

Centre Eau, Terre et Environnement

## **CARBONATATION ET GRANULATION DES CENDRES DE GRILLES DE L'INCINÉRATEUR DE LA VILLE DE QUÉBEC**

Par  
Cyrine Boussabbeh

Mémoire présenté pour l'obtention du grade de  
Maître en Sciences (M.Sc.)  
en sciences de la terre

### **Jury d'évaluation**

Président du jury et examineur interne	Guy Mercier INRS - ETE
Examineur externe	Mostafa Benzaazoua UQAT
Directeur de recherche	Louis-César Pasquier INRS - ETE
Codirectrice de recherche	Lan Huong Tran INRS - ETE

## REMERCIEMENTS

---

Au terme de ce travail, je tiens à exprimer ma gratitude à mon directeur de recherche Louis César Pasquier pour m'avoir offert l'opportunité de réaliser ce projet de recherche. Je ne saurais le remercier pour la confiance, l'encadrement, la bienveillance et le soutien qu'il m'a prodigué tout au long de ma maîtrise. Je souhaite également exprimer ma reconnaissance à ma codirectrice de recherche Lan Tran Hong pour sa disponibilité, son aide, ses précieux conseils et sa bonne humeur contagieuse.

Je tiens à exprimer ma gratitude envers les membres du jury qui ont accepté d'évaluer ce mémoire.

Merci à la ville de Québec d'avoir financé ce projet. Je remercie également toute l'équipe de l'organisme national à but non lucratif Mitacs Globalink pour la bourse de recherche qu'il m'a accordée.

Un grand merci à tout le personnel de l'INRS pour leur participation à la réussite de ce travail.

Mes remerciements vont à toutes les personnes que j'ai rencontrées au Québec et qui ont contribué à faire de mon séjour une agréable aventure remplie de bons moments.

Merci à mes chers frères Slim et Skander, qui sont ma source de fierté et d'inspiration, pour leurs encouragements permanents et leurs conseils de vie!

Je salue également mes adorables nièces et neveux Myriam, Youssef, Malek et le petit Adam que je n'ai pas encore eu la chance de rencontrer.

Merci à tous mes amis pour leur appui et leur sincère amitié notamment Sandra C, Khawla B, Nader G, Chayma F, Nassim A, Mimi E, Asma H, Joseph C, et Yazid S.

Au final, je voudrais dédier ce modeste travail, avec mes sentiments les plus sincères, à mes chers parents Houda et Naceur que j'adore! Merci de votre patience, vos conseils, et votre soutien constant en dépit de la distance qui nous sépare. J'espère que vous serez encore plus fiers de votre petite-fille!

## RÉSUMÉ

---

Au fil des années, la gestion des matières résiduelles, qu'elles soient d'origine domestique ou industrielle, s'est amplement améliorée. Dans certains cas, les déchets sont incinérés et transformés en cendres qui seront à leur tour enfouies dans des sites d'enfouissements adéquats. Cependant, des efforts ont été déployés afin de transformer les déchets enfouis en des agrégats valorisables d'où l'augmentation de la durée de vie des sites d'enfouissements.

Dans ce contexte, mon projet de maîtrise vise à étudier le potentiel de carbonatation/granulation des cendres de grilles appelées « mâchefers » de l'incinérateur de la ville de Québec (fraction lourde des cendres qui se déposent par gravité à la base des fours de l'incinérateur).

La méthodologie repose sur le développement et l'optimisation du processus de granulation et carbonatation des mâchefers dans le cadre de la double valorisation des déchets et la confection de granulats valorisables. Le ciment portland a été utilisé comme liant pour tous les essais de granulation.

Une étape de prétraitement (séchage, tamisage et broyage) a été réalisée sur les mâchefers avant d'effectuer les essais de carbonatation et granulation.

Des tests de caractérisation ont été réalisés pour déterminer la capacité théorique de captage du CO<sub>2</sub> dans la matrice des mâchefers. D'après les résultats préliminaires, les conditions opératoires de carbonatation seront à optimiser pendant les travaux futurs en vue d'augmenter la capacité de séquestration du CO<sub>2</sub> dans les mâchefers.

Différentes conditions opératoires ont été optimisées pour aboutir à la recette de granulation des mâchefers. Une large gamme de granulats légers a été obtenue aux cours des essais menés. Les meilleurs rendements de granulation ont été obtenus avec un pourcentage de ciment compris entre 9 et 12 % et un minimum de pourcentage d'eau de 15% par rapport à la masse totale des réactifs, 20 à 45 rotations par minutes et un temps de réaction de 30 minutes.

Conformément aux normes de la province, les analyses réalisées sur l'échantillon initial et les granulats confectionnés révèle que les mâchefers utilisés sont non dangereux pour l'environnement et sont classés en catégorie III du guide de valorisation. L'éventuelle utilisation des granulats de mâchefers selon les catégories I et II exigera une caractérisation plus exhaustive ou un prétraitement spécifique.

