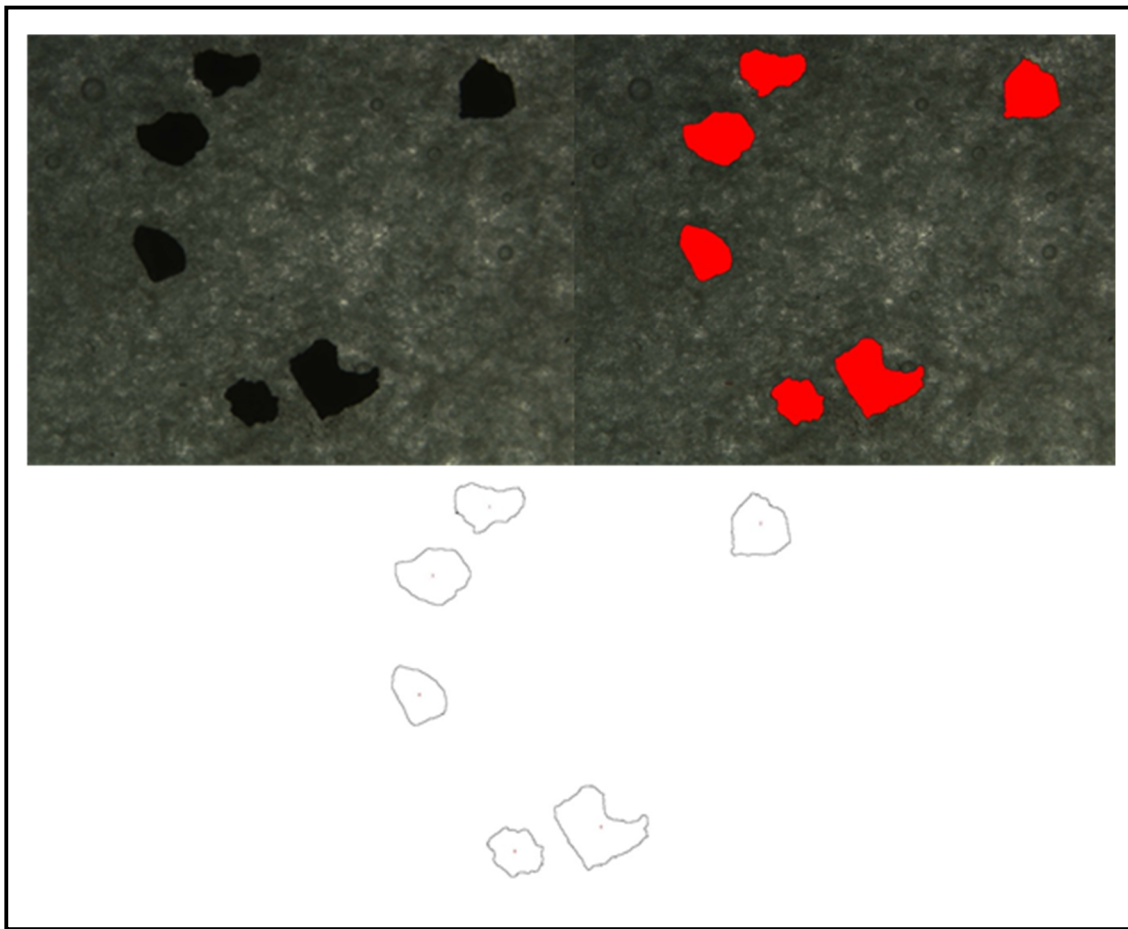


Figure 2.1 Numerical picture of non-atrited soil particles (0.250-1 mm) under binocular (10x) and subsequent image analysis with ImageJ freeware

2.4.5 Scanning electron microscope analysis

The composition and morphology of attrited and non-attrited soil particles from the 0.250-1 mm soil fraction were studied using a Scanning Electron Microscope (SEM, Carl Zeiss EVO[®] 50) equipped with an X-ray energy dispersion spectrometer (EDS, Oxford Instrument, INCAx-sight EDS). The polished thin sections (26 x 46 mm) of soil were coated with gold with a SPI[™] sputter coater module. The soil particle images were generated with a Quadra-Pole Backscatter detector at 20 kV accelerating voltage and a current beam of 100 μ A. Particles bearing contaminants (Pb and Sn only) were spotted and analyzed with EDS to confirm the presence of the contaminants. The liberation of the contaminants (%) was determined from the ratio of the surface occupied by the contaminant to the total surface of the particle. The maximum Feret diameter was also measured for each particle bearing contaminants using ImageJ 1.47t freeware (National Institutes of Health, USA).

2.4.6 Chemical analysis

The soil samples were milled with a Fritsh ball mill (Pulverisette 6 model) using a tungsten bowl and balls. A mass of 0.5 g was digested in duplicate (sub-samples) following the official method (MA. 205 – Mét/P 1.0) of the Québec government using HCl and HNO₃ at 90 °C (CEAEQ, 2003). Field blanks and reference certified soil samples (CNS392-50G) were also digested. The inorganic contaminant concentrations were measured with ICP-AES (Varian, Mississauga, ON, Canada), and the analytical results were controlled with certified laboratory control samples (PlasmaCal 900-Q3-100S, SCP Science, Montréal, QC, Canada), laboratory fortified matrix and repeated laboratory blanks.

2.4.7 Statistical analysis and calculations

Two means were compared using a bilateral independent Student's T test assuming unequal variances (JMP9, SAS Institute). Differences between two means were considered significantly different for probability (p) values ≤ 0.05 .

The contaminant removal percentage values are presented on a mass balance basis and calculated from the following equation:

Equation 2.4

$$\text{Removal (\%)} = 100 - \left(\frac{\text{Final contaminant conc. (mg.kg}^{-1}\text{)} * \text{Soil mass proportion (\%)}}{\text{Initial contaminant conc. (mg.kg}^{-1}\text{)}} \right)$$

Mass balance percentages are presented to provide information about the contamination variability and to a much lesser extent, the sampling method and analysis quality. The mass balance percentages were calculated from the following equation:

Equation 2.5

$$\text{Mass balance (\%)} = \sum \frac{\text{Fraction contaminant conc. (mg.kg}^{-1}\text{)} * \text{Fraction mass proportion (\%)}}{\text{Initial contaminant conc. (mg.kg}^{-1}\text{)}}$$

The fractions correspond to the separation products, such as the tailings, middlings and concentrates of the attrited soil and attrition sludge.

2.5 Results and Discussion

2.5.1 Attrition

The attrition treatment produced a sludge that represented 7% of the total soil mass for the 0.250-1 mm fraction, 10% for the 1-2 mm fraction and 20% for the 2-4 mm fraction (Table 2.1). The amount of sludge generated from the attrition treatment positively correlated with the size of particles. The attrition treatment did not significantly reduce the concentrations of contaminants in the 0.250-1 mm soil fraction. However, the concentration of Zn was significantly lowered after attrition in the 1-2 mm soil fraction, while the concentrations of As, Cu and Zn were significantly reduced after attrition in the 2-4 mm soil fraction. These results showed that the effect of attrition depends on the size of soil particles. These results also showed that attrition treatment did not concentrate contaminants into the attrition sludge for the 0.250-1 mm soil fraction, supporting the idea that contaminants are not present in the coating or films surrounding the soil particles. However, increasing the particle size facilitates the concentration of some of the contaminants, principally from the 2-4 mm soil fraction. This effect was associated with an increase in the sludge volume generated from the attrition and could be explained by the breaking and disintegration of agglomerated particles becoming more important during the attrition of coarser soil fractions, resulting in larger volumes of sludge that contain more contaminants. Figure 2.2 shows the granulometric distribution of the attrition sludge from the 0.250-1 mm soil fraction. The particle mean diameter was 42 μm , and 90% of particles were smaller than 112 μm .

Table 2.1 Contaminant concentrations (mg/kg) for initial soil, attrited soil and attrition sludge for the three soil fractions

0.250-1 mm	Soil mass %	As	Cu	Pb	Sb	Sn	Zn
Initial soil	100	49	1 530	5 002	70	1 234	3 500
Attrited soil	93	47	1 637	5 085	73	1 292	3 211
Attrition sludge	7	79	2 940	6 482	85	1 851	7 236
¹ Removal %		10%	1%	6%	3%	3%	15%
Mass balance %		101%	113%	104%	105%	108%	100%
¹ P value		0.72	0.60	0.94	0.79	0.65	0.25
1-2 mm	Soil mass %	As	Cu	Pb	Sb	Sn	Zn
Initial soil	100	45	1 854	5 540	90	1 313	2 915
Attrited soil	90	43	2 053	5 893	95	1 330	2 533
Attrition sludge	10	87	3 042	5 987	84	1 939	6 495
¹ Removal %		15%	1%	5%	5%	9%	22%
Mass balance %		105%	116%	107%	105%	106%	101%
¹ P value		0.20	0.52	0.24	0.54	0.86	0.03
2-4 mm	Soil mass %	As	Cu	Pb	Sb	Sn	Zn
Initial soil	100	46	2 444	2 925	46	949	2 518
Attrited soil	80	35	1 791	2 716	39	835	2 059
Attrition sludge	20	80	2 735	4 140	62	1 808	4 612
¹ Removal %		39%	41%	26%	33%	30%	35%
Mass balance %		96%	81%	103%	94%	109%	102%
¹ P value		<0.01	<0.01	0.71	0.41	0.34	0.04

¹Probability values from a bilateral Student's T test calculated on the initial soil (n=6) and the attrited soil (n=6).

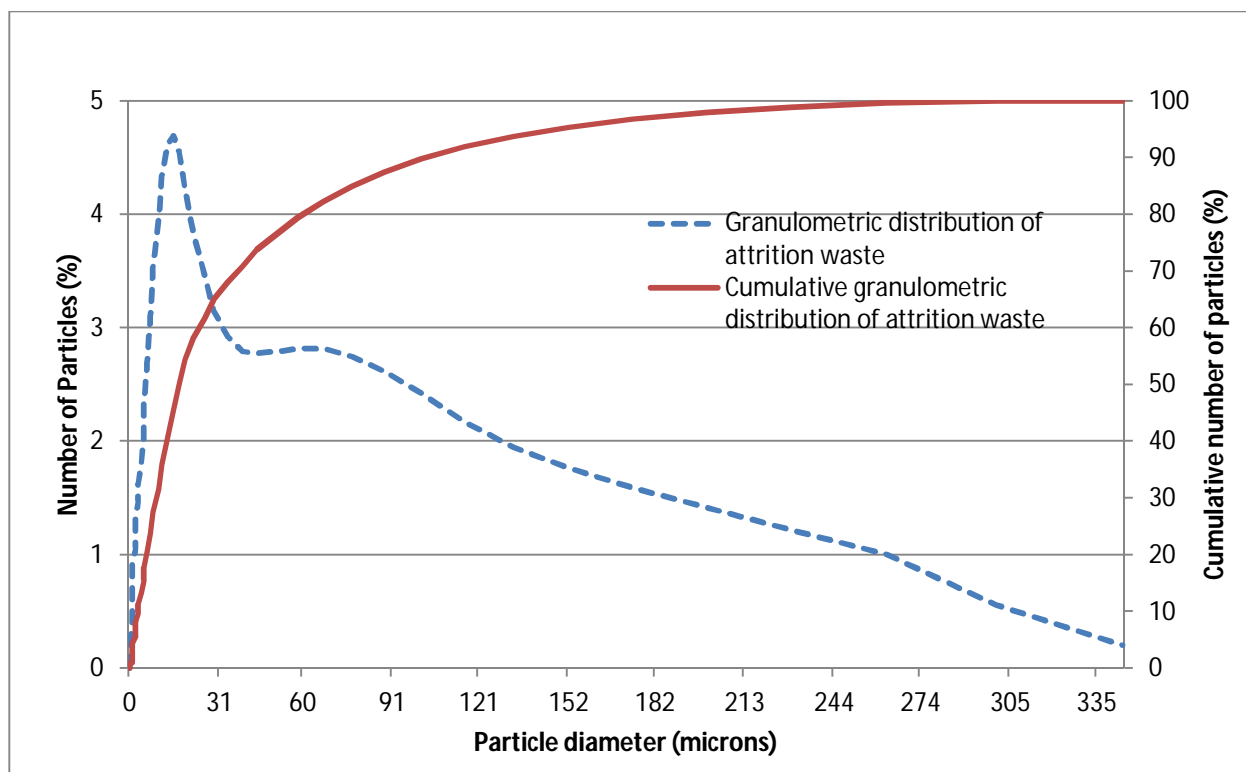


Figure 2.2 Granulometric distribution of the attrition sludge (sieved at 0.250 mm) from the 0.250-1 mm soil fraction

2.5.2 Gravity separation

The contaminant concentrations in the initial soil and the products obtained from the shaking table and the jig for both attrited and non-attrited soils are presented in Table 2.2.

0.250-1 mm. The results showed contaminant removal rates between 28% and 62% for the non-attrited soil and between 35% and 69% for the attrited soil. Considering the tailing and the concentrate together (called the inorganic contaminated fraction), which accounts for 35% of the soil mass (Table 2.3), only Pb, Sb and Sn were concentrated by gravity separation without attrition treatment. For the attrited soil, considering a soil mass for the inorganic contaminated fraction of 34% (Table 2.3), all contaminants were at least slightly concentrated, except for As (p value = 0.15). Attrition significantly increased the removal efficiency of all contaminants except for As. The increases observed in the contaminant removal efficiency between the attrited and the non-attrited soil were between 5% for Zn and 16% for Cu and Sb. The best removal efficiencies were obtained for Pb (69%) and Sb (66%), while the worst removal efficiencies were

obtained for As (35%) and Zn (37%). Attrition, as a conditioning treatment, significantly impacted the contaminant removal efficiency of the gravity separation, except for As.

1-2 mm. The results showed contaminant removal rates between 44% and 75% for the non-attributed soil and between 49% and 80% for the attributed soil. Considering a soil mass for the inorganic contaminated fraction of 48% (Table 3), again only Pb, Sb and Sn were concentrated by gravity separation without attrition conditioning treatment. For the attributed soil, considering a soil mass for the inorganic contaminated fraction of 47% (Table 2.3), all contaminants were at least slightly concentrated, except for Zn. Attrition significantly increased the removal of Cu and Sn, but the Sb removal efficiency was not significantly increased (p value = 0.23). For As, Pb and Zn, attrition did not significantly increase the removal efficiency, but the probability values were between 0.05 and 0.10. The increases in the separation efficiencies between attributed and non-attributed soils ranged from 5% for Pb and Zn to 9% for Cu. The impact of attrition as a conditioning treatment on the gravity separation efficiency for this soil fraction is less than the one obtained from the 0.250-1 mm fraction, but the separation efficiencies for two contaminants (Cu and Sn) were significantly improved, and the trend (probability value between 0.05 and 0.10) persisted for the three other contaminants (As, Pb, and Zn).

2-4 mm. The results showed contaminant removal rates between 10% and 40% for the non-attributed soil and between 17% and 47% for the attributed soil. Considering a soil mass for the inorganic contaminated fraction of 14% (Table 2.3), all contaminants were concentrated by gravity separation without attrition pre-treatment except for Zn. For the attributed soil, considering a soil mass for the inorganic contaminated fraction of 18% (Table 2.3), again all contaminants were at least slightly concentrated, except for Zn. Attrition significantly increased the removal of Zn but not As (p value=0.17) and Cu (p value=0.96). The probability values were between 0.05 and 0.10 for Pb, Sb and Sn. The increases in the removal efficiencies between attributed and non-attributed soil were from 7% for Zn to 17% for Sb. Again, the impact of attrition as a conditioning treatment on the gravity separation efficiency for this soil fraction is less than the impact on the 0.250-1 mm fraction, but the removal efficiency of one contaminant (Zn) was significantly improved, and the trend (probability value between 0.05 and 0.10) persisted for three others (Pb, Sb, Sn).

In general, attrition scrubbing tended to increase the efficiency of the gravity separation, but the impact negatively correlated with the particle size. Thus, the impact of the attrition scrubbing depends on the size of particles. However, this effect could also be caused by the variability among each soil fractions. The nature of the pollution creates a “nugget effect”; thus, variability

is expected to be higher in coarser soil fractions than in finer soil fractions. This larger variability reduced the ability of the statistical test to discriminate between means. The jig separation method could have also generated more variability among replicates compared to the shaking table. These two sources of variability could possibly explain the lack of significance in the higher removal efficiency improvement from the attrition conditioning for the 2-4 mm soil fraction, while the improvement in the lower removal efficiency was significant for the 1-2 mm or 0.250-1 mm soil fractions.

Table 2.2 Contaminant concentrations (mg/kg) in initial soil and the separation products obtained from gravity separation methods of the attrited and non-attrited (N-attrited) soil fractions

0.250-1 mm	As		Cu		Pb		Sb		Sn		Zn	
	N-attrited	Attrited	N-attrited	Attrited	N-attrited	Attrited	N-attrited	Attrited	N-attrited	Attrited	N-attrited	Attrited
Initial soil	49	47	1 530	1 637	5 002	5 085	70	73	1 234	1 292	3 500	3 211
Tailing	38	32	2 134	1 927	3 330	2 971	41	34	610	519	5 372	4 859
Middling	51	47	1 694	1 394	2 884	2 379	53	38	1 146	964	3 641	3 074
Concentrate	50	46	1 236	1 279	13 498	13 925	232	206	2 589	2 343	1 679	1 662
Removal % ¹	32%	35%	28%	44%	62%	69%	50%	66%	39%	51%	32%	37%
Mass balance %	100%	101%	108%	87%	104%	101%	129%	105%	112%	96%	99%	91%
Middling <i>P</i> value ²	0.23		<0.01		<0.01		0.04		0.03		0.02	
Removal % <i>P</i> value ³	0.15		<0.01		<0.01		0.05		0.03		0.03	
1-2 mm	As		Cu		Pb		Sb		Sn		Zn	
	N-attrited	Attrited	N-attrited	Attrited	N-attrited	Attrited	N-attrited	Attrited	N-attrited	Attrited	N-attrited	Attrited
Initial soil	45	43	1 854	2 053	5 540	5 893	90	95	1 313	1 330	2 915	2 533
Tailing	23	17	1 459	1 108	2 397	1 960	32	36	397	331	4 035	3 368
Middling	43	37	1 694	1 368	2 611	2 124	45	42	919	730	3 121	2 795
Concentrate	59	56	3 413	2 823	10 417	13 882	144	216	1 846	1 776	2 036	2 013
Removal % ¹	50%	57%	52%	61%	75%	80%	74%	75%	63%	70%	44%	49%
Mass balance %	103%	99%	123%	93%	97%	112%	88%	113%	91%	82%	97%	100%
Middling <i>P</i> value ²	<0.01		0.01		0.01		0.04		0.02		0.13	
Removal % <i>P</i> value ³	0.08		0.01		0.06		0.23		0.01		0.08	
2-4 mm	As		Cu		Pb		Sb		Sn		Zn	
	N-attrited	Attrited	N-attrited	Attrited	N-attrited	Attrited	N-attrited	Attrited	N-attrited	Attrited	N-attrited	Attrited
Initial soil	44	35	2 459	1 751	2 844	2 826	50	55	958	992	2 412	1 991
Treated soil	41	33	1 728	1 305	2 144	1 849	43	39	731	674	2 521	2 019
Concentrate	62	57	6 016	5 113	7 440	8 291	131	136	1 661	1 838	2 214	2 407
Removal % ¹	21%	23%	40%	39%	35%	47%	26%	43%	34%	44%	10%	17%
Mass balance %	99%	107%	95%	114%	102%	107%	111%	102%	90%	89%	103%	105%
Middling <i>P</i> value ²	0.02		0.24		0.19		0.43		0.39		0.03	
Removal % <i>P</i> value ³	0.17		0.96		0.10		0.10		0.09		0.04	

¹Removal % was calculated on the middling fraction only. The tailing and concentrate were considered as the contaminated fraction.