**Mots clés** : mâchefers, carbonatation, granulation, granulats valorisables, CO<sub>2</sub>.



## ABSTRACT

---

Over the years, the management of residual materials, whether of domestic or industrial origin, has improved greatly. In some cases, the wastes are incinerated and transformed into ashes which are buried in adequate landfills. However, efforts have been made to valorize these materials into valuable aggregates, thus increasing the life span of landfills.

In this context, my master's project aims to study the carbonation/granulation potential of the called "bottom ash" from the Quebec City waste incinerator (heavy fraction of the ash that settles by gravity at the base of the incinerator's furnaces).

The methodology is based on the development and optimization of the granulation and carbonation processes of the bottom ash in the context of the double valorization of waste and the production of valorizable aggregates. Portland cement was used as a binder for all granulation tests.

A pre-treatment step (drying, sieving and grinding) was performed on the bottom ash before carrying out the carbonation and granulation tests.

Characterization tests were performed to evaluate the theoretical CO<sub>2</sub> capture capacity of the bottom ash matrix. Based on the preliminary results, the carbonation operating conditions will be optimized during future work to increase the CO<sub>2</sub> sequestration capacity of the bottom ash.

Different operating conditions were optimized to arrive at the bottom ash granulation recipe. A wide range of light aggregates was obtained during the tests. The best pelletizing yields were obtained with a percentage of cement between 9 and 12% and a minimum percentage of water of 15% in relation to the total mass of reagents, 20 to 45 rotations per minute and a reaction time of 30 minutes.

In accordance with the standards of the province, the analyses carried out on the initial sample and the manufactured aggregates reveal that the bottom ash used is not dangerous for the environment and is classified in category III of the valorization guide. The possible use of bottom ash aggregates according to categories I and II will require a more exhaustive characterization or a specific pre-treatment.

**Keywords:** *bottom ash, carbonation, granulation, recoverable aggregates, CO<sub>2</sub>.*

## TABLE DES MATIÈRES

---

REMERCIEMENTS.....	i
RÉSUMÉ.....	ii
ABSTRACT.....	v
TABLE DES MATIÈRES .....	vii
LISTE DES FIGURES.....	xi
LISTE DES TABLEAUX.....	xiii
LISTE DES ÉQUATIONS.....	xv
LISTE DES ABRÉVIATIONS.....	xvi
1 INTRODUCTION.....	1
2 ÉTUDE BIBLIOGRAPHIQUE .....	3
2.1 Changements climatiques.....	3
2.1.1 Les gaz à effet de serre : GES.....	4
2.1.2 Émissions du CO <sub>2</sub> au Québec.....	5
2.1.3 Solutions pour réduire l'émission du CO <sub>2</sub> dans l'atmosphère .....	6
2.2 Méthodes de séquestration du CO <sub>2</sub> .....	7
2.2.1 Séquestration géologique.....	7
2.2.2 Séquestration biologique.....	7
2.2.3 Séquestration par carbonatation minérale.....	7
2.3 Gestion des matières résiduelles .....	13
2.3.1 Cendres volantes .....	15
2.3.2 Cendres de grilles ou mâchefers.....	15
2.3.3 Incinérateur de la ville de Québec.....	16

2.4	Carbonatation des cendres d'incinération .....	18
2.4.1	Modélisation de la réaction de carbonatation des mâchefers .....	19
2.4.2	Travaux antérieurs de carbonatation des échantillons solides.....	20
2.5	Granulation .....	24
2.5.1	Processus général de granulation .....	24
2.5.2	Réacteur de granulation.....	27
2.5.3	Combinaison carbonatation-granulation .....	28
2.6	Cadre législatif .....	34
3	ORIGINALITÉ DE L'ÉTUDE.....	37
4	OBJECTIFS ET ÉTAPE DU PROJET .....	38
5	MATÉRIELS ET MÉTHODES .....	39
5.1	Méthodologie .....	40
5.2	Description des échantillons.....	40
5.2.1	Échantillonnage .....	40
5.2.2	Prétraitement des échantillons .....	42
5.2.3	Techniques de caractérisation des échantillons .....	44
5.3	Protocoles et dispositifs expérimentaux .....	45
5.3.1	Essais de lixiviation .....	45
5.3.2	Essais de carbonatation par voie humide.....	46
5.3.3	Essais de granulation.....	48
5.4	Méthodes analytiques et calculs.....	51
6	RÉSULTATS ET DISCUSSIONS .....	61
6.1	Caractérisation des échantillons.....	61
6.2	Essais préliminaires de carbonatation sur l'échantillon initial.....	65
6.3	Prétraitement .....	70