²Probability values from a bilateral Student's *T* test calculated on the middling of the attrited soil (*n*=6) and of the non-attrited soil (*n*=6).

³Probability values from a bilateral Student's *T* test calculated on the removal % of the attrited soil (*n*=6) and of the non-attrited soil (*n*=6).

Table 2.3 Soil mass proportion (%) of separation products from the dense media separation (DMS) and from the gravity separation (GS) for the three attrited and non-attrited (N-Attrited) soil fractions

0.250-1 mm	N-Attrited GS	Attrited GS	DMS
Tailing	13	11	10
Middling	65	66	65
Concentrate	22	23	25
1-2 mm	N-Attrited GS	Attrited GS	DMS
Tailing	12	9	16
Middling	52	53	46
Concentrate	36	38	39
2-4 mm	N-Attrited GS	Attrited GS	DMS
Treated soil	86	82	---
Concentrate	14	18	---

To explain the effect of attrition on the efficiency of the gravity separation for the 0.250-1 mm soil fraction, the shape of the particles and the degree of liberation were investigated. Table 2.4 shows that the attrition treatment significantly increased the Ravier shape factor and the aspect ratio, thus improving the sphericity of the particles. The sphericity of particles is an important factor for gravity separation and allows for a better classification of the particles based on their density (Grobler *et al.*, 2011). Figure 2.3 shows a reduction in the particle size during attrition, indicating an abrasion effect on the periphery of the soil particles, which indicates that the particle shape changed during attrition. Despite the significant differences obtained, these differences only represented an improvement of approximately 3% for both shape factors. Is this difference sufficient to explain the impact of attrition on the removal efficiency for gravity separation? The shape of particles seemed to play a role, but attrition may have also impacted the degree of liberation of the contaminants. Table 2.5 shows the degree of liberation of contaminants (Pb and Sn) and the size of particles bearing contaminants from SEM observations. Examples of SEM images are presented in Figure 2.4, which shows the contaminant arrangements as a function of the bearing phase (Figures 2.4b, 2.4c, 2.4d) or fully liberated (Figure 2.4a). The results showed a significant increase in the liberation of Pb and Sn from 17% and a reduction in the size of the contaminated particles after attrition ($p = 0.08$). These results support the idea from Bunge *et al.* (1995), who stated that attrition can break agglomerated particles into more liberated contaminated particles and clean particles. Because the contamination source was MSW incinerator bottom ash in the soil, some contaminants are expected to be found in agglomerate particles due to the partial melting of material during the

incineration process. In this experiment, attrition improved the efficiency of the gravity separation by modifying the shape of particles and increasing the liberation degree of contaminants for the 0.250-1 mm soil fraction. The liberation study was carried out for Pb and Sn only, and the results could be different for the other contaminants. This could explain the differences obtained among the different contaminants, as well as the arrangement of the contaminants in the soil particles (under particulate form or adsorbed in soil constituents).

Table 2.3 showed that attrition only slightly increased the soil mass proportion of middlings from 1% for the 0.250-1 mm and 1-2 mm soil fractions. However, attrition significantly decreased the treated soil mass proportion ($p = 0.03$) from 4% for the 2-4 mm soil fraction. Marino *et al.* (1997) increased the middling soil mass to 15% after attrition, while Williford *et al.* (1999) did not observe an effect of attrition on the soil mass distribution among separation products.

The linear regression equations (Table 2.4) from the relation between the Ravier shape factor and the Feret maximum diameter for attrited and non-attrited soil showed that both slopes were negative but similar, indicating that the sphericity values of the small particles were higher than those of the bigger particles and that attrition did not influence these values. Moreover, the constant term of the attrited soil (0.625) was lower than that of the non-attrited soil (0.638), which again is due to the reduction in the particle size during attrition.

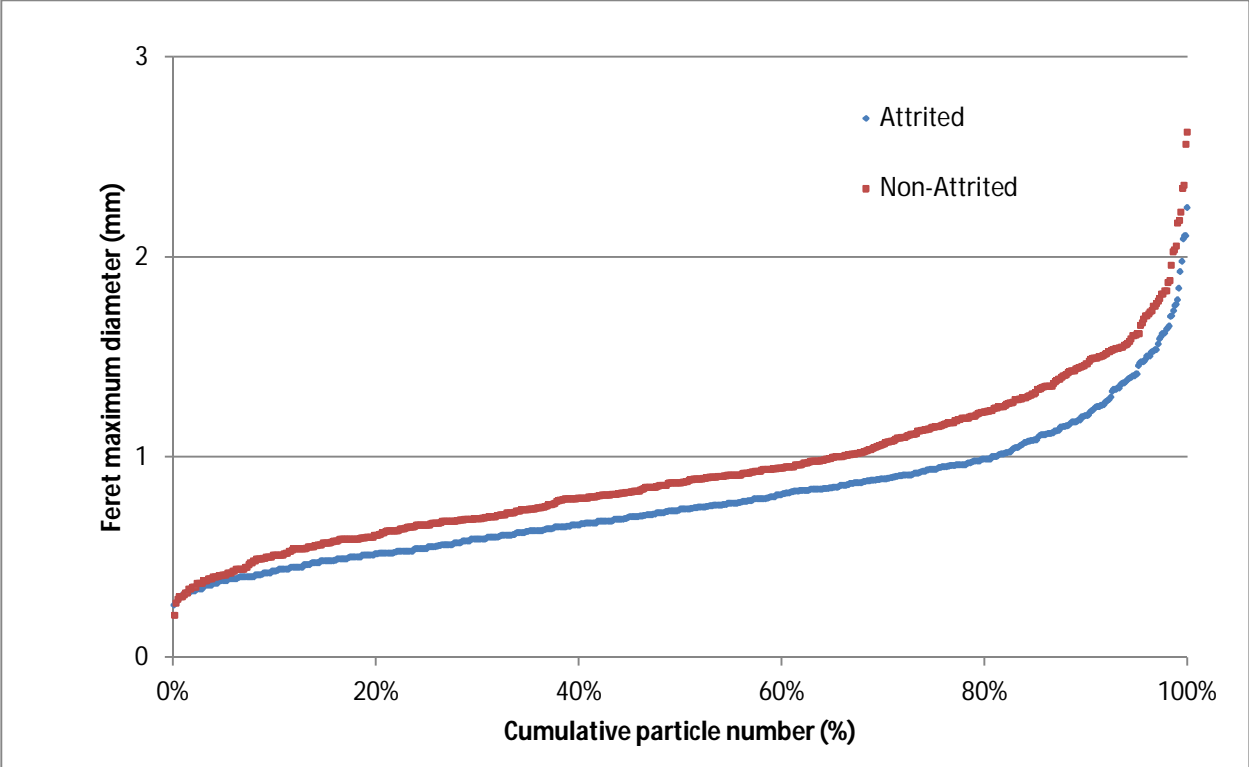


Figure 2.3 Cumulative distribution of particle size based on maximum Feret diameter for attrited and non-attrited soil from the 0.250-1 mm soil fraction

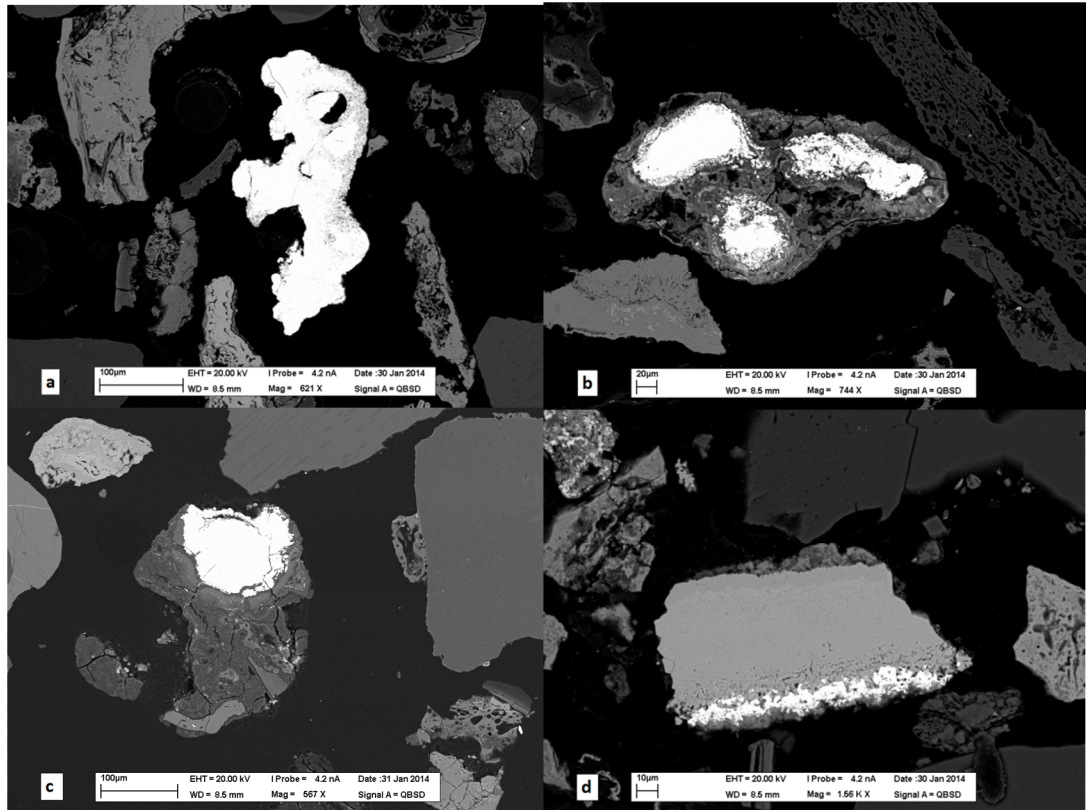


Figure 2.4 Pictures from SEM analysis showing (a) lead oxide with liberation ratio of 100%, (b) lead oxide with liberation ratio of 65%, (c) lead carbonate with liberation ratio of 40%, and (d) tin oxide with liberation ratio of 15%. Lead and tin contaminants appear brighter on pictures

Table 2.4 Mean values for Ravier shape factor, aspect ratio and Feret maximum diameter for attrited and non-attrited 0.250-1 mm particles

	Ravier	Aspect ratio	Feret diameter	Linear regression equation ¹
Non-Attrited	0.5635	0.6632	0.933	$Y = -0.060x + 0.638$
Attrited	0.5905	0.6852	0.786	$Y = -0.066x + 0.625$
<i>P</i> value ²	<0.01	<0.01	<0.01	Slope: 0.32 Constant: 0.03 ³

¹Linear regression equation from the relationship between Ravier shape factor (Y) and Feret maximum diameter (X).

²Probability values from a bilateral Student's T test calculated for shape factors between non-attrited (n=629) and attrited particles (n=738).

³P values comparing the two regression equations were obtained from an Ancova analysis.

Table 2.5 Liberation of contaminants (Pb and Sn) and size of particles before and after attrition treatment of the 0.250-1 mm soil fraction

	Liberation of Pb and Sn (%)	Particle size (µm)
Non-Attrited	42	347
Attrited	59	273
<i>P</i> value ¹	0.01	0.08

¹Probability values from a bilateral Student's T test calculated for the liberation and particle size between non-attrited (n=49) and attrited particles (n=76).

2.5.3 Dense media separation

Table 2.6 presents the removal efficiencies for the dense media separation and the gravity separation after attrition. Despite the increase in the contaminant removal efficiencies caused by the attrition treatment, the gravity separation failed to reach the efficiencies of the dense media separation, except for Zn and Pb from the 0.250-1 mm soil fraction and for Pb from the 1-2 mm soil fraction. Table 2.6 shows that the density of the middling was lower for the dense media separation compare to the gravity separation, which agrees with the higher removal efficiency of contaminants from the dense media separation. A lower removal efficiency was expected for the gravity separation, as dense media separation is only based on the density of the particles, while the shaking table separation efficiency can be reduced by the shape and size of the particles. Thus, the differences in efficiencies between the gravity separation and the dense media separation can be attributed to the shape of the particles and the misclassifications based on the size of the particles instead of strictly based on the density. Our study did not allow discrimination between the two effects, but the importance of each effect will be discussed. As previously mentioned, narrowing the particle size interval could reduce the misclassification of particles based on the size. The hindered settling ratio equation (Wills, 1992) can be used to estimate the misclassification caused by the particle size interval:

Equation 2.6

$$\frac{d_1}{d_2} = \frac{(\rho_2 - \rho_p)}{(\rho_1 - \rho_p)}$$

where d_1 / d_2 is the settling ratio, ρ_1 is the density of non-contaminated particles, ρ_2 is the density of contaminated particles and ρ_p is the density of the pulp. Reducing the particle size ratio from 3 to 2, such as treating particles from 0.250 mm to 0.750 mm instead of 0.250 mm to 1 mm, would allow the separation of contaminated particles with densities higher than 3.7 g.cm^{-3} instead of 4.6 g.cm^{-3} (assuming a pulp density of 1.9 and ρ_1 of 2.8 g.cm^{-3}). Narrowing the particle size would increase the remediation efficiency, but the cost of the granulometric separation would also be increased. This example was presented to demonstrate the importance of the particle size interval in the efficiency of a gravity separation process. However, Zhao *et al.* (2013) found that the shape of the particles was the dominant factor controlling the removal efficiency on the shaking table for vanadium ore concentration. Indeed,

the hindered settling equation is applicable to spherical particles, and the shape of the particles would likely distort these estimates as the shape of the particles drift away from the spherical model. If the work from Zhao *et al.* (2013) applies to our specific soil fractions, the removal efficiency could mainly be improved by modifying the shape of the particle. Thus, attrition could be optimized for the modification of the shape of the particles while generating minimal attrition sludge volumes.

Table 2.6 Comparison of removal (%) and densities between the dense media separation and the shaking table separation

0.250-1 mm		Density	As	Cu	Pb	Sb	Sn	Zn
Dense media separation non-attrited		2.75	69	60	79	82	76	44
Shaking table separation attrited		2.84	35	44	69	66	51	37
<i>P</i> value ¹		0.04	0.01	0.01	0.16	<0.01	0.01	0.51
1-2 mm		Density	As	Cu	Pb	Sb	Sn	Zn
Dense media separation non-attrited		2.69	83	79	81	85	86	66
Shaking table separation attrited		2.84	54	65	81	77	71	41
<i>P</i> value ¹		<0.01	<0.01	<0.01	0.43	0.02	<0.01	0.01

¹Probability values from a bilateral Student's *T* test calculated for density and removal % of contaminants between dense media separation (*n*=3) and shaking table separation (*n*=6).

2.6 Conclusions

Attrition offered a limited potential to concentrate contaminants in the sludge, and this effect is positively correlated with the particle size. The impact of attrition on the gravity separation efficiency also depended on the size of the particles. Attrition significantly increased the efficiency of the gravity separation of the 0.250- to 1-mm soil fraction but had a more limited effect on the efficiency of the gravity separation of the 1- to 2-mm and the 2- to 4-mm soil fractions. Moreover, attrition significantly increased both the shape factor values, significantly reduced the size of the particles and significantly increased the liberation of the contaminants. The positive effect of attrition on the gravity separation efficiency can be attributed to a modification of the shape of the soil particles and a higher liberation of the contaminants. Finally, the gravity separation and the dense media separation significantly differed for As, Cu, Sb and Sn, despite the use of attrition. The difference in the efficiencies between the gravity separation and the dense media separation appear to be caused by the shape of the particles and the misclassifications of the particles based on the size instead of strictly based on the density. For our specific soil, attrition could be optimized for the modification of particle shape and the liberation of the contaminants while generating minimal attrition sludge volumes for 0.250-1 mm and 1-2 mm soil fractions, while attrition could be optimized for the concentration of the contaminants in the attrition sludge for the 2-4 mm soil fraction.

2.7 Acknowledgments

The project was funded by the National Sciences and Engineering Research Council of Canada and Tecosol inc. The authors thank Myriam Chartier and Lucie Coudert for their assistance.

3 CHAPITRE III

Magnetic and density characteristics of a heavily polluted soil with municipal solid waste incinerator residues: significance for remediation strategies

Caractérisation magnétique et densimétrique d'un sol contaminé par des cendres d'incinération

Revue : International Journal of Mineral Processing

Soumis le 14 novembre 2014

Auteurs

Philippe Jobin étudiant au doctorat, Institut national de la recherche scientifique (Centre Eau, Terre et Environnement), Université du Québec, 490 rue de la Couronne, Québec, Qc, Canada, G1K 9A9, tel: (418) 654-4677, Fax: (418) 654-2600, email: philippe.jobin@ete.inrs.ca

Guy Mercier Professeur, Institut national de la recherche scientifique (Centre Eau, Terre et Environnement), Université du Québec, 490 rue de la Couronne, Québec, Qc, Canada, G1K 9A9, tel: (418) 654-2633, Fax: (418) 654-2600, email: guy.mercier@ete.inrs.ca

Jean-Francois Blais Professeur, Institut national de la recherche scientifique (Centre Eau, Terre et Environnement), Université du Québec, 490 rue de la Couronne, Québec, Qc, Canada, G1K 9A9, tel: (418) 654-2575, Fax: (418) 654-2600, email: blaisjf@ete.inrs.ca

Note

L'étudiant est le premier auteur de cet article. Toute les manipulations, la rédaction, ainsi que le traitement des données ont été réalisés par l'étudiant en tenant compte des commentaires des autres auteurs.

Modifications exigées par le comité de lecture de la revue

Les commentaires des réviseurs n'ont pas encore été reçus.

3.1 Résumé

Les méthodes de séparation physique sont souvent les méthodes retenues pour le traitement des contaminants inorganiques. Toutefois, la connaissance des propriétés des contaminants présents sur un site est important afin de traiter avec succès un sol contaminé. Cette étude caractérise les propriétés magnétiques et densimétriques d'un sol pollué par des cendres d'incinération de déchets municipaux afin de sélectionner la méthode ou la combinaison de méthodes les plus efficaces pour le traitement des fractions 0,250-1 mm et 1-2 mm. La caractérisation magnétique a été réalisée à l'aide d'un séparateur magnétique CARPCO permettant de varier l'intensité du champ magnétique entre 0,04 à 0,7 Tesla. Une seconde caractérisation a été réalisée par une expérience factoriel incluant trois intensités de champ magnétique (0,08, 0,40 et 0,70 Tesla) et trois densités de séparation (léger : <2,40 ; intermédiaire : 2,40-2,95 ; lourd : >2,95). Les résultats ont montré que l'As, le Fe et le Sn peuvent être concentrés dans la fraction magnétique par l'utilisation de faibles intensités magnétiques. Par contre, le Cu, le Pb, le Sb et le Zn ne peuvent être concentrés. De plus, l'utilisation d'intensités élevées (0,40 et 0,70) ne permettent pas de concentrer les contaminants présents dans le sol. L'association de l'As et du Sn avec le Fe explique la capacité de concentrer ces deux contaminants dans la fraction magnétique. Un chevauchement important existe entre la méthode de séparation magnétique et par densité, variant de 29% à 72 % selon le contaminant d'intérêt. La séparation par densité devrait être préférée à la séparation magnétique en raison d'une efficacité supérieure et un entraînement particulaire plus faible.