6.3.1	Effet de la granulométrie initiale .....	70
6.3.2	Broyage .....	73
6.4	Essais de granulation.....	75
6.4.1	Essais de granulation du 2 <sup>eme</sup> lot d'échantillon .....	76
6.4.2	Essais de granulation du 3 <sup>eme</sup> lot d'échantillon .....	86
6.5	Récapitulatif des essais de granulation de ce projet.....	87
6.5.1	Effet des paramètres opératoires sur les résultats de granulation .....	89
6.5.2	Constatations générales de la granulation .....	93
6.5.3	Enjeux de la granulation.....	94
6.5.4	Bilan de masse de la granulation .....	95
6.6	Discussions générales .....	96
6.7	Débouchés.....	99
6.7.1	Essais de lixiviation .....	99
6.7.2	Classification des mâchefers et des granulats confectionnés.....	103
7	CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES .....	107
8	RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES.....	111
8	ANNEXES.....	116
	ANNEXE I : Schéma de l'incinérateur de la ville de Québec.....	116
	ANNEXE II : Processus de carbonatation sur site du « Carbon8 Systems » .....	118
	Annexe III : Résultats d'analyses ICP-AES en mg/L des six fractions granulométriques du lot 1.....	119
	Annexe IV : Résultats d'analses ICP-AES en mg/Kg des six fractions granulométriques du lot 1.....	121
	Annexe V : Résultats des analyses élémentaires de chaque lot d'échantillon.....	123

Annexe VI Valeurs des concentrations maximales d'un contaminant dans une matière liquide selon les critères de la norme du Règlement sur les matières dangereuses 126

Annexe VII Extraits du guide de valorisation des matières résiduelles inorganiques non dangereuses de source industrielle comme matériau de construction ..... 127

## LISTE DES FIGURES

---

Figure 1	Moyenne mondiale de concentrations de GES (GIEC, 2014).....	3
Figure 2	Répartition des émissions de GES au Québec, en 2019, par secteur (MELCC, 2021) 5	5
Figure 3	Répartition des émissions de GES au Québec, en 2019, selon le type de gaz (MELCC, 2021) .....	6
Figure 4	Diagramme général de l'implantation de la carbonatation minérale comme procédé de séquestration ex-situ (IPCC, 2005; Pasquier, 2014) .....	11
Figure 5	Schéma comparatif entre la carbonatation directe et indirecte (Bobicki et al., 2012) 11	11
Figure 6	Mécanisme de formation de granulat.....	25
Figure 7	Enjeux de la formation des granulats par rapport à la quantité d'eau.....	26
Figure 8	Modes de rotation du tambour de granulation (Govender, 2016) .....	27
Figure 9	Méthodologie générale du projet .....	40
Figure 10	Homogénéisation et séparation des imbrulés et prétraitement de l'échantillon de cendres reçues .....	42
Figure 11	Broyeurs utilisés lors des étapes de broyage .....	43
Figure 12	Étape de broyage du 2 <sup>eme</sup> lot.....	44
Figure 13	Réacteur de carbonatation de 300ml .....	47
Figure 14	Dispositif de granulation/carbonatation confectionné au LISTE .....	49
Figure 15	Tamis utilisés lors du tamisage .....	52
Figure 16	Dispositif de compression .....	58
Figure 17	Pourcentage d'oxydes dans les lots 1, 2 et 3 d'échantillon de mâchefers	64
Figure 18	Tendance de la granulation des trois fractions granulométriques .....	71

Figure 19	Fractions non broyées A : morceaux de ferrailles et imbrulés, B : fraction non broyée issue du broyeur rotatif, C : Aluminium et billes de fer trouvés dans B. ....	72
Figure 20	Pourcentage des fractions granulométriques des échantillons A : inférieure à 1mm , B : ( 1-4 mm) broyée par le broyeur à disque, C : supérieure à 4mm broyé par le broyeur rotatif .....	74
Figure 21	Différentes formes et tailles de granulats confectionnés par granulation des 3 types d'échantillon de cendres (sans CO <sub>2</sub> ) .....	78
Figure 22	Résistance à la compression des granulats pour 7j et 28j A. Fraction <1mm (12% ciment, 18,8% eau ,24 rpm) , B. Fraction broyée (12% ciment, 15,2% eau, 19 rpm) .....	81
Figure 23	Résistance à la compression après 112 jours d'un essai de granulation avec 11% ciment , 16,5% d'eau , 20 rpm pendant 30 minutes .....	82
Figure 24	Différentes formes et tailles de granulats confectionnés par granulation avec CO <sub>2</sub> (fraction broyée,11%ciment, 16%eau,30rpm et 30 minutes de granulation + 30 minutes d'injection de CO <sub>2</sub> ) .....	83
Figure 25	Résistance à la compression des granulats avec et sans CO <sub>2</sub> (fraction broyée,11%ciment, 16%eau,30rpm) .....	84
Figure 26	Résistance à la compression des granulats pour les essais de couplage 1.Granulation puis carbonatation , 2. Carbonatation puis granulation .....	85
Figure 27	Influence du pourcentage d'eau sur le taux de granulation.....	91
Figure 28	Les enjeux de la granulation .....	95

## LISTE DES TABLEAUX

---

Tableau 1	Concentrations atmosphériques des GES d'origine anthropique.....	4
Tableau 2	Travaux de carbonatation des solides alcalins dans certains pays.....	21
Tableau 3	Travaux de combinaison carbonatation/granulation dans certains pays .	30
Tableau 4	Méthodes de préparation du mélange réactionnel.....	50
Tableau 5	Principales caractéristiques des trois lots d'échantillon .....	61
Tableau 6	Valeurs des pourcentages d'oxydes des 3 lots d'échantillon .....	63
Tableau 7	Conditions opératoires et résultats d'analyses des essais préliminaires de carbonatation .....	66
Tableau 8	Principaux résultats de granulation du deuxième lot.....	77
Tableau 9	Comparaison avec la littérature des résultats de granulation .....	79
Tableau 10	Conditions opératoires et résultats des essais de granulation du 3 <sup>eme</sup> lot 87	
Tableau 11	Rendement des différents essais de granulation .....	88
Tableau 12	Influence de la vitesse de rotation sur le taux de granulation .....	92
Tableau 13	Bilan de masse des classes granulométriques des granulats .....	96
Tableau 14	Valeurs des concentrations des contaminants en mg/L obtenues après les tests TCLP	101



## LISTE DES ÉQUATIONS

---

Équation 1	Réactions de carbonatation impliquant l'oxyde de Ca et Mg .....	8
Équation 2	Réactions de carbonatation minérale impliquant les silicates naturels.....	8
Équation 3	Série de réactions mises en jeu lors de la carbonatation minérale en phase aqueuse (Huijgen et al., 2005).....	13
Équation 4	Réaction de la chaux vive avec l'eau.....	19
Équation 5	Réaction de carbonatation de la portlandite .....	19
Équation 6	Pourcentage d'humidité des échantillons de mâchefers .....	51
Équation 7	Conversion de la concentration d'un élément chimique de mg/L à partir de l'analyse à l'ICP-AES en g/kg.....	54
Équation 8	Conversion de la concentration de l'élément en % massique d'oxyde .....	54
Équation 9	Formule de Steinour pour le calcul de la valeur théorique de carbonatation (Cho et al., 2011) .....	55
Équation 10	Masse du CO <sub>2</sub> capté dans la phase solide en gCO <sub>2</sub> /kg de mâchefers	55
Équation 11	Calcul de la masse de carbone formé.....	56
Équation 12	Pourcentage de granulation.....	57
Équation 13	Pourcentage de perte de masse.....	57
Équation 14	Résistance à la compression en MPa.....	59
Équation 15	Densité apparente des granulats .....	59
Équation 16	% Absorption d'eau pendant 24h.....	60

## LISTE DES ABRÉVIATIONS

---

ACS	: <i>American Chemical Society</i>
Ca(OH) <sub>2</sub>	: Portlandite
CaCO <sub>3</sub>	: Calcite (Carbonate de calcium)
CaMg(CO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	: Dolomie
CCNUCC	: Convention Cadre des Nations Unies sur les Changements Climatiques
CCS	: <i>Carbon Capture and Storage</i>
CEAEQ	: Centre d'Expertise en Analyses environnementale du Québec
CH <sub>4</sub>	: Méthane
CM	: Carbonatation minérale
CO	: Monoxyde de carbone
CO <sub>2</sub>	: Dioxyde de carbone
COT	: Carbone organique total
C-S-H	: Hydrate de silicate de calcium
d	: Distance entre les plaques du dispositif de compression
F	: Force de compression
GES	: Gaz à effet de serre
HCH <sub>3</sub> CO <sub>2</sub>	: Acide acétique glacial
HCl	: Acide chlorhydrique
HFC	: Hydrofluorocarbures
HNO <sub>3</sub>	: Acide nitrique
ICP-AES	: Spectrométrie d'émission atomique -plasma à couplage inductif

LiBO <sub>2</sub>	: Méthaborate de Lithium
LOI	: <i>Loss of ignition</i>
MgCO <sub>3</sub>	: Magnésite
mm	: Millimètre
MSIW	: <i>Municipal solid waste incineration</i>
Mt éq CO <sub>2</sub>	: Mégatonne d'équivalent en CO <sub>2</sub>
N	: Newton
N <sub>2</sub> O	: Oxyde nitreux
NaOH	: Hydroxyde de sodium
NF <sub>3</sub>	: Trifluorure d'azote
PAF	: Perte au Feu
PFC	: Perfluorocarbures
ppb	: Partie par milliard (billion)
ppm	: Partie par million
ppt	: Partie par trillion
R	: Résistance à la compression
Rpm	: Rotations par minute
SF <sub>6</sub>	: Hexafluorure de soufre
SO <sub>2</sub>	: Anhydride sulfureux
SPLP	: Synthetic Precipitation Leaching Procedure
TCLP	: <i>Toxicity Characteristic Leaching Procedure</i>
WAC	: <i>Water absorption capacity</i>