Mots clés : décontamination, cendres d'incinération, contaminants inorganiques, séparation par densité, séparation magnétique

3.2 Abstract

Physical separation methods are usually the preferred extraction methods for inorganic contaminants. However, successful remediation of inorganically contaminated sites requires proper knowledge of the contaminants. This paper describes the magnetic and density characteristics of a soil polluted with municipal solid waste incinerator residues, allowing the best separation method or combination of methods for remediating the 0.250-1 mm and the 1-2 mm soil fractions to be selected. Magnetic characterization was performed using a CARPCO high intensity magnetic separator with increasing magnetic fields from 0.04 to 0.7 Tesla. A second characterization using a factorial design was performed for three magnetic field intensities (0.08 and 0.4 and 0.7 Tesla) and three density fractions (light, intermediate and heavy). The results showed that As, Fe and Sn can be concentrated into the magnetic fraction using low intensity magnetism but not Cu, Pb, Sb and Zn. Moreover, high intensity magnetic separation was not appropriate for concentrating the contaminants present in our soil. The association of the contaminants with iron likely explained this finding, especially for Sn and As. A significant overlap exists in the removal yields for magnetic and density separation of the different inorganic contaminants, ranging from 29% to 72% depending on the contaminants and the soil fraction. Density separation alone should be preferred to magnetic separation alone because of the better removal efficiency and the lower soil mass in the contaminated fraction afforded by density separation.

Keywords: soil remediation, incinerator residues, inorganic contaminants, density separation, magnetic separation

3.3 Introduction

Improper disposal of municipal solid waste (MSW) incinerator residues have contributed to the contamination of numerous sites with inorganic and/or organic compounds. Contaminants commonly retrieved from these sites are arsenic (As), cadmium (Cd), chromium (Cr), copper (Cu), mercury (Hg), molybdenum (Mo), nickel (Ni), lead (Pb), antimony (Sb), tin (Sn) and zinc (Zn). The presence of a contaminant depends on the specific type of residue disposed on the site, such as bottom ash, fly ash or air pollution control residues (Chimenos *et al.*, 1999) as well as the feed waste composition and incinerator technology and operation (Hjelmar, 1996). Organic compounds such as polycyclic aromatic hydrocarbons and dioxins/furans can also be present (Chung *et al.*, 2010). These sites are normally characterized by high iron (Fe) contents, heterogeneous element speciation and extreme spatial variability in contaminant concentrations.

The selection of an appropriate decontamination method depends on the contaminants and the site characteristics (Mulligan *et al.*, 2001a). Of the available extraction methods, physical separation technologies, adapted from the mining and mineral industry, are usually considered the most economical remediation options (Blais *et al.*, 2010). The most common physical separation technologies are screening, gravity concentration, hydrodynamic classification, electrostatic separation, attrition scrubbing and magnetic separation (Gosselin *et al.*, 1999).

In the past, soils polluted by MSW incinerator residues have been treated by gravimetric separation (spiral) (Mercier *et al.*, 2007) or a combination of gravimetric (Wilfley table and jig) and magnetic separation methods (Mercier *et al.*, 2001). Some soils have successfully been decontaminated either by gravity separation or by magnetic separation alone while some others have been decontaminated successfully using a combination of both.

Magnetic separation is achieved when magnetizable particles passing through a non-homogenous magnetic field are retained (Svoboda *et al.*, 2003). The magnetic force (F_m) is described by the following equation:

Equation 3.1

$$F_m = (1/\mu_0)\rho\chi VB\Delta B$$

Where μ_0 is the magnetic permeability of a vacuum ($4\pi \times 10^{-7} \text{ N/A}^2$), ρ is the specific gravity (kg/m^3), χ is the volumetric magnetic susceptibility of the particle (m^3/kg), V is the volume of the particle (m^3), B is the external magnetic induction (T) and ΔB is the gradient of the magnetic induction.

Thus, magnetic force is proportional to the product of the external magnetic induction and the magnetic gradient. In a homogeneous magnetic field, no gradient is present, thus the magnetic force is zero. If a gradient is present, the particles will move in the direction of increasing magnetic field (Avens *et al.*, 1993). Magnetization is achieved when particles are exposed to an external magnetic field (magnetic induction) and depends on the magnetic susceptibility of the material. A material with a high magnetic susceptibility will be magnetized in a low intensity magnetic field and will be easily moved by the magnetic force when subjected to a magnetic gradient.

In a magnetic separator, several competing forces can exist, such as gravity, inertial, surface and inter-particle forces (Svoboda *et al.*, 2003). Magnetic separation can be used on different soil particle sizes to separate contaminants based on their magnetic susceptibility. Soil particles have magnetic susceptibility varying from close to null to slightly negative for diamagnetic materials, slightly positive for paramagnetic materials to largely positive for ferrimagnetic and ferromagnetic materials (Dermont *et al.*, 2008a). Ferri/ferromagnetic materials can be removed with a low intensity magnetic separator (LIMS), while paramagnetic minerals can be removed using a high intensity magnetic separator (HIMS) (Oberteuf, 1973). Low intensity magnetic separation is often used to remove coarse metallic debris from soils using an electromagnet (Mercier *et al.*, 2001).

Contaminants commonly retrieved in soil such as As, Cu, Pb, Sb, Sn and Zn are diamagnetic. However, contaminants can form paramagnetic minerals, especially when the Fe and manganese (Mn) content in the soil is high (Svoboda, 1987). Rikers *et al.* (1998a.) demonstrated the efficiency of magnetic separation for various contaminated soils containing Pb, Cu and Zn. The explanation lies in the association between contaminants and Fe. Indeed, contaminants can be bound to Fe because of a corrosion protection treatment such as metal plating with Zn, Pb and Sn or as part of an alloy with iron. Contaminants can also be associated with iron because of the sorption of contaminants by iron oxyhydroxides. This effect is well known and is called the “scavenging” effect of amorphous iron or iron minerals. The scavenging

effect of iron is particularly important when Fe remains under oxidizing conditions and originates from anthropogenic activities (Rikers *et al.*, 1998b).

Gravity separation methods separate particles based on their density but also on their size and shape (Iskandar, 2001). Density misclassification caused by size classification and particle shape can lead to significant losses in efficiency. These misclassifications can be reduced by narrowing the feed size interval (Manser *et al.*, 1991). The degree of liberation of the contaminants is also an important characteristic when using gravity separation methods. The degree of liberation is the percentage of the surface of a particle occupied by a contaminant compared to the total surface of the particle (Duchesne *et al.*, 2003). This definition is different from the one usually used in the mineral industry but is more relevant for gravity separation in a remediation context. The most used gravity separation pieces of equipment are the spiral, the shaking table and the jig. Dense media (DM) allow a separation based on density only, without size and particle shape effects. This technology is considered the perfect density separation technique and is used as a predictive method for gravity separation efficiency (Mercier *et al.*, 2001).

For soils with complex contamination such as those with multiple contaminants, more than one remediation technology (technology train) may be needed. However, the chosen remediation methods must have little overlap to justify economically the use of successive treatment methods on a single soil fraction. Rikers *et al.* (1998b) concluded that magnetic separation has little overlap with density separation according to the average density of specific magnetic fractions. This means that magnetic and density separations are complementary and both separation methods should be used to treat the same soil fraction size.

The objective of this study was to characterize the magnetic and density properties of the coarse fractions (0.250-1 mm and 1-2 mm) of a soil polluted by MSW incinerator residues to precisely evaluate the separation efficiencies and the overlap between both separation methods.

3.4 Material and methods

3.4.1 Soil sampling

Soil heavily polluted with Municipal Solid Waste (MSW) incinerator bottom ash containing arsenic (As), copper (Cu), lead (Pb), antimony (Sb), tin (Sn) and zinc (Zn) was collected from a brownfield located in Québec City (Québec, Canada). Over 160 kg of soil were excavated using a backhoe-loader from a single trench at a depth of 0.3 m to 1 m and transported to the research facility into plastic containers. The soil was wet sieved using a mechanical 75-cm diameter Sweco™ to characterize the granulometric distribution and to isolate the two soil fractions (0.250-1 mm; 1-2 mm) used for this experiment. These two soil fractions were chosen because they usually represent a large proportion of the contaminated soil in brownfields and because these fractions can be treated using gravimetric and magnetic methods. Initial inorganic contaminants contents were characterized by randomly collecting six samples of approximately 120 g from each fraction during the sieving operation.

3.4.2 Microanalysis

The composition and morphology of representative soil particles were studied using a Scanning Electron microscope (SEM, Carl Zeiss EVO® 50) equipped with an X-ray energy dispersion spectrometer (EDS, Oxford Instrument, INCAx-sight EDS). Polished thin sections (26 x 46 mm) of soil were coated with gold using a SPI™ sputter coater module. Soil particle images were generated with a Quadra-Pole Backscatter detector with a 20 kV accelerating voltage and a current beam of 100 μ A. The carrying phase and the liberation of Pb and Sn were determined from these images. The liberation of contaminants (%) was obtained by calculating the ratio of the surface occupied by the contaminant to the total surface of the particle. Minerals were identified by X-ray diffraction (XRD) analysis using a Siemens D5000 diffractometer with Cu K α radiation. Scans were taken for 2θ over 5° to 80° at 0.02°/s.

3.4.3 Magnetic separation

Magnetic separation was performed using a CARPCO 3 x 4 L high intensity magnetic separator (Outokumpu technology, Jacksonville, Florida, USA). Soil samples of approximately 350 g were exposed to an increasing magnetic field (induction) generated from a magnet coil. Variations in the intensity of the magnetic field were obtained by using a variable transformer to control power input. Dry soil samples were dropped over the magnetic separation chamber using a vibratory feeder (Laborette 24 model, Fritsch GmbH, Idar-Oberstein, Germany) at a rate of 150 g per minute. Soil particles were brought close to the separation chamber walls (distance <0.5 cm)

using an inverted v shape wooden block (Figure 3.1). Diamagnetic particles passed through the separation chamber and were collected in a pan underneath the separation chamber, while magnetic particles were attracted and retained on the chamber's walls. Magnetic particles were collected from underneath the apparatus in a different pan by reducing the input power to zero. This operation was repeated three times for each input power to ensure complete separation. Each soil sample was subjected to an increasing magnetic field generated by input currents of 0.2, 0.5, 1.0, 2.0, 3.0, 4.0, 5.0 and 6.0 A, resulting in nine soil fractions including the final non-magnetic fraction. Table 3.1 shows the corresponding magnetic flux density or magnetic induction (B) measured with a Tesla meter from Pacific Scientific-OECO (model 5080, Milwaukee, Oregon, USA). Each fraction obtained was weighed, and densities were measured using an AccuPyc™ 1330 gas pycnometer (Micromeritics inc, Norcross, Georgia, USA). This separation process was performed on three replicates of the 0.250-1 mm and the 1-2 mm soil fractions. Soil mass recovery during magnetic separation was over 98% for all of the experiments.

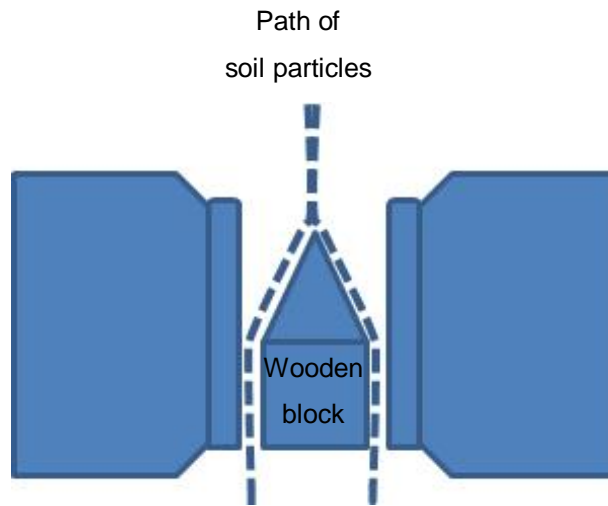


Figure 3.1 Magnetic separation chamber and the soil deviation by the inverted V shape wooden block

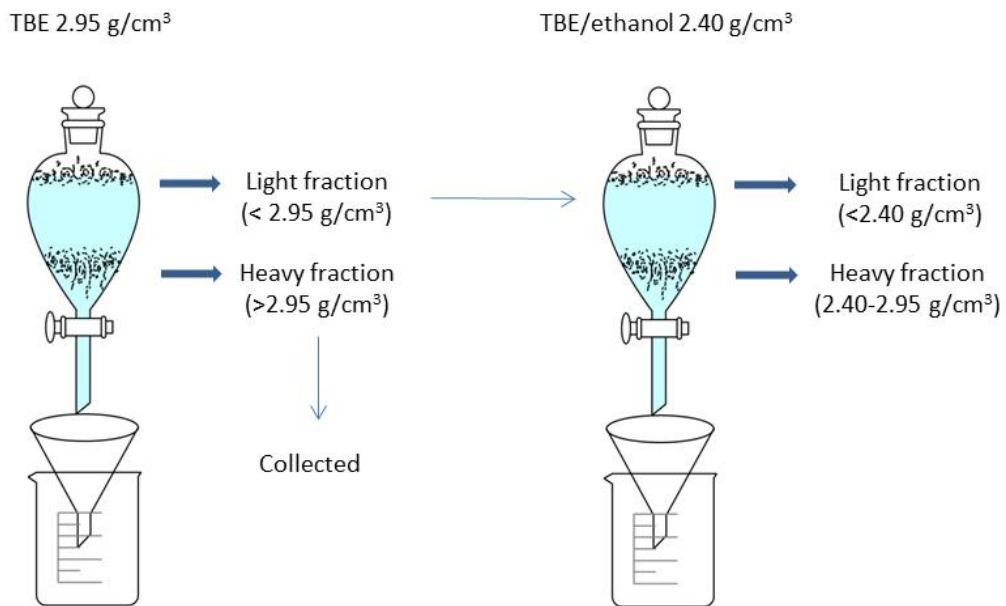


Figure 3.2 Soil density separation using a dense media separation set-up and tetrabromoethane (TBE) and ethanol as dense media

Table 3.1 Flux density present into the magnetic separation chamber in Gauss and Tesla for applied currents (A)

Amperes	Gauss	Tesla
0.2	400	0.04
0.5	800	0.08
1.0	1,500	0.15
2.0	3,000	0.30
3.0	4,000	0.40
4.0	5,000	0.50
5.0	6,000	0.60
6.0	7,000	0.70

3.4.4 Magnetic and Dense Media (DM) separation

DM separations were performed on samples generated using the above magnetic separation protocol. However, magnetic separation was performed for only three input currents (0.5, 3.0 and 6.0 A), generating four soil fractions including the non-magnetic fraction. Tetrabromoethane (TBE, Fisher Scientific, PA, USA) was used as a DM to separate soil particles at a density of 2.95. Ethanol was used to dilute TBE and obtain a TBE/ethanol solution with a density of 2.40 for a second separation. Solution density was verified using a graduated cylinder on a laboratory scale. These two densities were chosen to separate the heavy and light soil particles susceptible to contamination from clean soil particles. A representation of the dense separation laboratory setup is presented in Figure 3.2. For these experiments, approximately 80 g of soil were mixed into a decantation flask with approximately 250 mL of TBE. Approximately 8 h was allowed for the soil particles to separate according to their density. Heavy or settled soil particles were first collected from the bottom of the decantation flask in a funnel with a 25 microns paper filter (P8, Fisher Scientific, PA, USA). The soil was left to drain to remove excess TBE. The light or floating soil fraction was left inside the decantation flask for a second separation with TBE/ethanol solution (density = 2.40). The density of the TBE/ethanol solution was verified and corrected between each separation batch despite the use of stoppers to reduce the effect of ethanol volatility. The collected soil fractions were rinsed with ethanol and dried at 65°C for 10 days to volatilize residual ethanol and TBE, which would cause weight and density measurement errors. Hence, the DM separation generated three separation products from the original soil sample: concentrate (density >2.95), middling (density between 2.40-2.95) and tailing (density <2.40).

3.4.5 Chemical analysis

Dry soil samples were milled with a planetary ball mill (Pulverisette 6 model, Fritsch GmbH, Idar-Oberstein, Germany) using a tungsten bowl and tungsten balls. A mass of 0.5 g of soil was digested in duplicates (sub-samples) following the official method MA. 205 – Mét/P 1.0 of the Québec government using HCl and HNO₃ at 90°C (CEAEQ, 2003). Field blanks and reference-certified soil samples (CNS392-50G) were also digested. Metal concentrations were measured by ICP-AES (Varian, model Vista AX-CCO, Mississauga, On) and analytical results were compared against certified laboratory control samples (PlasmaCal 900-Q3-100S, SCP Science, QC, Canada), laboratory fortified matrix and repeated laboratory blanks.

3.4.6 Calculations

Contaminant removal percentage values (CR expressed in %) are presented on a total contaminant mass basis and calculated following the general equation:

Equation 3.2

$$CR = 100 - \left(\frac{\text{Final contaminant concentration (mg/kg)} * \text{Soil mass proportion (\%)}}{\text{Initial contaminant concentration (mg/kg)}} \right)$$

Mass balance percentages (MB expressed in %) are presented to highlight contamination variability as well as sampling method and analysis quality to a lesser extent. Mass balance percentages were calculated using the following equation:

Equation 3.3

$$MB = \frac{\sum \text{Fraction contaminant concentration (mg/kg)} * \text{Fraction mass proportion (\%)}}{\text{Initial contaminant concentration (mg/kg)}}$$

3.5 Results and discussion

3.5.1 Soil characteristics

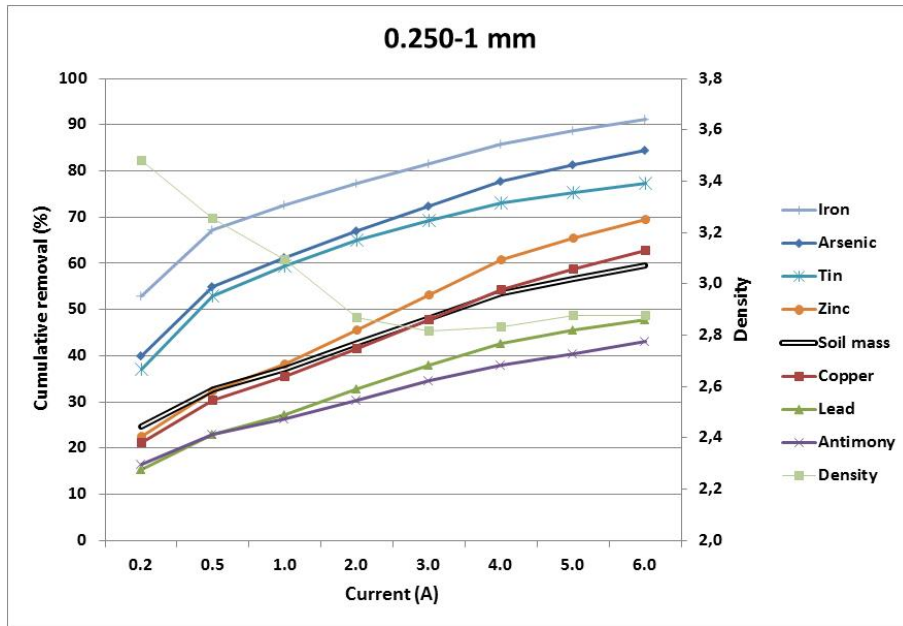
Table 3.2 presents the initial contaminant concentrations (mg/kg) measured in the soil fractions and the legal limits for commercial or industrial uses imposed by the Quebec government. The studied soil can be classified as an urban soil or Technosol (IUSS, 2014), considering its properties and pedogenesis are dominated by technical origin. Both initial soil fractions (0.250-1 mm and 1-2 mm) contained large amounts of iron (approximately 20% (w/w) of the soil), indicating the impact of human activities on this soil. Five out of six contaminants (Cu, Pb, Sb, Sn and Zn) were far over the legal limit (criteria C) of the Québec government for commercial or industrial uses of a soil. The concentration of As was slightly under the limit and met criteria C. XRD analysis showed that the dominant minerals in the soil were quartz (SiO_2), calcite (CaCO_3), magnetite (Fe_3O_4), albite ($\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$) and microcline (KAlSi_3O_8).