# 1 INTRODUCTION

---

Les besoins énergétiques ne cessent d'augmenter avec la croissance économique et démographique mondiale, consommant de plus en plus de combustibles fossiles et déversant de plus en plus des déchets néfastes dans l'environnement. En effet, les activités humaines sont responsables de la majorité des émissions de gaz à effet de serre (GES) ; le CO<sub>2</sub> est le GES majoritairement émis. Par ailleurs, l'activité humaine génère d'importantes quantités de matières résiduelles d'origine industrielle ou domestique. Ces activités anthropiques ont engendré des changements climatiques et sont au cœur des préoccupations environnementales mondiales.

Les grandes quantités de déchets ménagers générés peuvent être incinérées et transformées en cendres et seront à leur tour généralement enfouies dans des sites d'enfouissements adéquats.

Pour faire face à ces perturbations, plusieurs travaux de recherche ont été réalisés pour la gestion et la valorisation des rejets/déchets. Le procédé de carbonatation/granulation est parmi les approches qui permettent de résoudre à la fois le problème de l'augmentation du taux du CO<sub>2</sub> et la diminution des déchets dédiés à l'enfouissement par la confection des granulats valorisables.

Dans ce contexte, le présent projet financé par la ville de Québec, vise à étudier le potentiel de carbonatation/granulation de la fraction lourde des cendres d'incinération issues de l'incinérateur de la ville de Québec des déchets ménagers et industriels.

Cette étude s'ajoute aux travaux engagés par la ville de Québec sur la valorisation des cendres d'incinération dans l'optique de trouver des voies de valorisation des déchets au lieu de leur enfouissement direct.

Pour ce faire, des étapes de prétraitement ont été effectuées afin de faciliter les processus de carbonatation et de granulation. Des essais préliminaires de caractérisation des échantillons de cendres de grilles d'incinération, suivis des essais d'optimisation des conditions opératoires de carbonatation et granulation ont été réalisés à l'échelle laboratoire.

Les granulats artificiels confectionnés par le procédé établi ont été caractérisés afin de déterminer les voies de valorisation potentiels selon le guide de valorisation des matières résiduelles inorganiques non dangereuses (GVMRIND,2002).

## 2 ÉTUDE BIBLIOGRAPHIQUE

---

### 2.1 Changements climatiques

On entend par « changements climatiques » des modifications du climat qui sont attribués directement ou indirectement à l'activité humaine. Elle résulte en une altération de la composition de l'atmosphère mondiale et vient s'ajouter à la variabilité naturelle du climat observée au cours de périodes comparables (CCNUCC, 1992).

L'influence de l'homme sur le système climatique est clairement établie. En effet, aujourd'hui, les émissions anthropiques de gaz à effet de serre (GES) sont les plus élevées jamais observées. Ainsi les concentrations de GES sont passées de 1900 à 2010, de : 300 à 390 ppm pour le CO<sub>2</sub>, 290 à 340 ppb pour le CH<sub>4</sub> et 290 à 330 ppb pour N<sub>2</sub>O (GIEC, 2014).

La Figure 1 montre l'évolution des concentrations de gaz à effet de serre depuis 1850.

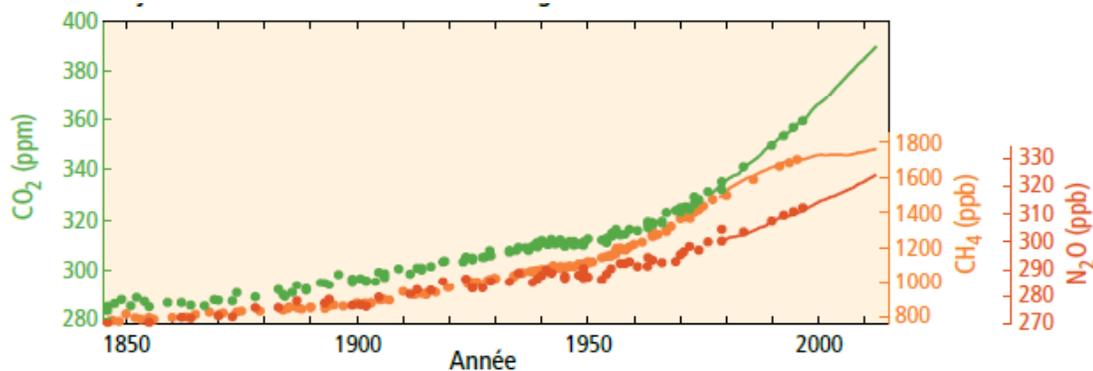


Figure 1 Moyenne mondiale de concentrations de GES (GIEC, 2014)

À partir des années 1950, certains changements climatiques commencent à être observés. Ceux-ci ont de larges répercussions sur les écosystèmes et la vie sur terre. En général, ils se traduisent par une élévation de la température. De ce fait, l'atmosphère et l'océan se sont réchauffés, ce qui a engendré la fonte des calottes glaciaires, l'élévation du niveau de la mer ainsi qu'une augmentation des perturbations atmosphériques (GIEC, 2014).

### 2.1.1 Les gaz à effet de serre : GES

D'après la *Convention Cadre des Nations Unies sur les Changements Climatiques* CCNUCC, les « gaz à effet de serre » sont les constituants gazeux de l'atmosphère, tant naturels qu'anthropiques, qui absorbent et réémettent le rayonnement infrarouge (CCNUCC, 1992).

Le principal gaz à effet de serre est la vapeur d'eau, qui fluctue entre 0,4 % et 4 %. Les activités humaines ont très peu d'impact sur les fluctuations de sa concentration, mais ont un impact fort sur les concentrations des autres GES qui occupent moins de 0,1 % du volume atmosphérique (Baude *et al.*, 2019).

Le tableau 1 présente les GES d'origine anthropique ainsi que leurs concentrations atmosphériques pour l'année 2016 en comparaison avec l'année 2005 (Petit, 2018).

**Tableau 1 Concentrations atmosphériques des GES d'origine anthropique**

	<b>CO<sub>2</sub> (ppm)</b>	<b>CH<sub>4</sub> (ppb)</b>	<b>NO<sub>2</sub> (ppb)</b>	<b>HFC (ppt)</b>	<b>PFC (ppt)</b>	<b>SF<sub>6</sub> (ppt)</b>	<b>NF<sub>3</sub> (ppt)</b>
<b>Concentration atmosphérique 2016</b>	403	1842	329	> 183	> 88	8,9	1,4
<b>Concentration atmosphérique 2005</b>	379	1773	320	> 49	> 4,1	5,6	> 0

**ppm** : partie par million, **ppb** : partie par milliard (billion), **ppt** : partie par trillion.

Le gaz carbonique, dont le temps de séjour dans l'atmosphère est supérieur au siècle, engendre environ 55% de l'effet de serre anthropique ; il provient essentiellement de la combustion des énergies fossiles (charbon, pétrole, gaz naturel) (Lecomte *et al.*, 2009).

Si le CO<sub>2</sub> est le gaz qui a le plus petit potentiel de réchauffement global, il est celui qui a contribué le plus au réchauffement climatique depuis 1750, du fait des importantes quantités émises (Baude *et al.*, 2019).

## 2.1.2 Émissions du CO<sub>2</sub> au Québec

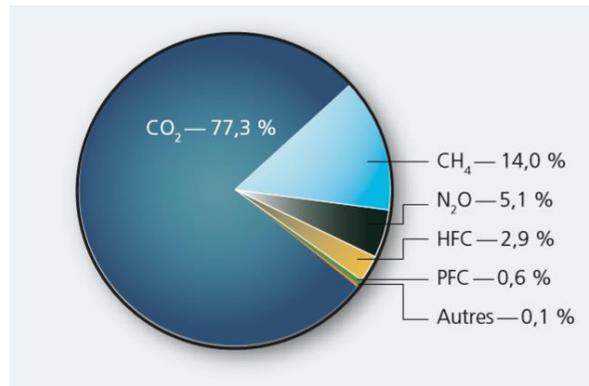
Selon l'inventaire québécois des émissions de gaz à effet de serre en 2019 et leur évolution depuis 1990, du ministère de l'Environnement et de la Lutte contre les changements climatiques (MELCC, 2021), les émissions totales des gaz à effet de serre (GES) au Québec en 2019 se chiffraient à 84,3 Mt éq. CO<sub>2</sub>, ce qui représentait 9,9 tonnes par habitant et 11,5 % des émissions totales canadiennes estimées à 730,2 Mt éq CO<sub>2</sub>.

Il est à noter que les émissions de GES au Québec ont diminué de 2,7 % entre 1990 et 2017. En 2019, le secteur qui produisait le plus d'émissions de GES au Québec était celui des transports (routier, aérien, maritime, ferroviaire), qui générait 36,5 Mt éq CO<sub>2</sub>, soit 43,3 % des émissions totales. Le transport routier représentait à lui seul 79,4 % des émissions du secteur des transports, soit 43,3 % des émissions totales de GES comme présentée par la figure 2.