3.5.2 Magnetic separation

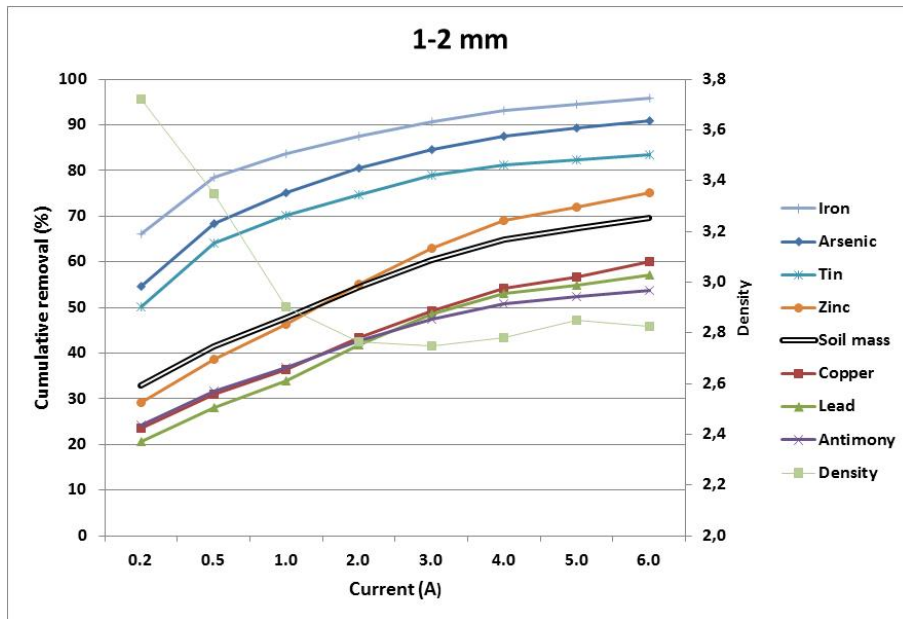
Figure 3.3 shows the cumulative removal of contaminants and the cumulative removal of soil mass under increasing currents (magnetic induction) for both soil fractions. Contaminants with cumulative removal slopes greater than the soil mass cumulative removal slopes are concentrated into the magnetic fraction, while contaminants with cumulative removal slopes less than the soil mass cumulative removal slopes are concentrated into the non-magnetic fraction. The contaminants with cumulative removal slopes close to the soil mass cumulative removal slope are not concentrated by magnetic separation. Figure 3.3 shows that magnetic separation concentrated Fe, As and Sn into the magnetic fraction for both soil fractions (0.250-1 mm and 1-2 mm). In contrast, Pb and Sb were concentrated into the non-magnetic fraction for the 0.250-1 mm soil fraction while Pb, Sb and Cu were concentrated into the non-magnetic for the 1-2 mm soil fraction. Zn was not concentrated by magnetic separation for both fraction sizes, while Cu was not concentrated for the 0.250-1 mm particle size. Only Cu had a different behavior between the two soil fractions. This fact might be caused by the presence of a higher percentage of Cu mass under a particulate form in the 1-2 mm soil fraction compared to the 0.250-1 mm soil fraction. All contaminants showed a pattern similar to Fe under increasing magnetic induction (linear to slightly concave slopes). According to Rikers et al. (1998a), a linear and concave slope indicates the presence of a mixture of Fe minerals with different magnetic properties and a large amount of ferro/ferri magnetic minerals. For both soil fractions, it appears that a significant proportion of As and Sn is

Table 3.2 Contaminant concentration (mg/kg) in the soil fractions and legal limit for a commercial or industrial uses imposed by the Québec government

Soil fraction	Arsenic	Copper	Iron	Lead	Antimony	Tin	Zinc
0.250-1 mm	46	1,595	190,000	5,475	102	1,193	3,501
1-2 mm	42	1,952	210,000	4,575	89	1,098	3,587
Limit (criteria C)	50	500	---	1,000	---	300	1,500



3.3a



3.3b

Figure 3.3 Cumulative removal (%) of contaminants and soil total mass under increasing currents from 0.2 to 6.0 A for the 0.250-1 mm soil fraction (a) and 1-2 mm soil fraction (b)

associated with Fe and can be removed by magnetic separation. In the case of Sn, an explanation might lie in the origin of the contaminant. According to Mercier et al. (2001), Sn is closely associated with Fe in soils contaminated by MSWI residues because of its origins from tin-coated iron alloy cans present in the wastes. SEM observations confirmed that Sn was almost systematically associated with iron oxides (Figure 3.4) and rarely found fully liberated (no carrying phase) or alloyed with Pb. The association of As with Fe might be explained by the sorption of this contaminant onto Fe-oxyhydroxides. This affinity is well known and is used to remove As from drinking water (Daus *et al.*, 2004, Mohan *et al.*, 2007). Indeed, according to Masscheleyn et al. (1991), the solubility of As in contaminated soil is mainly controlled by its sorption onto Fe-oxyhydroxides. Bowell (1994) showed that pH and oxydo-reduction potential were the main factors controlling As sorption onto Fe-oxyhydroxides and that this sorption is higher in the pH range of 4 to 8 and under oxidizing conditions. The pH of the studied soil was 8.5 (soil:water ratio of 1:10), and on-site conditions were oxidizing as the soil texture was coarse and the water table was found below a depth of 3 m.

Rikers et al. (1998b) showed that contaminants such as Cu, Pb and Zn can be removed by magnetic separation even if they form diamagnetic minerals. According to Rikers *et al.* (1998b), these contaminants are mainly associated with amorphous iron oxides, which have a magnetic susceptibility between $1 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{kg}$ and $1 \times 10^{-7} \text{ m}^3/\text{kg}$. In the experiment, the results differed and these contaminants could not be concentrated using magnetic separation. At maximum magnetic induction (6.0 A), 91% and 96% of the Fe total mass was removed from the 0.250-1 mm and 1-2 mm soil fractions, respectively. This result indicates that a large proportion of contaminants are not associated with Fe-oxides, as almost all of the Fe total mass was removed from the samples (Figure 3.3). Moreover, pure iron sulfate salt ($\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$) with magnetic susceptibility of $5.2 \times 10^{-7} \text{ m}^3/\text{kg}$ was used in the magnetic separator for reference purposes. The iron sulfate was partially retained in the magnetic separation chamber at a magnetic induction of 6.0 A, indicating that amorphous Fe, if present, should be at least partly removed by magnetic separation.

The difficulty in separating Pb, Cu, Sb and Zn using magnetism onto the studied soil can be explained by the origin of the pollution. In MSW incinerator bottom ash, contaminants are often present in their metallic form. Indeed, SEM observations of the 0.250-1 mm soil fraction confirmed that about half of the Pb-bearing particles were fully liberated and mainly composed of lead carbonates. Therefore, a large proportion of Pb particles has no carrying phase and

cannot be removed from the soil using magnetism. A similar situation is expected for Cu, Sb and Zn.

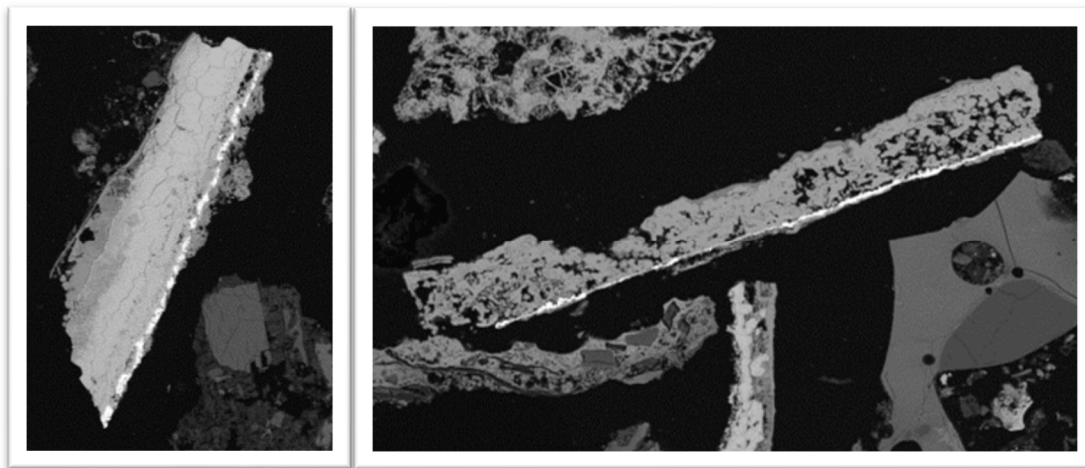


Figure 3.4 SEM pictures showing thin layer of tin (brighter) on Fe oxide particles

XRD analysis of the initial soil samples showed that crystalline Fe was mainly present as metallic iron (Fe) and magnetite (Fe_3O_4) but also as hematite (Fe_2O_3), goethite ($\alpha\text{-FeOOH}$) and lepidocrocite ($\gamma\text{-FeOOH}$). Moreover, XRD analysis of the non-magnetic soil fraction showed that metallic Fe, magnetite and hematite were completely removed by magnetic separation while some goethite and lepidocrocite still remained in the sample. These two minerals have the lowest magnetic susceptibility of the ferrous minerals present in the soil. Therefore, it is not surprising that these two minerals behaved similarly, as these minerals are two polymorphs of iron-oxyhydroxydes ($\text{FeO}(\text{OH})$), differing only in their crystalline structure. The presence of amorphous iron is impossible to determine from XRD analysis because amorphous glass is also present in the samples. However, amorphous iron has a magnetic susceptibility close to goethite and lepidocrocite, indicating that some amorphous iron might still be present in the non-magnetic fraction.

Taking a closer look at using HIMS for this soil, the results indicated that low intensity magnetic induction (0.2 A and 0.5 A) concentrated As, Fe and Sn, but subsequent separations at 1.0 A

and greater did not concentrate these elements any further. Indeed, any increase in contaminant mass removal was accompanied by a similar amount of soil mass removal. This effect can be observed from the linear regression equations in Table 3.3. A contaminant mass removal slope greater than the soil mass removal regression indicates that the contaminants were concentrated into the magnetic fraction. The slopes of the contaminant removal curves are similar to the slope of the soil mass removal curve except for Zn, for which the slope is slightly higher. Thus, currents higher than 0.5 A should not be used on this soil because each percent of contaminant mass removed is matched by a percent of soil mass removed. In other words, currents higher than 0.5 A do not concentrate any of the contaminants present in the soil. These findings correspond to the conclusion of Dermont et al. (2008a) regarding magnetic separation: magnetic separation is not efficient unless the contaminants are associated with the ferromagnetic fraction. Contaminant mass balances ranged from 89% and 114% (data not shown), an appropriate result for such a highly heterogeneous Technosol.

The proportion of soil mass removed by magnetic separation for both soil fractions varied between 25% and 33% at low magnetic induction and between 60% and 68% at maximum magnetic induction. In a remediation context, this result is a real limitation, especially at high magnetic induction. Indeed, the large amounts of soil residues generated by magnetic separation will need to be disposed of in an appropriate landfill site, increasing the cost of global treatment. However, if the recycling of ferrous material were possible, the soil mass removed by magnetic separation would no longer be seen as a limitation. In the present case, the use of a low magnetic induction corresponding to 0.5 A would be appropriate.

The average densities measured for each fraction revealed that the highest density particles are removed at low magnetic inductions. Rikers et al. (1998b) obtained similar results and concluded that contaminants removed at high magnetic induction cannot be removed by density separation. This aspect will be further discussed in the magnetic and DM separation section.

Table 3.3 Linear regression for each element removal cumulative proportion curve by magnetic separation for the soil fraction 0.250-1 mm and 1-2 mm

	Fraction 0.250-1 mm	Fraction 1-2 mm
Soil mass	$0.05x+0.22$	$0.05x+0.31$
Arsenic	$0.06x+0.41$	$0.05x+0.57$
Copper	$0.06x+0.18$	$0.05x+0.21$
Iron	$0.05x+0.55$	$0.04x+0.69$
Lead	$0.05x+0.13$	$0.05x+0.18$
Antimony	$0.04x+0.15$	$0.04x+0.23$
Tin	$0.05x+0.40$	$0.04x+0.54$
Zinc	$0.07x+0.18$	$0.07x+0.26$

3.5.3 Magnetic and dense media (DM) separation

Tables 3.4 and 3.5 show the total contaminant mass after magnetic and density separation as well as the soil mass proportion (soil mass removed) and the average densities measured for each fraction. When looking at magnetic separation only, the removal of contaminants and the mass loss of soil followed the same pattern as the magnetic experiment presented in Figure 3.3, confirming the repeatability of the results for the studied soil. Soil mass balances for contaminants ranged from 83% to 115%, an appropriate result for this type of soil.

Magnetic separation at 0.5 A removed a higher soil mass proportion from the 1-2 mm soil fraction (44%) compared to the 0.250-1 mm soil fraction (31%); this result was also associated with higher removal of Fe (Tables 3.4 and 3.5). Soil masses removed at 3.0 A and 6.0 A were similar for both soil fractions, resulting in a lower non-magnetic fraction mass for the 1-2 mm soil fraction compared to the 0.250-1 mm soil fraction.

Adding the separation products from the magnetic and the non-magnetic fractions for each density fraction yielded the DM separation for the complete soil for each fraction size (Tables 3.4 and 3.5). The contaminants were mainly present in the heavy fractions, except for Zn in both soil fractions and Cu in the 0.250-1 mm soil fraction. Bisone et al. (2013) also observed that Zn was mainly associated with intermediate and light density fractions, this contaminant is generally more difficult to separate from the soil using density methods. The light fractions contained the lowest amount of contaminants. DM separation of the 0.5 A magnetic fraction concentrated a large part of the contaminants, Zn included, in heavy particles (densities >2.95) for both soil fraction sizes. DM separations of the 3.0 A and 6.0 A magnetic fractions mainly concentrated contaminants in the heavy (densities >2.95) or intermediate (2.40 – 2.95) density fractions, depending on the contaminants and the soil fraction size. DM separations of the non-magnetic fractions concentrated contaminants in the three density fractions depending on the contaminant and the soil fraction size. More specifically, Zn was mainly present in the light fraction for the 1-2 mm fraction and mainly present in the intermediate fraction for the 0.250-1 mm soil fraction. Sn was equally distributed in the dense and intermediate fractions for the

Table 3.4 Total contaminants mass proportion after magnetic and density separation for the 0.250-1 mm soil fraction

Fraction 0.250-1 mm	Soil proportion (%)	Density (g/cm ³)	Arsenic (%)	Copper (%)	Iron (%)	Lead (%)	Antimony (%)	Tin (%)	Zinc (%)
Complete soil									
>2.95	30	3.70	68	44	73	59	67	72	32
2.40-2.95	58	2.75	26	42	23	33	29	24	50
<2.40	13	2.24	6	14	4	8	3	5	17
Magnetic 0.5A fraction									
>2.95	23	3.87	49	23	60	17	18	44	22
2.40-2.95	6	2.73	3	4	3	3	2	2	6
<2.40	1	2.15	1	2	1	1	0	1	2
Magnetic 3.0A fraction									
>2.95	3	3.64	10	6	7	9	6	11	4
2.40-2.95	10	2.80	6	8	6	6	4	5	12
<2.40	2	2.25	1	2	1	1	1	1	3
Magnetic 6.0A fraction									
>2.95	2	3.46	5	4	3	4	4	4	3
2.40-2.95	6	2.76	3	5	4	4	2	2	8
<2.40	1	2.20	1	2	1	1	0	1	2
Non-magnetic fraction									
>2.95	2	3.83	4	10	2	28	40	12	3
2.40-2.95	35	2.71	13	25	10	20	21	14	24
<2.40	8	2.36	4	9	3	5	2	3	11
Mass balance			101%	102%	102%	83%	98%	93%	104%

Table 3.5 Total contaminants mass proportion after magnetic and density separation for the 1-2 mm soil fraction

Fraction 1-2 mm	Soil proportion (%)	Density (g/cm ³)	Arsenic (%)	Copper (%)	Iron (%)	Lead (%)	Antimony (%)	Tin (%)	Zinc (%)
Complete soil									
>2.95	34	4.33	69	52	76	56	70	74	36
2.40-2.95	40	2.79	21	32	17	31	22	19	37
<2.40	26	2.43	9	16	7	13	9	7	28
Magnetic 0.5A fraction									
>2.95	31	4.01	62	26	71	27	25	58	28
2.40-2.95	10	2.79	6	6	5	5	5	4	9
<2.40	4	2.40	2	3	1	2	1	1	5
Magnetic 3.0A fraction									
>2.95	1	3.85	4	4	3	7	13	4	2
2.40-2.95	10	2.88	9	10	7	9	7	8	12
<2.40	5	2.48	2	3	2	3	2	2	7
Magnetic 6.0A fraction									
>2.95	1	4.80	2	3	1	4	2	2	1
2.40-2.95	5	2.80	3	4	2	4	2	2	5
<2.40	3	2.44	1	2	1	2	2	1	3
Non-magnetic fraction									
>2.95	1	4.65	2	20	1	19	30	10	4
2.40-2.95	16	2.70	4	12	3	13	8	4	10
<2.40	14	2.40	4	8	3	6	4	3	13
Mass balance			91%	113%	94%	99%	115%	93%	99%

0.250-1 mm fraction and mainly present in the dense fraction for the 1-2 mm soil fraction. Sb and Pb were mainly present in the heavy fraction for both soil fractions. Fe was mainly present in the intermediate fraction for the 0.250-1 mm and equally distributed between the intermediate and light fractions for the 1-2 mm soil fraction. Cu was mainly present in the intermediate fraction for the 0.250-1 mm soil fraction and mainly present in the heavy fraction for the 1-2 mm soil fraction. Finally, As was mainly present in the intermediate fraction for the 0.250-1 mm soil fraction and equally distributed between the heavy and intermediate fractions for the 1-2 mm soil fraction. The proportion of soil mass removed by DM separation (addition of the heavy and light fractions) was estimated to be 43% for the 0.250-1 mm soil fraction and 60% for the 1-2 mm soil fraction.

Overall, density separation had higher removal efficiencies, especially for Pb and Sb, but magnetic separation was more efficient for the removal of Zn. However, DM separation removed less than 13% and 9% of the soil mass proportion for the 0.250-1 mm and 1-2 mm soil fractions, respectively compared to magnetic separation. Using both separation methods would result in the best contaminant removal efficiencies, but the soil mass proportion removed would be far too significant to be practicable for both soil fractions (65% for the 0.250-1 mm and 84% for the 1-2 mm).

Tables 3.6 and 3.7 show that the overlap between both separation methods is significant for both soil fractions. The overlap proportion is calculated by subtracting the efficiency of a separation method from the efficiency of the same separation method alone and represents the amount of contaminants that can be removed either by magnetism and density. Overlap was lower but still significant for Sb (29%) and Pb (34%) and higher for As (72%) and Fe (79%). Rikers et al. (1998b) found that contaminants were mainly associated with paramagnetic amorphous Fe and resulted in a slight overlap between gravity and magnetic separation methods. The contaminants were mainly associated with ferri/ferromagnetic materials and were removed at 0.5 A. However, the contaminants removed with the paramagnetic materials at 3.0 and 6.0 A were mainly in the intermediate density fraction (2.40-2.95), in agreement with the findings of Rikers et al. (1998b). The overlap between density separation and magnetic separation could likely be predicted by whether the contaminants are associated with ferri/ferromagnetic or paramagnetic materials.

Table 3.6 Total contaminant mass proportion removal efficiency for magnetic and density separation methods (0.250-1 mm)

Fraction 0.250-1 mm	Soil proportion (%)	Arsenic (%)	Copper (%)	Iron (%)	Lead (%)	Antimony (%)	Tin (%)	Zinc (%)
Magnetic removal	55	79	56	85	47	37	71	62
Magnetic removal only	23	13	17	13	13	8	10	26
Density removal	42	74	58	77	67	71	76	50
Density removal only	10	8	19	4	33	42	15	14
Magnetic and density removal	65	87	75	90	80	79	86	76
Non-magnetic and density removal	35	13	25	10	20	21	14	24
Overlap ¹	33	67	39	73	34	29	61	36

¹Calculated by adding the light and dense fractions from all the magnetic fractions (example for As from Table 3.4 : 49%+1%+10%+1%+5%+1%= 67%).

Table 3.7 Total contaminant mass proportion removal efficiency for magnetic and density separation methods (1-2 mm)

Fraction 1-2 mm	Soil proportion (%)	Arsenic (%)	Copper (%)	Iron (%)	Lead (%)	Antimony (%)	Tin (%)	Zinc (%)
Magnetic removal	69	90	61	94	63	59	83	73
Magnetic removal only	25	17	20	14	18	14	14	27
Density removal	60	79	68	83	69	78	81	63
Density removal only	15	6	27	4	24	34	13	17
Magnetic and density removal	84	96	88	97	87	92	96	90
Non-magnetic and density removal	16	4	12	3	13	8	4	10
Overlap ¹	45	72	41	79	45	45	68	46

¹Calculated by adding the light and dense fractions from all the magnetic fractions.

3.6 Conclusion

The present work led to a better understanding of the interactions between ferrous materials and the contaminants in a soil contaminated by MSW incinerator bottom ash. These experiments clearly demonstrated that for a soil polluted with MSW incinerator residues, only Fe, As and Sn are properly concentrated with magnetic separation. This magnetic separation was realized using low intensity magnetic induction only. As and Sn were mainly associated with ferri/ferromagnetic materials, either as a result of their origin in the waste or due to sorption onto iron-oxyhydroxydes. Thus, using HIMS is neither appropriate nor beneficial for our contamination type and origin. The use of both magnetic and density separation method would be the most efficient for the removal of contaminants, with efficiencies varying from 75% to 96% depending on the contaminant and the fraction size. However, the soil mass proportion removed is also very significant (65% for the 0.250-1 mm and 84% for the 1-2 mm). Moreover, a significant overlap exists between magnetic and density separation methods, reducing the economic interest of using both methods. The results clearly identify density separation as the most appropriate method to treat this inorganic contamination. However, the remediation efficiencies obtained with DM separation could be superior to efficiencies obtained with gravity separation technics. Indeed, DM separation is considered as the perfect density separation method because it allows for separation based on density only, without effects from particle size and shape. Therefore, density separation alone should be selected to treat this type of contaminated soil unless a specific problem is encountered with Fe, As or Sn or if a valorization opportunity exists for the magnetic fraction.

3.7 Acknowledgements

The work was supported by the National Sciences and Engineering Research Council of Canada and Tecosol Inc under grant RDCPJ418167-11. The authors thank Myriam Chartier, Emmanuelle Cecchi, Vincent Taillard and Lucie Coudert for their assistance.

4 CHAPITRE IV

Remediation of inorganic contaminants and polycyclic aromatic hydrocarbons from soils polluted by municipal solid waste incineration residues

Traitement des métaux et des HAP dans des sols pollués par les cendres d'incinération de déchets municipaux

Revue : Environmental Technology

Soumis le 17 juin 2015

Auteurs :

Philippe Jobin étudiant au doctorat, Institut national de la recherche scientifique (Centre Eau, Terre et Environnement), Université du Québec, 490 rue de la Couronne, Québec, Qc, Canada, G1K 9A9, tel: (418) 654-4677, Fax: (418) 654-2600, email: philippe.jobin@ete.inrs.ca

Lucie Coudert Associée de recherche, Institut national de la recherche scientifique (Centre Eau, Terre et Environnement), Université du Québec, 490 rue de la Couronne, Québec, Qc, Canada, G1K 9A9, tel: (418) 654-3793, email: lucie.coudert@ete.inrs.ca

Vincent Taillard Chargé de projet, Tecosol inc, 159, rue Caouette Ouest, Thetford Mines, QC, Canada, G6G 7M6, tel : (418) 654-3787, email : v.taillard@tecosol.com

Jean-Francois Blais Professeur, Institut national de la recherche scientifique (Centre Eau, Terre et Environnement), Université du Québec, 490 rue de la Couronne, Québec, Qc, Canada, G1K 9A9, tel: (418) 654-2575, Fax: (418) 654-2600, email: blaisjf@ete.inrs.ca

Guy Mercier Professeur, Institut national de la recherche scientifique (Centre Eau, Terre et Environnement), Université du Québec, 490 rue de la Couronne, Québec, Qc, Canada, G1K 9A9, tel: (418) 654-2633, email: guy.mercier@ete.inrs.ca

Note

L'étudiant est le premier auteur de cet article. Toute les manipulations, la rédaction, ainsi que le traitement des données ont été réalisés par l'étudiant en tenant compte des commentaires des autres auteurs.

Modifications exigées par le comité de lecture de la revue

Les commentaires des réviseurs n'ont pas encore été reçus.

4.1 Résumé

Trois sols contaminés par des cendres d'incinération de déchets municipaux et contenant du Cu, Pb Sb, Sn et du Zn ont été traités par des méthodes de séparation magnétique, par gravité et par flottation/lixiviation. Le procédé a enlevé entre 18% et 39% des contaminants présent dans le sol 1, entre 31% et 53% des contaminants présents dans le sol 2 et entre 42% et 56% des contaminants présents dans le sol 3. Les HAP étaient aussi présents dans le sol 3 et 64% de ceux-ci ont pu être enlevés par la procédé. Le mangétisme a été la technique la plus efficace pour l'enlèvement des métaux, suivi de la séparation par gravité et enfin la flottation/lixiviation. L'efficacité du procédé à été plus élevée pour le sol contenant la plus faible proportion de résidus d'incinération et donc les concentrations les plus faibles en contaminants. Le coût estimé du procédé, incluant les coûts directs et indirectes, varient de 82\$ à 88\$ la ton de sol traité selon la proportion de résidus d'incinération mélangée avec le sol.

Mots clés: décontamination des sols, contaminants inorganiques, attrition, séparation par densité, magnétisme

4.2 Abstract

Three soils polluted by municipal solid waste (MSW) incineration residues and containing various concentrations of Cu, Pb, Sb, Sn and Zn were treated using magnetism, gravity separation (jig and shaking table) and flotation/leaching. The process removed between 18% and 39% of the contaminants present in *soil 1*, between 31% and 53% of the contaminants present in *soil 2* and between 42% and 56% of the contaminants present in *soil 3*. PAHs were present only in *soil 3*, and the process removed 64% of its PAHs total content. Magnetism seemed to be the most efficient technique to remove metals from contaminated soils, followed by gravity separation and finally flotation/leaching. The global efficiency of the process was higher when the initial contaminant concentrations were lower (smaller proportions of MSW incineration residues). The estimated costs of the process, including direct and indirect costs, varied from \$82 to \$88 per ton of treated soil depending on the proportion of MSW incineration residues mixed with the soil.

Keywords: soil remediation, inorganic contaminants, attrition scrubbing, density separation, magnetism

4.3 Introduction

Soil contamination is typically caused by industrial activities, inappropriate waste management or agricultural chemicals. In the past, the improper disposal of municipal solid waste (MSW) incineration residues has contributed to the contamination of lands with inorganic and organic compounds. The incineration of MSW reduces the volume of the waste by approximately 90% and generates energy (Chimenos *et al.*, 1999). However, incineration also produces residues containing contaminants such as copper (Cu), lead (Pb), antimony (Sb), tin (Sn), zinc (Zn) and polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) (Ahmed *et al.*, 2010, Aucott *et al.*, 2010, Chung *et al.*, 2010, Hjelmar, 1996, Poletini *et al.*, 2004). These contaminants, except Sn, are included on the US Environmental Protection Agency (EPA) list of priority pollutants. The contaminants found in the incineration residues depend on the specific type of residues, the feed waste composition and the incinerator operation and technology (Hjelmar, 1996).

In the United States, 77% of the contaminated sites enumerated on the priority list are polluted by metals, whereas 87% are polluted by a combination of metals and organic compounds (Bisone *et al.*, 2013). In the province of Québec (Canada), metals are present at 27% of the contaminated sites, whereas 15% are polluted by a combination of metals and organic compounds (Hébert *et al.*, 2013). Therefore, in North America, the need for an efficient and economically viable technology to address these types of contamination is important.

There are numerous technologies developed for the treatment of metal-contaminated soils. The most common are excavation/disposal in a secured site (dig and dump) and solidification/stabilization (S/S). These methods aim to isolate and contain the contaminants to protect the environment and the food chain. Other technologies for the treatment of metal-contaminated soils are based on extraction methods such as chemical/biological leaching, physical separation, electrokinetic processes and pyrometallurgical and bio/phytoremediation techniques (Mulligan *et al.*, 2001a). Among these extraction methods, physical separation methods are usually chosen because of their low cost and simplicity (Mercier *et al.*, 2001). Physical separation methods are based on the physical properties of the soil particles, such as size, density, magnetic susceptibility, surface hydrophobic properties, etc. (Dermont *et al.*, 2008b). The most common physical separation methods are screening, gravity concentration, magnetic separation, hydrodynamic classification, froth flotation and attrition scrubbing (Gosselin *et al.*, 1999). These methods are generally effective on the sandy fractions of the soil, whereas chemical leaching is preferred for the finer fractions (Mercier *et al.*, 2002). Moreover, these

methods are applicable to metals present in a particulate form, and their efficiencies increase with the liberation degree of the contaminants (Dermont *et al.*, 2008a).

To the author's best knowledge, very few research studies focused on soils contaminated by MSW incineration residues. Nevertheless, the coarse fractions of soils polluted by MSW incinerator residues have been treated for metals by gravity separation (Mercier *et al.*, 2007) or a combination of magnetic and gravity separation (Mercier *et al.*, 2002). In such soils, contaminants are expected to be found under particulate form with a low liberation degree because of the exposure to high temperatures during the incineration process. Indeed, incineration causes the melting of some of the materials present in the MSW, reducing the liberation degree of contaminants. To address this challenge, attrition has proven to be effective to increase the liberation degree of contaminants and improve the efficiency of gravity separation (Jobin *et al.*, 2015). Finally, wet physical separation methods were used to recover valuable secondary materials from the MSW bottom ash and reduce the concentration of contaminants to allow the use of the bottom ash as building material (Muchová, 2010).

When organic contaminants are also present with metals in a soil, remediation can be more difficult (Bisone, 2012). Bergeron (2005) described a remediation process for the removal of metals using physical separation methods (jig and spiral) and a separate step for the removal of organic compounds using attrition scrubbing with a surfactant. Mouton *et al.* (2009a) described a single step process for simultaneously removing metals and organic compounds using flotation with an amphoteric surfactant and NaCl at pH 3.0. This process is in fact a combination of flotation and chemical leaching in a single froth flotation cell. However, this technology was developed and tested on soil containing HAPs and Pb only, without any precision on the source or nature of the contaminants.

The objective of the present study was to select an efficient and economically viable process train of physical separation methods for the treatment of organic and inorganic contaminants present in soils polluted by MSW incineration residues. The efforts mainly focused on metallic contamination, but a validation/adaptation of the process was made for PAHs. The process was evaluated for its efficiency in terms of contaminant removal and soil recovery, as well as for economic considerations. The effectiveness of the process was evaluated in the context of the laws and regulations in application in the province of Québec (Canada) (MDDEP, 2003a).

4.4 Material and Methods

4.4.1 Soil sampling

Three soils polluted by MSW incineration residues and containing Cu, Pb, Sb, Sn, Zn and PAHs were collected from a brownfield located in Québec City (Québec, Canada). Approximately 160 kg of each soil were excavated using a backhoe-loader from each trench and transported to the research facility into plastic containers. The three soils collected were chosen for their level in contaminants (low, moderate and high) and based on an exhaustive characterization study of the site. The proportions of MSW incinerator residues in the soils were obtained from the characterization study of the site and were confirmed by the analysis of the ferromagnetic content and the contaminant contents in the soils. The soils were wet sieved using a mechanical 76-cm diameter Sweco™ to characterize the granulometric distribution and to isolate the seven soil fraction sizes (<0.250 mm; 0.250-1 mm; 1-2 mm; 2-4 mm; 4-12 mm; 12-25 mm and >25 mm) studied in this research. The initial inorganic contaminants and PAH contents were characterized by randomly collecting six samples of approximately 100 g from each fraction size during the sieving operation. For fraction sizes over 4 mm, larger soil quantities were collected (up to five kg for the >25 mm fraction size) and crushed using a jaw crusher (Fritsch model Pulverisette 1). Samples of approximately 100 g were obtained from the crushed material using a laboratory splitter (Sepor Inc., Wilmington, CA).

4.4.2 Magnetic separation

The coarse fraction sizes from each soil (4-12 mm, 12-25 mm and >25 mm) were submitted to a magnetic separation using a permanent magnet. Soil particles were spread over a non-magnetic surface to obtain a single layer of particles. A neodymium magnet (5.1 cm x 5.1 cm x 10.2 cm, Apex magnet, West Virginia, USA) was passed at a distance of one centimeter over the soil particles, exposing the particles to a magnetic field of approximately 0.3 Tesla. The soil particles that were attracted to the magnet were removed and composed the magnetic contaminated fraction. The remaining non-magnetic particles composed the treated fraction.

4.4.3 Density separation

The intermediate soil fraction sizes from each soil (0.250-1 mm, 1-2 mm and 2-4 mm) were treated using gravity separation methods. A conditioning step using attrition scrubbing was used to increase the efficiency of gravity separation (Jobin *et al.*, 2015). A 10-L attrition cell equipped

with three deflectors and a Lightnin™ attrition scrubber (EV1P25 model) was used to treat three batches of 1.5 kg from each soil fraction size. Tap water was added to the soil to produce a 30% solid slurry (w/w). Mixing speed was set to 1,500 rpm and attrition duration was fixed at 10 min. After the attrition treatment, the sludge composed of the fine particles (below 0.250 mm for the 0.250-1 mm fraction, below 1 mm for the 1-2 mm fraction and below 2 mm for the 2-4 mm fraction) was separated by wet sieving from the attrited soil. The resulting sludge and attrited soil were dried at 65°C and weighted to determine their mass proportions.

Gravity separation for the attrited 0.250-1 mm and the 1-2 mm soil fraction sizes was realized on a Wilfley™ table from Outokumpu Technology equipped with a 13A-SA model table deck 1.02 m long and 0.46 m wide. Dry soil samples were fed with a Fritsh vibratory feeder (Laborette 24 model) at a rate of 100 g per minute. Three samples (replicates) of 300 g of attrited soil were treated on the shaking table and separated into three products: tailing (low density), middling (intermediate density) and concentrate (high density). The adjustable parameters of the shaking table have been determined during preliminary trials and based on the soil mass proportions obtained from a dense media (DM) separation. Indeed, DM separation allows a separation based on the density of the particles only and was used to predict the efficiency of the gravity separation. Tetrabromoethane (TBE) was used as a DM to separate soil particles at a density of 2.95 g cm⁻³. Ethanol was used to dilute TBE and obtain a TBE/ethanol solution of a density of 2.40 for a second separation. Dry soil samples of approximately 80 g were mixed into a decantation flask with approximately 200 mL of TBE. A time of about eight hours was left to separate the soil particles according to their density. Heavy particles were first collected from the bottom of the decantation flask on a funnel with a 25 µm porosity paper filter. The soil was left to drain to remove the excess TBE. The light particles were left inside the decantation flask for a second separation with a TBE/ethanol solution (density = 2.40). The density of the TBE/ethanol solution was verified and corrected between each separation batches because of the ethanol volatility, despite the use of stoppers to reduce this effect. The collected soil fractions were rinsed with ethanol and dried at 65°C for five days to volatilized residual ethanol and TBE, which would cause weight and density measurement errors. Hence, the dense media separation generated three separation products from the original soil samples: concentrate (density >2.95), middling (density 2.40-2.95) and tailing (density <2.40).

Gravity separation for the attrited 2-4 mm fraction size was realized on a laboratory jig. The separation chamber had a total volume of 140 cm³. Balls were made of silicon nitride (Si₃N₄)

with a diameter of 5.6 mm and a density of 3.2. A water flow of 2.2 L min^{-1} was used. Dry soil samples were fed with a Fritsh vibratory feeder (Laborette 24 model) at a rate of 50 g per minute. Three samples (replicates) of 150 g of attrited soils were treated on the jig and separated into two products: treated soil (low and intermediate density) and concentrate (higher density). The adjustable parameters of the jig were obtained from preliminary trials based on DM separations. Each separation product generated was collected and dried at 65°C to determine the mass proportion and the inorganic contaminant concentrations. Density measurements were performed on all separation products using an AccuPyc™ 1330 gas pycnometer (Micromeritics inc, Norcross, GA).

4.4.4 Flotation/leaching

Flotation/leaching was realized on the $<0.250 \text{ mm}$ soil fraction size based on the work of Mouton *et al.* (2009a) carried out on the decontamination of soils polluted by Pb and PAHs. A mass of 200 g of dry soil was mixed with an aqueous solution (10% w/w pulp density) containing 3 M NaCl and 0.2 g L^{-1} of Cocamydopropylhydroxysultaine (CAS). The pulp was placed in a 2 L Wemco Agitair flotation cell (FLSmith USA, Midvale, Utha) with an agitation set at 1,000 rpm. An initial 10-min conditioning period (with agitation but no air flow) was used to adjust the pH of the pulp to 3 using concentrated sulfuric acid (H_2SO_4 , purity = 93%, CHEMCO, Saint Augustin-de-Desmaures, QC, Canada). Three flotation steps (air flow of 4 L min^{-1}) of 3 min were realized, and each flotation step was preceded by a conditioning step (with agitation but no air flow) of 5 min. After each flotation step, the volume of solution lost in the froth (between 20% and 40% w/w) was replaced by new solution (3 M NaCl and 0.2% w/w CAS). At the end, the treated soil was separated by decantation and rinsed with tap water to remove as much NaCl as possible.

4.4.5 Upstream elutriation column

The PAHs were expected to be retrieved in the light fraction from the shaking table and the froth from the flotation. However, the jig did not allow for the separation of the light fraction from the 2-4 mm fraction size. An additional separation step using an elutriation column was used to remove PAHs from the 2-4 mm fraction size from *soil 3*. A 30-cm diameter vertical column with an upstream flow of 120 L min^{-1} was used to separate the light fraction from the soil fraction. A mass of 1.25 kg of dry attrited soil was introduced at the top of the column, resulting in a proportion of solid inside the column of 7% (w/w). The separated light fraction was collected from the top on a 0.250 mm sieve while the treated soil was recuperated from the bottom of the

column after a 3 min separation step. Three repetitions of 1.25 kg of dry soil were realized for a total of 4.5 kg of soil.