**Figure 2** Répartition des émissions de GES au Québec, en 2019, par secteur (MELCC, 2021)

En 2019, le dioxyde de carbone constituait 77,3 % de l'ensemble des émissions québécoises de GES. La répartition des émissions des GES illustrée dans la figure 3 laisse dégager que : La production de méthane (CH<sub>4</sub>) s'établissait à 14,0 %, celle de l'oxyde nitreux (N<sub>2</sub>O) à 5,1%, celle des hydrofluorocarbures (HFC) à 2,9 %, et celle des Perfluorocarbures (PFC) à 0,6%. Les autres GES, soient l'hexafluorure de soufre (SF<sub>6</sub>) et le Trifluorure d'azote (NF<sub>3</sub>), totalisaient 0,1 % des émissions totales.



**Figure 3 Répartition des émissions de GES au Québec, en 2019, selon le type de gaz (MELCC, 2021)**

### 2.1.3 Solutions pour réduire l'émission du CO<sub>2</sub> dans l'atmosphère

Pour répondre aux exigences environnementales visant à réduire la concentration atmosphérique du CO<sub>2</sub>, des solutions techniques de séquestration sont étudiées en fonction de leur capacité et de leur pérennité de stockage. Deux approches peuvent être différenciées :

- a) la filière de captage et de stockage du CO<sub>2</sub> (CSC : Capture et stockage du Carbone) ;
- b) la voie de valorisation du CO<sub>2</sub> (CCU : Capture et Utilisation du Carbone).

La filière de captage et de stockage du CO<sub>2</sub> se distingue de la voie de valorisation qui considère le CO<sub>2</sub> comme une matière première et non comme 'un déchet' à éliminer, présentant ainsi un nouvel intérêt industriel et commercial après transformation chimique ou biologique (Turri, 2017).

Etant donné que le CO<sub>2</sub> se présente au-delà d'une teneur atmosphérique de 5 à 7% comme un gaz acide et toxique pour l'homme, il est impératif de se doter avant son stockage d'une connaissance approfondie de la sûreté à long terme de son entreposage (Jean-Baptiste *et al.*, 2003).

## **2.2 Méthodes de séquestration du CO<sub>2</sub>**

La capture et la séquestration du CO<sub>2</sub> comprennent un portefeuille de technologies pouvant potentiellement séquestrer des milliards de tonnes de CO<sub>2</sub> par an. Parmi les différentes options de séquestration pour atténuer les larges émissions anthropiques du CO<sub>2</sub>, on cite : la séquestration géologique, la séquestration biologique, et la séquestration par carbonatation minérale.

### **2.2.1 Séquestration géologique**

La technologie de séquestration géologique du CO<sub>2</sub> représente une approche, particulièrement bien adaptée à grande échelle, pour réduire les émissions du CO<sub>2</sub>. Ce dernier une fois capté est comprimé et transporté, par pipelines, jusqu'au site de séquestration géologique qui peut-être un aquifère salin profond, un gisement de pétrole ou de gaz en voie d'épuisement où il sera injecté sous sa forme supercritique. Même si cette technique a déjà été employée sur une échelle importante offrant un potentiel important de réduction des émissions de CO<sub>2</sub>, elle a encore besoin de franchir de nombreux obstacles, principalement économiques mais également techniques et juridiques (Jean-Baptiste *et al.*, 2003), ((Moutenet *et al.*, 2012).

### **2.2.2 Séquestration biologique**

Cette technique vise à augmenter la photosynthèse, en réduisant la décomposition de la matière organique (processus qui génère des GES) et en créant de l'énergie en récupérant les GES émis lors des transformations biologiques.

Les cycles du carbone dans le sol et la dynamique de protection ne sont pas encore bien compris dans toutes les régions du monde et des modèles variables de propriété / gestion des terres et des forces du marché rendent difficile la prévision de l'adoption de pratiques agricoles ou de gestion des terres pouvant séquestrer biologiquement le carbone (Kane *et al.*, 2015).

### **2.2.3 Séquestration par carbonatation minérale**

La carbonatation minérale (CM) est une solution technologique permettant de séquestrer le CO<sub>2</sub> émis par des émetteurs de petite à moyenne taille, lorsque la séquestration

géologique n'est plus une option viable. Dans les procédés CM, le CO<sub>2</sub> réagit chimiquement avec des composés contenant du calcium et/ou du magnésium afin de former des carbonates stables (Sanna et al., 2014).

La carbonatation minérale est basée sur la réaction du CO<sub>2</sub> avec des oxydes métalliques pour former des carbonates insolubles comme la calcite (CaCO<sub>3</sub>), la dolomie (CaMg(CO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>) et la magnésite (MgCO<sub>3</sub>). Dans la nature, une telle réaction est appelée altération des silicates où une source de métaux alcalins et alcalino-terreux, réagit avec le CO<sub>2</sub> atmosphérique et prend place sur une échelle de temps géologique. Lorsque le CO<sub>2</sub> réagit avec les oxydes métalliques (indiqué ici par MO, où M est un métal divalent, par exemple, calcium ou magnésium), le carbonate correspondant est formé et de la chaleur est libérée. Cette réaction est spontanée, lente et exothermique (IPCC, 2005).