4.4.6 Microanalysis

The composition and morphology of representative soil particles from the 0.250-1 mm and 1-2 mm fraction sizes of *soil 1* were studied using a scanning electron microscope (SEM, Carl Zeiss EVO® 50) equipped with an X-ray energy dispersion spectrometer (EDS, Oxford Instrument, INCAx-sight EDS). Polished thin sections (26 x 46 mm) of soil were coated with gold using an SPI™ sputter coater module. Soil particle images were generated with a Quadra-Pole Backscatter detector with a 20 kV accelerating voltage and a current beam of 100 µA. Minerals were identified by X-ray diffraction (XRD) analysis using a Siemens D5000 diffractometer with Cu K α radiation. Scans were taken for 2 θ over 5° to 80° at 0.02°/s.

4.4.7 Analytical methods

Soil samples were milled with a Fritsh ball mill (Pulverisette 6 model) using a tungsten bowl and balls for the analysis of inorganic contaminants only. A mass of 0.5 g was digested in duplicates (sub-samples) following the official method (MA. 205 – Mét/P 1.0) of the Québec government using HCl and HNO₃ at 90°C. (CEAEQ, 2003) Field blanks and reference certified soil samples (CNS392-50G) were also digested. Inorganic contaminant concentrations were measured by ICP-AES (Varian, Mississauga, ON, Canada), and the analytical results were controlled with certified laboratory control samples (PlasmaCal 900-Q3-100S, SCP Science, Montréal, QC, Canada), a laboratory fortified matrix and repeated laboratory blanks.

The cationic exchange capacity (CEC), total carbon (C_{tot}) and organic carbon (C_{org}) were obtained on soil samples sieved at 2 mm and analyzed by an external laboratory (Agri-direct, Longueuil, QC, Canada). The pH of the soils was measured using a pH meter (Accumet Research AR25, Fisher scientific, Nepean, ON, Canada) following the methodology MA. 100 pH 1.1. (CEAEQ, 2014) The silt and clay percentages were obtained using a Mastersizer laser granulometer (Malvern Inc., Orsay, France).

PAHs were extracted from approximately 10 g of soil by solubilization in 25 mL of dichloromethane using an ultrasonic bath for 30 min. A recovery standard was added before the extraction. The liquid was collected, and three grams of silica gel and other recovery standards were added. The PAH extracts were quantified by gas chromatography-mass spectrometry (Perkin Elmer, model Clarus 500, with column type ZB-50, 30 m long x 0.25-mm diameter x

0.25 m film thickness) operated with a mass range between m/z 50 and 450. The gas chromatograph was maintained at 80°C for 1 min, then heated at a rate of 15°C min⁻¹ up to 220°C, then heated at a rate of 8°C min⁻¹ up to 310°C and held for 6 min. Finally, the temperature was raised 10°C min⁻¹ up to 330°C and held for 10.42 min. The injection temperature was maintained at 280°C. Helium was the carrier gas, and the column flow was maintained at 1.0 mL min⁻¹. A PAH mixture containing 27 PAHs (AccuStandard, USA) was added as the standard.

4.4.8 Calculations

The contaminants removed using the separation methods (magnetism, attrition and gravity separation) were concentrated in a smaller fraction of the soil. This fraction of soil removed during the treatment is called soil removal (SR) and should be disposed into a secured landfilling site. The contaminant removal percentage values were calculated from the following equation:

$$\text{Removal (\%)} = \left(1 - \left(\frac{\text{Final contaminant concentration (mg.kg}^{-1}\text{)}}{\text{Initial contaminant concentration (mg.kg}^{-1}\text{)}} \right) \right) * 100$$

The initial contaminant concentration was evaluated on the soil before treatment, whereas the final contaminant concentration was evaluated from the treated volume of the soil.

4.4.9 Techno-economic evaluation

A techno-economic evaluation was made based on the standard procedures in engineering economics from Brown (2007) and Ulrich (1984) and based on the North American market conditions. The cost evaluation was based on a mobile plant with a treatment capacity of 200 t d⁻¹ of dry soil for 250 d y⁻¹ and an operating period of 24 h d⁻¹ (which represents 50 400 t y⁻¹). The costs of equipments were obtained from general equations based on the treatment capacity of each piece of equipment and the Marshall and Swift Equipment Cost Index. The total investment included the fixed capital costs (including the costs of the equipment, installation and engineering) and the working capital. The capital costs were evaluated for a reimbursement period of 10 years and a 5% interest rate. The labor cost was estimated using 25 USD h⁻¹ for 6 full time employees with supervision. The following costs for utilities and chemicals were used: 0.05 USD kWh⁻¹ for electricity, 0.05 USD m⁻³ for process water,

0.08 USD kg⁻¹ for H₂SO₄, 0.50 USD kg⁻¹ for NaOH, 1 USD kg⁻¹ for CAS, 0.50 USD kg⁻¹ for FeCl₃ and 7 USD kg⁻¹ for polymers. The costs for the management of the wastes were evaluated to 65 USD t⁻¹. The solid/liquid separation for particles over 0.250 mm was realized by sieving, whereas the separation for particles below 0.250 mm was realized by flocculation with polymers and decantation.

4.5 Results and Discussion

4.5.1 Soil characteristics

Soil 1 is mainly composed of incineration residues (>90%) and should technically be considered a residual material and not a soil (Table 4.1). This consideration is important because the management of residual material in the Province of Québec is different of the management of a contaminated soil. *Soil 1* was chosen and treated only to select the best remediation methods and not to reach any specific remediation goals. The selected methods composing the treatment process were then validated on *soil 2* containing 40% to 60% of the incineration residues and on *soil 3* containing 20 to 30% of the incineration residues. Indeed, sites where the incineration residues have been disposed contain a mix of soil and incineration residues in various proportions. These sites are characterized by a tremendous spatial heterogeneity in contaminant contents. The pH values of the three soils were slightly alkaline (8.2-8.3) and were very similar despite the presence of different proportions of MSW incineration residues. The total carbon varied from 3.3% to 7.0%, and the organic carbon varied from 1.9% to 5.8%. Both the total and the organic carbon contents increased proportionally to the content of MSW incineration residues present in the soils. Indeed, MSW incineration residues are known to contain unburned organic matter and carbonates formed during the weathering phase of the residues (Rendek *et al.*, 2006). The clay proportion was very low (<1.1%) in the three soils, and the silt proportion varied from 7.3% to 15.0%. The texture class was sand for *soil 1* and *soil 2* and loamy sand for *soil 3* (USDA, 1993). Considering their origin, these three soils could be classified as urban soils or Technosols (IUSS, 2014).

Table 4.1 Main characteristics of the three soils used in this study

Soils	Incineration residues (%)	pH	C _{tot} (%)	C _{org} (%)	Clay (%)	Silt (%)
Soil 1	>90	8.3	7.0	5.8	0.3	7.3
Soil 2	40-60	8.2	4.4	3.0	0.5	11
Soil 3	20-30	8.2	3.3	1.9	1.1	15

Table 4.2 presents the initial metal concentrations (mg kg⁻¹) measured in each fraction size of the three studied soils and the legal limits imposed by the Québec government (MDDEP, 2003b). For Sb, there is no limit in the province of Quebec. Therefore, the values from the

Canadian Council of Ministers of the Environment (CCME) were used (CCME, 1999). Criteria B are the limits for residential use of the land, whereas criteria C are the limits for commercial or industrial use. Beyond criteria C, no use of the land is allowed, and rehabilitation is mandatory for any further development of the site. To comply with specific criteria, all of the contaminants present in a soil must have a concentration below their respective criteria values. Data show that all fraction sizes of *soil 1* contained metals, and the concentration slightly increased as the particle size decreased. However, for *soil 2* and *soil 3*, the coarser fraction sizes tend to be much less contaminated. Usually, contaminants are more concentrated in the fine particles, whereas the coarser particles sometimes do not even need to be treated (Mercier *et al.*, 2001, VanBenschoten *et al.*, 1997). *Soil 1* contained 68% of soil particles larger than 2 mm, which is characteristic of incineration bottom ash (Chimeno *et al.*, 1999). Indeed, the high temperature during the incineration process led to the creation of large agglomerated particles called slag. *Soil 2* and *soil 3* also contained high proportion of particles larger than 2 mm (63% and 44%, respectively). However, this can be explained by the presence of a good amount of natural stones in *soil 2* and the presence of concrete agglomerates probably coming from construction wastes in *soil 3*. The presence of these concrete agglomerates probably also explain the alkaline pH of *soil 3*.

Soil 1 contained five metals (Cu, Pb, Sb, Sn and Zn) over criteria C, *soil 2* contained three metals (Cu, Pb and Sn) over criteria C, and *soil 3* contained four metals (Cu, Pb, Sn and Zn) over criteria B (Table 4.2). *Soil 3* also contained five PAHs slightly over criteria B, mainly in the 0.250-4 mm fraction sizes (Table 4.3). XRD analysis (not shown) showed that the dominant minerals in *soil 1* (0.250-2 mm soil fraction size) were quartz (SiO_2), calcite (CaCO_3), magnetite (Fe_3O_4), albite ($\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$) and microcline (KAlSi_3O_8). The SEM-EDS analysis showed that lead carbonate was the dominant form of Pb and was found in 66% of the Pb bearing particles (Figure 4.1). The form $\text{Pb}_a\text{Sn}_b\text{O}_c(\text{CO}_3)_d$ and lead oxides were also found in 23% and 13% of the Pb bearing particles, respectively. The carrying phase of Pb bearing particles was mainly silicates. Sn was mainly found in the form of oxides, sometimes mixed with Pb and Sb, and the carrying phase, when present, was systematically iron oxides. Indeed, Sn is closely associated with Fe in soils contaminated by MSW incineration residues because of its origins from tin-coated iron alloy cans present in the wastes. These findings on Pb and Sn are comparable to those made by Mercier *et al.* (2001) on similar soils.

Table 4.2 Inorganic contaminant initial concentrations (mg/kg), proportion of each fraction size (%) and Québec legal limits for the three studied soils

Fraction	Proportion	Cu	Pb	Sb	Sn	Zn
Soil 1 (>90% incineration residues)						
>25 mm	10%	2,182 ± 1,488	2,040 ± 777	31 ± 10	683 ± 221	1,603 ± 221
12-25 mm	18%	1,393 ± 694	1,344 ± 478	20 ± 4	560 ± 31	1,218 ± 221
4-12 mm	27%	1,797 ± 231	1,758 ± 471	25 ± 7	714 ± 126	1,482 ± 279
2-4 mm	13%	2,234 ± 383	2,858 ± 299	44 ± 15	951 ± 87	2,304 ± 91
1-2 mm	7%	1,882 ± 158	4,741 ± 306	80 ± 11	1,176 ± 95	3,014 ± 42
0.250-1 mm	12%	1,590 ± 117	5,118 ± 1237	79 ± 16	1,229 ± 122	3,329 ± 242
<0.250 mm	12%	1,745 ± 87	4,041 ± 173	53 ± 4	1,254 ± 68	2,940 ± 143
Complete soil	100%	1,797 ± 427	2,775 ± 528	41 ± 9	879 ± 104	2,077 ± 199
Soil 2 (40-60% incineration residues)						
>25 mm	15%	72 ± 2	115 ± 5	4 ± 1	39 ± 3	135 ± 9
12-25 mm	13%	515 ± 112	409 ± 23	12 ± 1	238 ± 8	364 ± 16
4-12 mm	22%	1,068 ± 124	938 ± 21	20 ± 3	439 ± 30	931 ± 63
2-4 mm	13%	793 ± 108	2,216 ± 498	32 ± 5	581 ± 48	1,083 ± 121
1-2 mm	8%	648 ± 82	2,274 ± 106	40 ± 9	534 ± 141	1,404 ± 19
0.250-1 mm	12%	338 ± 21	1,727 ± 349	36 ± 1	351 ± 81	1,144 ± 21
<0.250 mm	17%	669 ± 22	1,965 ± 24	27 ± 3	411 ± 24	2,411 ± 28
Complete soil	100%	625 ± 69	1,293 ± 127	23 ± 3	365 ± 39	1,082 ± 42
Soil 3 (20-30% incineration residues)						
<25 mm	8%	506 ± 50	132 ± 5	4 ± 1	96 ± 7	373 ± 14
12-25 mm	12%	220 ± 23	179 ± 15	4 ± 1	132 ± 12	280 ± 18
4-12 mm	14%	530 ± 46	383 ± 32	7 ± 1	241 ± 19	784 ± 38
2-4 mm	10%	610 ± 165	819 ± 352	9 ± 6	342 ± 19	687 ± 56
1-2 mm	7%	402 ± 74	1,409 ± 535	14 ± 3	365 ± 13	717 ± 45
0.250-1 mm	22%	201 ± 13	622 ± 71	8 ± 1	251 ± 12	481 ± 21
<0.250 mm	28%	293 ± 73	682 ± 140	7 ± 1	291 ± 55	921 ± 187
Complete soil	100%	353 ± 58	594 ± 135	8 ± 2	252 ± 25	652 ± 74
Criteria B		100	500	20 ¹	50	500
Criteria C		500	1,000	40 ¹	300	1,500

¹There is no limit values for Sb in the Québec legislation. The values reported above are from the Canadian Council of ministries of the environment [29].

Table 4.3 Initial and final PAH concentrations (mg/kg) in soil 3 and soil removal (SR) during the treatment and the efficiency of the treatment in terms of PAHs removal yields (%)

	Proportion	SR	PH	BAN	CH	B(b)FLAN	B(a)P	Σ PAH ¹
Initial soil			5.2 ± 3.4	1.8 ± 1.0	1.7 ± 0.9	1.2 ± 0.7	1.5 ± 1.0	27 ± 13
>4 mm ²	33%		2.3 ± 1.5	0.7 ± .3	0.6 ± 0.3	0.4 ± 0.2	1.1 ± 0.5	13 ± 7
0.250-4 mm	39%		8.4 ± 4.5	2.6 ± 1.3	2.5 ± 1.3	1.7 ± 1.0	1.9 ± 1.1	40 ± 23
<0.250 mm	28%		4.0 ± 1.0	2.1 ± 0.4	2.0 ± 0.3	1.6 ± 0.3	1.5 ± 0.3	27 ± 6
Final soil			1.8 ± 1.6	0.6 ± 0.5	0.6 ± 0.5	0.4 ± 0.3	0.6 ± 0.6	9.7 ± 8.1
>4 mm ²	29%	12%	2.3 ± 1.5	0.7 ± .3	0.6 ± 0.3	0.4 ± 0.2	1.1 ± 0.5	13 ± 7
0.250-4 mm	31%	21%	0.4 ± 0.4	0.1 ± 0.1	0.1 ± 0.1	0.1 ± 0.1	0.1 ± 0.1	2.4 ± 3.3
<0.250 mm	15%	45%	3.4 ± 0.9	1.4 ± 0.4	1.3 ± 0.4	0.8 ± 0.3	0.9 ± 0.3	18 ± 6
Removal			66%	67%	67%	72%	57%	64%
>4 mm ²			---	---	---	---	---	---
0.250-4 mm			95%	96%	95%	95%	95%	94%
<0.250 mm			15%	31%	33%	51%	39%	32%
Criteria B			5	1	1	1	1	
Criteria C			50	10	10	10	10	

SR: Soil removal PH: Phenanthrene BAN: Benzo(a)anthracene CH: Chrysene B(b)FLAN: Benzo(b)fluoranthene B(a)P: Benzo(a)pyrene

¹ Summation of the 27 PAH analyzed

² This soil fraction size was not treated for PAHs.

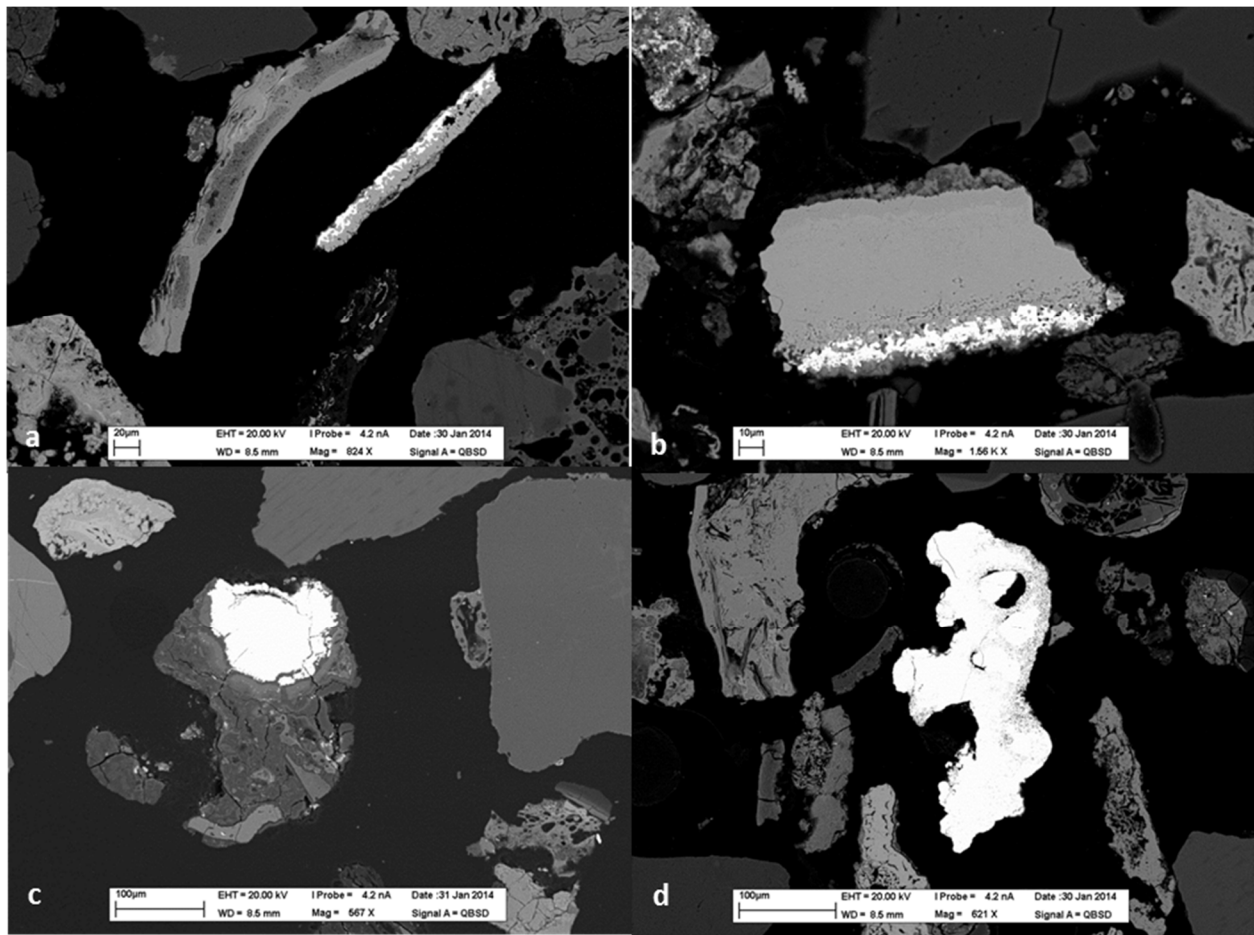


Figure 4.1 SEM-EDS images of soil particles containing lead and tin (appear brighter) a) and b) thin layer of tin oxide associated to iron oxide, c) lead carbonate associated to silicates, d) lead oxide without carrying phase

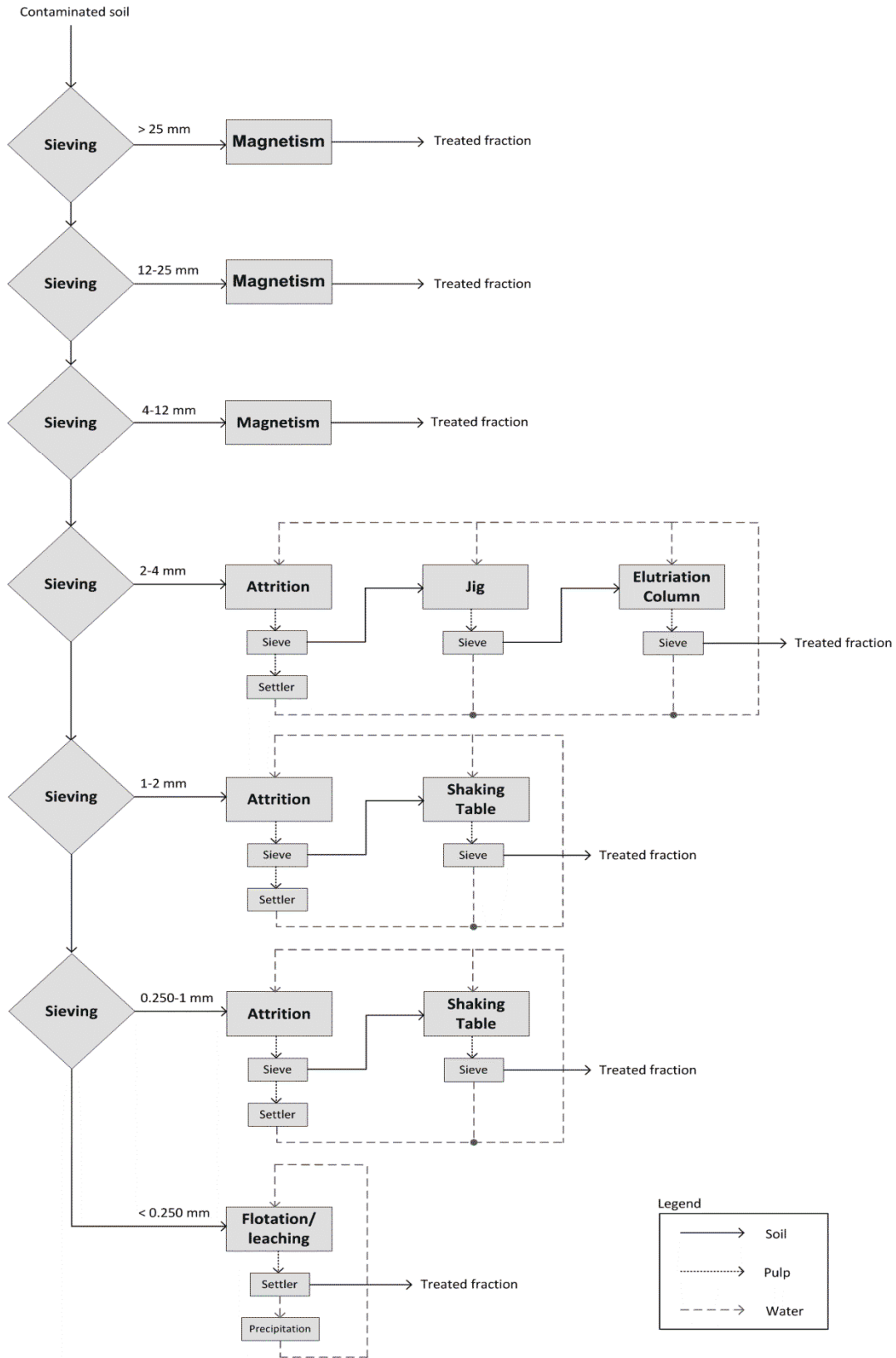


Figure 4.2 Diagram of the treatment process

4.5.2 Process train

The global process is presented in Figure 4.2. The process is composed of a magnetic separation for fraction sizes over 4 mm, an attrition conditioning for the fraction sizes 0.250-4 mm, followed by density separation using a jig for the 2-4 mm fraction size and a shaking table for the 0.250-2 mm fraction size. The 0.250-1 mm and 1-2 mm fraction sizes were treated separately to minimize misclassification caused by the size of the particles. (Manser *et al.*, 1991) An additional step using an elutriation column was necessary for *soil 3* because PAHs were present in this soil. Finally, the finer particles (<0.250 mm) were treated using flotation/leaching combined step technology. This process involved an initial wet sieving of the soil and resulted in a treated volume of soil that can be replaced on the site and a contaminated volume of soil that must be securely disposed. This process also involved solid/liquid separations using various sieves for particles larger than 0.250 mm and a flocculation and decantation process for the separation of particles smaller than 0.250 mm. The precipitation of soluble metals from the leachate after the leaching step is also included. Data for these steps are not presented, but they are considered in the techno-economic evaluation.

4.5.2.1 Performances of the Process Train to Remove Inorganic Contaminants

Table 4.4 shows the metal concentrations for each soil fraction size after treatment and the soil removal proportion. It can be seen that the process removed 46% of *soil 1* and did not lower the concentration of Cu, Pb, Sn and Zn under criteria C. For *soil 2*, the process removed 30% of the soil and lowered all of the metal concentrations below criteria C. Finally, for *soil 3*, the global process removed 25% of the soil and did not lower the metal concentrations of Cu and Sn below criteria B.

Table 4.5 shows the removal efficiencies when combining the fraction sizes for each separation method. For the three soils, the magnetic separation removal efficiency was excellent and generally superior to the global process removal efficiency, especially for Sn. According to Mercier *et al.* (2001), Sn is associated with Fe because of its origins from tin-coated iron alloy cans present in the MSW incineration residues. SEM observations confirmed that Sn was almost systematically associated with iron oxides (Figure 4.2a and 4.2b). The removal of Cu was lower for *soil 1* and *soil 2* because of the presence of metallic copper parts in the larger fraction

Table 4.4 Inorganic contaminant concentrations and soil removals (SR) for the three studied soils after treatment

Treatment	Fraction (mm)	Initial prop. (%)	SR (%)	Final prop. (%)	Cu (mg/kg)	Pb (mg/kg)	Sb (mg/kg)	Sn (mg/kg)	Zn (mg/kg)
Soil 1 (>90% incineration residues)									
Initial soil	---	100	---	100	1,797±427	2,775±528	41±9	879±104	2,077±199
Magnetism	>25	10	69	3	2,091±334	874±541	12±14	60±19	903±874
Magnetism	12-25	18	52	8	691±426	951±550	8±6	68±7	693±107
Magnetism	4-12	27	50	13	1,494±283	887±101	11±2	157±57	1,032±246
Attrition + Jig	2-4	13	34	9	1,305±194	1,849±386	39±10	674±121	2,019±166
Attrition + ST	1-2	7	52	3	1,483±100	2,090±125	43±1	713±21	2,910±126
Attrition + ST	0.250-1	12	39	8	1,394±108	2,379±210	38±6	964±98	3,074±190
Flotation/leaching	<0.250	13	24	10	1,478±298	3,204±385	52±10	1,100±104	2,007±530
Treated soil		100	46	54	1,356±261	1,739±309	28±7	533±69	1,703±283
Soil 2 (40-60% incineration residues)									
Initial soil	---	100	---	100	625±69	1,293±127	23±3	365±39	1,082±42
Magnetism	>25	15	22	11	7±1	24±6	0	3±1	91±4
Magnetism	12-25	13	18	10	42±16	130±2	1	36±4	135±9
Magnetism	4-12	22	31	15	905±62	378±54	4±2	54±6	642±164
Attrition + Jig	2-4	13	33	9	365±13	805±81	21±2	346±7	946±85
Attrition + ST	1-2	8	33	5	508±18	978±8	28±3	333±10	1,118±19
Attrition + ST	0.250-1	12	23	9	326±4	894±62	22±1	252±10	1,065±45
Flotation/leaching	<0.250	17	46	9	670±11	1,726±13	24±4	388±37	1,674±25
Treated soil		100	30	70	424±20	630±32	12±1	171±5	743±56
Soil 3 (20-30% incineration residues)									
Initial soil	---	100	---	100	352±58	594±135	8±2	252±25	652±74
Magnetism	>25	8	8	7	34±4	21±1	2±1	8±1	70±5
Magnetism	12-25	12	10	10	37±4	82±41	1±1	13±1	215±27
Magnetism	4-12	14	15	12	162±57	161±28	3±0.1	36±12	239±51
Attrition + Jig	2-4	10	21	8	227±50	303±62	6±3	153±34	477±84
Attrition + ST	1-2	7	27	5	197±26	342±64	5±0.3	189±9	381±19
Attrition + ST	0.250-1	22	19	17	140±10	283±9	3±0.2	160±2	313±7
Flotation/leaching	<0.250	28	45	15	271±24	412±77	6±3	225±4	384±73
Treated soil		100	25	75	165±19	263±23	4±1	128±7	345±24
Criteria B					100	500	20	50	500
Criteria C					500	1,000	40	300	1,500

Table 4.5 Efficiencies in terms of inorganic contaminant removals (%) and soil removals (SR) for the technologies used in the process train

Process	Fraction (mm)	Initial prop. (%)	SR (%)	Final prop. (%)	Cu (%)	Pb (%)	Sb (%)	Sn (%)	Zn (%)
Soil 1									
Magnetism	>4	55	54	25	25	46	58	83	37
Attrition + gravity	0.250-4	33	40	20	28	49	40	28	9
Flotation/leaching	<0.250	12	24	9	15	21	2	12	32
Process removal %				54	25	37	32	39	18
Soil 2									
Magnetism	>4	50	25	37	6	21	60	80	35
Attrition + gravity	0.250-4	33	29	23	36	57	36	37	13
Flotation/leaching	<0.250	17	46	9	0	12	11	5	31
Process removal %				70	32	51	48	53	31
Soil 3									
Magnetism	>4	33	12	29	79	61	63	88	63
Attrition + gravity	0.250-4	39	21	31	50	64	58	45	37
Flotation/leaching	<0.250	28	45	15	8	40	18	23	58
Process removal %				75	53	56	42	49	47

sizes of these soils. Therefore, for soils with high incineration residues proportions, an eddy current separator should be considered to remove Cu as well as other non-ferrous metals and to improve the efficiency of the process. The soil removal (SR) for magnetic separation was the highest among the separation methods for *soil 1* (54%) but was the lowest for *soil 2* (25%) and *soil 3* (12%). The soil removed by magnetic separation is well-correlated ($r = 0.996$) to the proportions of incineration residues present in these soils, indicating that the source of iron is mostly from incineration residues. Gravity separation, preceded by attrition conditioning, showed good removal efficiencies for Cu, Pb, Sb and Sn but not for Zn, especially for *soil 1* and *soil 2*. Indeed, Zn is difficult to remove using density separation from melted material because there is often a weak correlation between the Zn concentrations and the density of the soil particles (Bisone *et al.*, 2013). Table 4.5 also shows that flotation/leaching had the lowest removal efficiency for the three soils, with an exception for Zn. When looking at the global process removal, it appears that the process efficiency was impacted by the proportion of incineration residues. The global process removal was lower when a high proportion of incineration residues was mixed with the soil for all of the metals studied. The best removal efficiencies were obtained for Cu, Pb and Zn for *soil 3* and Sb and Sn for *soil 2*.

4.5.2.2 Performance of the Process Train to Remove PAHs from Soil 3

Table 4.3 shows the final PAH concentrations for the 0.250-4 mm and <0.250 mm fraction sizes after treatment by gravity separation and by flotation/leaching, respectively. PAHs from the >4 mm fraction sizes were not analyzed after the magnetic separation as we did not expect any impact on the PAHs contents. However, as the >4 mm fraction sizes had low concentrations in PAHs, no other specific treatment was applied to these fraction sizes to separated PAHs. The summation of the 27 PAHs analyzed during this research was calculated to provide a global view for all of the PAHs present in the soil. The process succeeded to reach the criteria B for all PAHs that exceeded the criteria, removing between 57% and 72% of the presented PAHs and 64% of the total PAHs present in the soil. Gravity separation was particularly efficient in removing 94% of the total PAHs, whereas flotation/leaching resulted in a lower separation efficiency, with a removal of 32% (Table 4.3). The low removal efficiency obtained with flotation/leaching might be caused by suboptimal operational conditions. It is known that the particles below 20 µm can be collected in the froth because of an excess of mechanical turbulence and air flow (Palakkeel Veetil *et al.*, 2013). Moreover, the high amount of hydrophobic particles (organic carbon) might also explain the poor results of the flotation step. Dermont *et al.* (2010) obtained a low flotation selectivity in a soil with high organic carbon because of the recovery of undesired particles in the froth. Indeed, the collection of hydrophobic particles such as graphite, coal and gypsum compete with the collection of the desired PAHs, reducing the efficiency of the flotation. In *soil 1*, the organic carbon content was particularly important at 5.8% (Table 4.1). The proportions of particles lower than 20 µm in diameter represented a proportion between 35% and 41% of the <0.250 mm fraction size in the three soils. The important proportion of <20 microns particles also explains the high soil removal (24%-46%) obtained with the flotation/leaching (Table 4.5).

4.5.2.3 Improvement of the Performance of the Treatment Process to Reach the Remediation Target

For *soil 3*, the process proposed did not reach the remediation target (criteria B) for Cu and Sn. Alternative treatments or actions were considered to comply with the legal criteria. Jobin *et al.* (2015) showed that DM separation was systematically superior in efficiency compared to gravity separation because of the absence of misclassification caused by the size and the shape of the particles. To reach the remediation target (criteria B), results obtained from the DM separation

were used instead of those obtained from gravity separation from the 0.250-4 mm soil fraction sizes. Moreover, the <0.250 mm fraction size was completely removed instead of being treated by flotation/leaching. These modifications to the process allowed *soil 3* to reach criteria B (Table 4.6). For the three fraction sizes treated using DM separation, the metal concentrations were effectively lower compared to gravity separation. Completely removing the finer fraction (<0.250 mm) also had an important impact on the final concentrations of Cu and Sn in *soil 3*. However, it also increased the soil removal proportion from 25% to 42%, which also impacted the costs of waste management, despite the fact that the costs of the flotation/leaching step were eliminated. DM separation using magnetite and ferrosilicon should be investigated to replace gravity separation methods and to obtain higher removal efficiencies. DM separation is already used in various industries such as in coal cleaning (Sripriya *et al.*, 2007), scrap metal recycling and ore concentration (Burt, 2000). However, DM separation has not been tested for soil remediation, and practical issues might limit its applicability.

Table 4.6 Inorganic contaminant concentrations (mg/kg) and soil removals (SR) after treatment using dense media (DM) separation instead of gravity separation and after removing the <0.250 mm soil fraction size in soil 3 (20-30% incinerator residues)

Treatment	Fraction mm	Initial prop. %	SR %	Final prop. %	Cu mg/kg	Pb mg/kg	Sb mg/kg	Sn mg/kg	Zn mg/kg
Initial soil	---	100	---	100	352 ± 58	594 ± 135	8 ± 2	252 ± 25	652 ± 74
Magnetism	>25	8	8	7	34 ± 4	21 ± 1	2 ± 1	8 ± 1	70 ± 5
Magnetism	12-25	12	10	10	37 ± 4	82 ± 41	1 ± 1	13 ± 1	215 ± 27
Magnetism	4-12	14	15	12	162 ± 57	161 ± 28	3 ± 0.1	36 ± 12	239 ± 51
DM separation	2-4	10	25	7	117 ± 10	264 ± 39	3 ± 1	111 ± 31	364 ± 60
DM separation	1-2	7	18	6	140 ± 25	295 ± 13	7 ± 3	102 ± 1	390 ± 11
DM separation	0.250-1	22	11	19	95 ± 0	212 ± 15	3 ± 1	53 ± 2	271 ± 7
Removed	<0.250	28	100	0	0	0	0	0	0
Treated soil		100	42	62	98 ± 17	173 ± 23	3 ± 1	49 ± 7	255 ± 25
Criteria B					100	500	20	50	500
Criteria C					500	1,000	40	300	1,500

4.5.3 Techno-economic evaluation

Table 4.7 shows the process costs estimated per ton of treated soil for *soil 2* and *soil 3* for a mobile plant having an annual capacity of 50 400 t per year. The costs estimation presented in Table 4.7 does not include flotation/leaching on the <0.250 mm soil fraction as it is a less efficient technology in the train process, and it did not contribute to reaching the remediation targets. The <0.250 mm soils fractions were considered a waste for the cost estimation. For *soil 2* and *soil 3*, costs were estimated at 82\$ and 88\$ per ton of dry soil, respectively. The estimated costs are in the lower part of the range for physical treatments reported by Mulligan *et al.* (2001a) (60\$-245\$ per ton) and Bisone *et al.* (2013) (70\$-187\$ per ton). The component with the highest impact on the process costs is the waste management of the contaminated soil volumes removed during the treatment. It represents between 41% and 44% of the cost process. The difference in costs between the two soils is explained by the larger fraction of soil treated by magnetism for *soil 2*, which is less expensive than gravimetric separation. Moreover, the waste management of the contaminated volumes of soil is higher for *soil 3*. Despite the dry mass of soil managed as a waste is similar (39% and 40%), the wet mass is higher for *soil 3* because the waste is composed of smaller soil particles with a higher water content at the exit of the process. The other important components in the process estimated costs are the labor and supervision costs, the capital costs and the energy costs. The cost of flotation/leaching was nevertheless estimated and, if included, would increase the process costs of approximately 18\$ per ton of dry soil.

Table 4.7 Techno-economic evaluation of the two soils decontamination scenarios (Soil 2 and Soil 3) for magnetic and gravity separation

Description	Soil 2	Soil 3
Investment		
Fixed capital costs (equipment, installation, engineering, etc)	2 563 225 \$	2 641 630 \$
Working capital	384 484 \$	396 245 \$
Total investment	2 947 709 \$	3 037 875 \$
Direct operating costs	Cost (\$ t⁻¹)	Cost (\$ t⁻¹)
Labour		
<i>Operating</i>	16.85	16.85
<i>Supervision</i>	3.37	3.37
Utilities		
<i>Electricity</i>	8.43	8.83
<i>Process water</i>	0.09	0.12
<i>Waste management</i>	33.42	38.49
Chemicals		
<i>Polymer</i>	0.29	0.34
Repair/maintenance	0.94	0.97
Consumable	0.35	0.37
Laboratory	1.68	1.68
Sub-total	65.42	71.02
Indirect and general costs		
Welfare benefits	4.45	4.45
Insurance and taxes	1.42	1.46
Marketing and sales	1.34	1.45
Sub-total	7.21	7.36
Capital cost		
Amortization	5.43	5.60
Debt service	3.42	3.52
Sub-total	8.85	9.12
Total	81.48	87.50

4.6 Conclusion

The process proposed in this study succeeded in remediating *soil 2* below criteria C for all of the metals present. The process also succeeded in remediating *soil 3* for PAHs, Pb, Sb and Zn below criteria B but not for Cu and Sn. DM separations and the removal of the <0.250 mm fraction size were necessary to lower the concentrations of these two metals below criteria B. The separation method with the highest efficiency (for most contaminants) was magnetism, followed by attrition/gravity separation and finally flotation/leaching. The global efficiency of the process was higher when the initial contaminant concentrations were lower, corresponding to a smaller proportion of MSW incineration residues mixed with the soil. The removal efficiencies varied from 18% for Zn to 39% for Sn in *soil 1*, from 31% for Zn to 53% for Sn in *soil 2* and from 42% for Sb to 56% for Pb in *soil 3*. The PAH concentrations were reduced below criteria B (global removal of 64%) in *soil 3* using gravity separation and adding an elutriation column step for the 2-4 mm fraction size. The costs of the process were estimated to be 82\$ to 88\$ per ton of treated soil depending on the proportion of MSW incineration residues mixed with the soil. Flotation/leaching was excluded from the cost estimation as this step was not mandatory to reach the remediation target. The process proved to be useful for the remediation of soils particularly difficult to treat at a reasonable cost. Moreover, this process can easily be adapted to various cases of metallic or mixed contamination. DM separation using ferrosilicon should be investigated to replace gravity separation to improve the removal efficiency of the process.

4.7 Acknowledgments

The work was supported by the National Sciences and Engineering Research Council of Canada and Tecosol Inc. under grant RDCPJ418167-11. The authors thank Myriam Chartier and Lan Huong Tran for their technical assistance.

5 REFERENCES

- Ahmed AT, Khalid HA, Ahmed AA & Chen DY (2010) A lysimeter experimental study and numerical characterisation of the leaching of incinerator bottom ash waste. *Waste Management* 30(8-9):1536-1543.
- ATSDR (1995) Toxicological profile for polycyclic aromatic hydrocarbon. (U.S. DEPARTMENT OF HEALTH AND HUMAN SERVICES), p 458.
- ATSDR (2005) TOXICOLOGICAL PROFILE FOR TIN AND TIN COMPOUNDS. (U.S. DEPARTMENT OF HEALTH AND HUMAN SERVICES), p 426.
- Aucott M, Namboodiripad A, Caldarelli A, Frank K & Gross H (2010) Estimated Quantities and Trends of Cadmium, Lead, and Mercury in US Municipal Solid Waste Based on Analysis of Incinerator Ash. *Water, Air and Soil Pollution* 206(1-4):349-355.
- Avens LR, Worl LA, deAguero KJ, Padilla DD, Prenger FC, Stewart WF, Hill DD & Tolt TL (1993) *Magnetic separation for soil decontamination*. Medium: ED; Size: 11 p. p. <http://www.osti.gov/scitech//servlets/purl/10128823-JCPqli/>
- Bartlett JE, J.W. K & Higgins CC (2001) Organizational Research: Determining Appropriate Sample Size in Survey Research. *Information Technology, Learning, and Performance Journal* 19(1):43-50.
- Bayley RW & Biggs CA (2005) Characterisation of an attrition scrubber for the removal of high molecular weight contaminants in sand. *Chem Eng J* 111(1):71-79.
- Beauchesne I, Meunier N, Drogui P, Hausler R, Mercier G & Blais JF (2005) Electrolytic recovery of lead in used lime leachate from municipal waste incinerator. *Journal of Hazardous Materials* 120(1-3):201-211.
- Benschoten J, Matsumoto M & Young W (1997) Evaluation and Analysis of Soil Washing for Seven Lead-Contaminated Soils. *Journal of Environmental Engineering* 123(3):217-224.
- Bergeron M (2005) Method of decontaminating soil. Édité 6915908 UPNUS Patent No 6915908).
- Bisone S (2012) *Décontamination de sols contaminés par du cuivre du zinc et des HAP provenant de déchets métallurgiques*. Université du Québec, Institut national de la recherche scientifique, [Québec]. xxii, 230 p. p. <http://espace.inrs.ca/1391/1/T000615.pdf>
- Bisone S, Blais J-F, Drogui P & Mercier G (2012) Toxic metal removal from polluted soil by acid extraction. *Water, Air, and Soil Pollution* 223(7):3739-3755.
- Bisone S, Mercier G & Blais J-F (2013) Decontamination of metals and polycyclic aromatic hydrocarbons from slag-polluted soil. *Environmental Technology* 10.1080/09593330.2013.781231:1-16.
- Bisson M, Bonnomet V, Migne V, Fouillen, Jolibois B, Gay G, Lefevre JP & Tack K (2007) Antimoine et ses dérivés. in *Fiche de données toxicologiques et environnementales des substances chimiques* (INERIS), p 54.
- Blais J-F, Meunier N & Mercier G (2010) New Technologies for Toxic Metals Removal from Contaminated Sites. *Recent Patents on Engineering* 4(1):1-6.
- Blanchard C (2000) *Caractérisation de la mobilisation potentielle des polluants inorganiques dans les sols pollués*. (Institut National des Sciences appliquées de Lyon). 241 p. <http://books.google.ca/books?id=JtNsmgEACAAJ>

- Bowell RJ (1994) Sorption of arsenic by iron oxides and oxyhydroxides in soils. *Applied Geochemistry* 9(3):279-286.
- Brown T (2007) *Engineering economics and economic design for process engineers*. CRC Press, Taylor & Francis Group, Boca Raton, FL. 347 p
- Bunge R & Vogler K (1995) Assessing the Suitability of Contaminated Soils for Soil Washing. *Contaminated Soil '95*, (Soil & Environment, Brink WJ, Bosman R & Arendt F (Édit.) Springer Netherlands, Vol 5. p 491-493.
- Burt RO (2000) Dense-Medium Separation. *Ullmann's Encyclopedia of Industrial Chemistry*, Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. , 10.1002/14356007.b02_22.
- CCME (1999) *Canadian Soil Quality Guidelines for the Protection of Environmental and Human Health*. Canadian Council of Ministers of the Environment, Winnipeg, Canada), http://www.ccme.ca/en/resources/canadian_environmental_quality_guidelines/index.html (Consulté le march 2015)
- CCME (2008) Canadian Soil Quality Guidelines for carcinogenic and other polycyclic aromatic hydrocarbons in *Environmental and Human Health Effects*, Édité Document SS), p 218.
- CEAEQ (2003) Détermination des métaux et du phosphore dans les sédiments: méthode par spectrométrie au plasma d'argon après minéralisation acide. (Ministère de l'Environnement du Québec), p 18.
- CEAEQ (2014) Détermination du pH : méthode électrométrique (Ministère du Développement durable, de l'Environnement et de la Lutte contre les changements climatiques du Québec), p 14.
- Chimenos JM, Segarra M, Fernández MA & Espiell F (1999) Characterization of the bottom ash in municipal solid waste incinerator. *Journal of Hazardous Materials* 64(3):211-222.
- Chung TL, Liao CJ & Chang-Chien GP (2010) Distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons and polychlorinated dibenzo-p-dioxins/dibenzofurans in ash from different units in a municipal solid waste incinerator. *Waste Manage Res* 28(9):789-799.
- Cochran WG (1977) *Sampling techniques*. John Wiley & Sons, New York, 3rd
- Daus B, Wennrich R & Weiss H (2004) Sorption materials for arsenic removal from water: A comparative study. *Water Res* 38(12):2948-2954.
- Dermont G, Bergeron M, Mercier G & Richer-Lafleche M (2008a) Soil washing for metal removal: a review of physical/chemical technologies and field applications. *Journal of Hazardous Materials* 152(1):1-31.
- Dermont G, Bergeron M, Mercier G & Richer-Lafleche M (2008b) Metal-Contaminated Soils: Remediation Practices and Treatment Technologies. *Pract. Period. Hazard. Toxic Radioact. Waste Manage.* 10.1061//asce/1090-025x/2008/12:3/188:188-209.
- Dermont G, Bergeron M, Richer-Lafleche M & Mercier G (2010) Remediation of metal-contaminated urban soil using flotation technique. *The Science of the total environment* 408(5):1199-1211.
- Duchesne J & Mercier G (2003) Establishment of a method for mineralogical characterization describing lead-contaminated soils. *Can Geotech J* 40(4):731-741.
- EPA USEPA (2007) Treatment technologies for site cleanup: annual status report.).
- Gill CB (1991) *Materials beneficiation*. Springer-Verlag, New York), <http://books.google.com/books?id=UYxTAAAAMAAJ>

- Gosselin A, Blackburn D & Bergeron M (1999) Protocole d'évaluation de la traitabilité des sédiments, des sols et des boues à l'aide des technologies minéralurgiques. (Environnement Canada), p 148.
- Grobler JD & Bosman JB (2011) Gravity separator performance evaluation using Qemscan (R) particle mineral analysis. *J S Afr I Min Metall* 111(6):401-408.
- Hébert J & Bernard J (2013) Bilan sur la gestion des terrains contaminés au 31 décembre 2010. (Ministère du Développement Durable, de l'Environnement, de la Faune et des Parcs, Québec, Qc), p 31.
- Hjelmar O (1996) Disposal strategies for municipal solid waste incineration residues. *Journal of Hazardous Materials* 47(1-3):345-368.
- IARC (2006) Polycyclic Aromatic Hydrocarbons IARC Monographs on the evaluation of the carcinogenic risk of chemicals to humans 92 (International Agency for Research on Cancer France).
- Iskandar IK (2001) *Environmental restoration of metals-contaminated soils*. Lewis Publishers CRC Press Boca Raton FL. 320 p
- IUSS (2014) World Reference Base for Soil Resources 2014: International soil classification system for naming soils and creating legends for soil maps. in *World Soil Resources Reports no 106* (FAO, Rome), p 181.
- Jiang XM, Zhou LS, Liu JG & Han XX (2009) A model on attrition of quartzite particles as a bed material in fluidized beds. *Powder Technol* 195(1):44-49.
- Jobin P, Mercier G, Blais J-F & Taillard V (2015) Understanding the Effect of Attrition Scrubbing on the Efficiency of Gravity Separation of Six Inorganic Contaminants. *Water Air Soil Poll* 226(5):1-13.
- Kutchko BG & Kim AG (2006) Fly ash characterization by SEM-EDS. *Fuel* 85(17-18):2537-2544.
- Kyllönen H, Pirkonen P, Hintikka V, Parvinen P, Grönroos A & Sekki H (2004) Ultrasonically aided mineral processing technique for remediation of soil contaminated by heavy metals. *Ultrasonics Sonochemistry* 11(3-4):211-216.
- La Rocca B, Houeix N & Andres S (2010) Arsenic et ses dérivés organiques. in *Fiche de données toxicologiques et environnementales des substances chimiques* (INERIS), p 124.
- Laporte-Saumure M, Martel R & Mercier G (2010) Evaluation of Physicochemical Methods for Treatment of Cu, Pb, Sb, and Zn in Canadian Small Arm Firing Ranges Backstop Soils. *Water, Air, & Soil Pollution* 213(1-4):171-189.
- Levasseur B (2004) *Optimisation de l'enlèvement et de la récupération des métaux à partir de cendres volantes d'incinérateurs de déchets municipaux*. (Université du Québec, Institut national de la recherche scientifique, Université du Québec, INRS-Eau, Terre et Environnement, 2004, [Québec]). xvii, 253 p. p
- Lu SG & Bai SQ (2008) Magnetic characterization and magnetic mineralogy of the Hangzhou urban soils and its environmental implications. *Chinese J Geophys-Ch* 51(3):762-769.
- Manser RJ, Barley RW & Wills BA (1991) The Shaking Table Concentrator - the Influence of Operating-Conditions and Table Parameters on Mineral Separation - the Development of a Mathematical-Model for Normal Operating-Conditions. *Miner Eng* 4(3-4):369-381.
- Marino MA, Brica RM & Neale CN (1997) Heavy metal soil remediation: The effects of attrition scrubbing on a wet gravity concentration process. *Environ Prog* 16(3):208-214.
- Masscheleyn PH, Delaune RD & Patrick WH (1991) Effect of redox potential and pH on arsenic speciation and solubility in a contaminated soil. *Environ Sci Technol* 25(8):1414-1419.

- McClenaghan MB (2011) Overview of common processing methods for recovery of indicator minerals from sediment and bedrock in mineral exploration. *Geochem-Explor Env A* 11(4):265-278.
- MDDEP (2003a) Loi sur la qualité de l'environnement. (Éditeur officiel du Québec, Québec, Canada).
- MDDEP (2003b) Règlement sur la protection et la réhabilitation des terrains. (Éditeur officiel du Québec, Québec, Canada).
- Mercier G (2000) *Disponibilité des métaux dans les sols et prévision du rendement d'enlèvement par des techniques minéralurgiques*. xii, 277 f. p.
<http://proquest.umi.com/pqdweb?did=727906531&sid=11&Fmt=2&clientId=9268&RQT=309&VNam e=PQD>
- Mercier G, Blais JF & Chartier M (2007) Pilot-scale decontamination of soils polluted with toxic metals by mineral processing technology and chemical leaching. *J Environ Eng Sci* 6(1):53-64.
- Mercier G, Duchesne J & Blackburn D (2001) Prediction of metal removal efficiency from contaminated soils by physical methods. *Journal of Environmental Engineering* 127(4):348-358.
- Mercier G, Duchesne J & Blackburn D (2002) Removal of metals from contaminated soils by mineral processing techniques followed by chemical leaching. *Water Air Soil Poll* 135(1-4):105-130.
- Mohan D & Pittman CU (2007) Arsenic removal from water/wastewater using adsorbents - A critical review. *Journal of Hazardous Materials* 142(1-2):1-53.
- Mouton J (2008) *Développement d'un procédé de lavage de sol pour le traitement simultané des HAP et du plomb*. (Université du Québec, Institut national de la recherche scientifique, Université du Québec, INRS-Eau, Terre et Environnement, 2008, [Québec]). xxv, 206, [224] p
- Mouton J, Mercier G & Blais JF (2009a) Amphoteric Surfactants for PAH and Lead Polluted-Soil Treatment Using Flotation. *Water Air Soil Poll* 197(1-4):381-393.
- Mouton J, Mercier G & Blais JF (2010) Laboratory-Scale Flotation Process for Treatment of Soils Contaminated with Both PAH and Lead. *J Environ Eng-Asce* 136(10):1063-1074.
- Mouton J, Mercier G, Drogui P & Blais JF (2009b) Experimental assessment of an innovative process for simultaneous PAHs and Pb removal from polluted soils. *Science of the Total Environment* 407(20):5402-5410.
- Muchová L (2010) *Wet physical separation of municipal solid waste incinerator bottom ash*. (VSB Technical University of Ostrava, Ostrava, Czech Republic). 233 p
- Mulligan CN & Wang SL (2006) Remediation of a heavy metal-contaminated soil by a rhamnolipid foam. *Eng Geol* 85(1-2):75-81.
- Mulligan CN, Yong RN & Gibbs BF (2001a) Remediation technologies for metal-contaminated soils and groundwater: an evaluation. *Eng Geol* 60(1-4):193-207.
- Mulligan CN, Yong RN & Gibbs BF (2001b) Surfactant-enhanced remediation of contaminated soil: a review. *Eng Geol* 60(1-4):371-380.
- Oberteuf JA (1973) High Gradient Magnetic Separation. *IEEE T Magn Mag* 9(3):303-306.
- Palakkeel Veetil D, Mercier G, Blais J-F, Chartier M & Tran L (2013) Simultaneous removal of Cu and PAHs from dredged sediments using flotation. *J Soil Sediment* 13(8):1502-1514.

- Pichard A, Bisson M, Diderich R, Hulot C, Houeix N, Lacroix G, Lefevre J, Leveque S, Magaud H & Morin A (2005a) Zinc et ses dérivés. in *Fiche de données toxicologiques et environnementales des substances chimiques* (INERIS), p 69.
- Pichard A, Bisson M, Houeix N, Gay G, Lacroix G, Lefevre J, Magaud H, Migne V, Morin A & Tissot S (2005b) Cuivre et ses dérivés. in *Fiche de données toxicologiques et environnementales des substances chimiques* (INERIS), p 66.
- Pichard A, Bisson M, Hulot C, Lacroix G, Lefèvre JP, Magaud H, Oberson-Geneste D, Morin A & Pépin G (2003) Plomb et ses dérivés. in *FICHE DE DONNEES TOXICOLOGIQUES ET ENVIRONNEMENTALES DES SUBSTANCES CHIMIQUES* (INERIS), p 90.
- Polettini A & Pomi R (2004) The leaching behavior of incinerator bottom ash as affected by accelerated ageing. *Journal of Hazardous Materials* 113(1-3):209-215.
- Ravier J (1988) Tentative de quantification de la forme des particules. *Bulletin de liaison Laboratoire des ponts et chaussées* 157:39-46.
- Rendek E, Ducom G & Germain P (2006) Influence of organic matter on municipal solid waste incinerator bottom ash carbonation. *Chemosphere* 64(7):1212-1218.
- Rikers RA, Rem P & Dalmijn WL (1998a) Improved method for prediction of heavy metal recoveries from soil using high intensity magnetic separation (HIMS). *Int J Miner Process* 54(3-4):165-182.
- Rikers RA, Rem P, Dalmijn WL & Honders A (1998b) Characterization of heavy metals in soil by high gradient magnetic separation. *J Soil Contam* 7(2):163-190.
- Sierra C, Menendez-Aguado JM, Afif E, Carrero M & Gallego JR (2011) Feasibility study on the use of soil washing to remediate the As-Hg contamination at an ancient mining and metallurgy area. *Journal of Hazardous Materials* 196:93-100.
- Sripriya R, Banerjee PK, Soni, Baijal AD, Dutta A, Rao MVS & Chatterjee S (2007) Dense-medium cyclone: Plant experience with high near-gravity material Indian coals. *Coal Prep* 27(1-3):78-106.
- Strazisar J & Seselj A (1999) Attrition as a process of comminution and separation. *Powder Technol* 105(1-3):205-209.
- Svoboda J (1987) *Magnetic methods for the treatment of minerals*. Elsevier, Amsterdam
- Svoboda J & Fujita T (2003) Recent developments in magnetic methods of material separation. *Miner Eng* 16(9):785-792.
- Tincelin C (1993) *Étude de l'enlèvement des métaux lourds contenus dans les cendres volantes d'incinérateurs d'ordures ménagères*. (Université du Québec, Institut national de la recherche scientifique, Université du Québec, INRS-Eau, 1993, Québec). vii, 138 p. p
- Ulrich G (1984) *A guide to chemical engineering process design and economics*. John Wiley & sons, New York, NY
- USDA (1993) Soil survey manual. (Soil Survey Division Staff-Soil Conservation Service).
- VanBenschoten JE, Matsumoto MR & Young WH (1997) Evaluation and analysis of soil washing for seven lead-contaminated soils. *J Environ Eng-Asce* 123(3):217-224.
- Wang XS & Qin Y (2005) Correlation between magnetic susceptibility and heavy metals in urban topsoil: a case study from the city of Xuzhou, China. *Environ Geol* 49(1):10-18.

- Williford CW, Li Z, Wang ZM & Bricka RM (1999) Vertical column hydroclassification of metal-contaminated soils. *Journal of Hazardous Materials* 66(1-2):15-30.
- Wills BA (1992) *Mineral Processing Technology*. Pergamon, N.Y.
- Zhao Y, Zhang Y, Bao S, Liu T, Bian Y, Liu X & Jiang M (2013) Separation factor of shaking table for vanadium pre-concentration from stone coal. *Sep Purif Technol* 115(0):92-99.
- Zheng Y & Zhang SH (2008) Magnetic properties of street dust and topsoil in Beijing and its environmental implications. *Chinese Sci Bull* 53(3):408-417.