Les réactions de base sont illustrées par les oxydes de Ca et Mg comme suit :

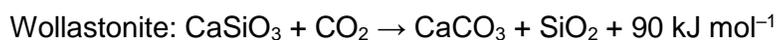
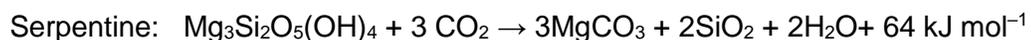
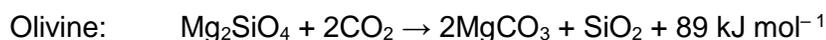
**Équation 1 Réactions de carbonatation impliquant l'oxyde de Ca et Mg**



La quantité de chaleur dépend du métal spécifique et du matériau contenant l'oxyde métallique (Lackner et al., 1995).

Dans le cas de quelques silicates naturels (Olivine, Serpentine et Wollastonite), il y auraient les réactions exothermiques suivantes (conditions standards 25°C et 0,1 MPa) (IPCC, 2005).

**Équation 2 Réactions de carbonatation minérale impliquant les silicates naturels**



Différents types de carbonatation minérale sont présentés ci-après.

Dans le cas des roches silicatées, qui forment la classe de minéraux la plus importante et constituent environ 90% de la croûte terrestre, la carbonatation peut être effectuée soit ex-situ dans une usine de traitement chimique après extraction et prétraitement des silicates, ou in situ, par injection de CO<sub>2</sub> dans des formations géologiques riches en silicate ou dans des aquifères alcalins.

La carbonatation in situ est une opération similaire au stockage géologique, alors que la carbonatation ex-situ implique des étapes de traitement qui nécessitent un apport d'énergie supplémentaire difficile à compenser avec l'énergie libérée par la réaction de carbonatation (IPCC, 2005).

- Carbonatation minérale in situ

Le CO<sub>2</sub> est injecté directement dans le matériau géologique contenant les oxydes de Ca et Mg. Parmi les différents types de sites potentiels de séquestration, les aquifères salins profonds associés à des roches basiques (exemple : basaltes) offrent de grandes capacités ainsi qu'un stockage sûr avec un long temps de résidence du CO<sub>2</sub>.

Outre la composition minéralogique spécifique de la roche aquifère, le stockage minéral in-situ requiert un certain nombre de contraintes communes au stockage géologique en aquifère profond (F.Bodéan, 2006).

La "CM in situ" a été développée plus récemment et se distingue des systèmes conventionnels de stockage géologique en ce que le CO<sub>2</sub> est injecté sous terre dans des conditions optimisées qui sont destinées à accélérer le processus naturel de carbonatation des minéraux (Olajire, 2013).

- Carbonatation minérale ex-situ

La voie 'CM ex-situ' implique la carbonatation de minéraux naturels ou de déchets industriels alcalins via des procédés chimiques industriels.

Avec la technologie actuelle, il existe toujours une demande au processus de carbonatation des minéraux pour (Olajire, 2013):

- La préparation des réactifs solides, y compris l'exploitation minière, le transport...

- Le traitement, y compris l'énergie équivalente associée à l'utilisation, recyclage et pertes éventuelles d'additifs et de catalyseurs,
- L'élimination des carbonates et des sous-produits.

L'importance de ces trois éléments diffère selon la source des oxydes métalliques, s'il s'agit par exemple de silicates naturels ou des déchets industriels. Malgré cette pénalité d'énergie potentielle, l'intérêt pour la carbonatation minérale découle de deux caractéristiques qui la rendent unique parmi les différentes approches de stockage du CO<sub>2</sub>, à savoir l'abondance de métal contenant des oxydes, en particulier des silicates naturels, et la permanence de stockage de CO<sub>2</sub> sous forme solide stable (IPCC, 2005).

La figure 4 présente les différentes possibilités d'utilisation de la carbonatation minérale comme processus de séquestration. Afin d'éviter le transport du CO<sub>2</sub>, l'usine de séquestration peut être installée directement sur le site de l'émetteur. Aujourd'hui, l'utilisation de certains résidus miniers, des scories et des cendres d'incinération, est également possible. Après réaction de carbonatation minérale et formation des carbonates avec le CO<sub>2</sub>, ces derniers peuvent être utilisés dans divers domaines comme agents chaulant dans le traitement des eaux, comme réfractaire dans la sidérurgie, comme substituants de matériaux usuels ou encore dans le secteur pharmaceutique dépendamment de leur degré de pureté (Pasquier, 2014).

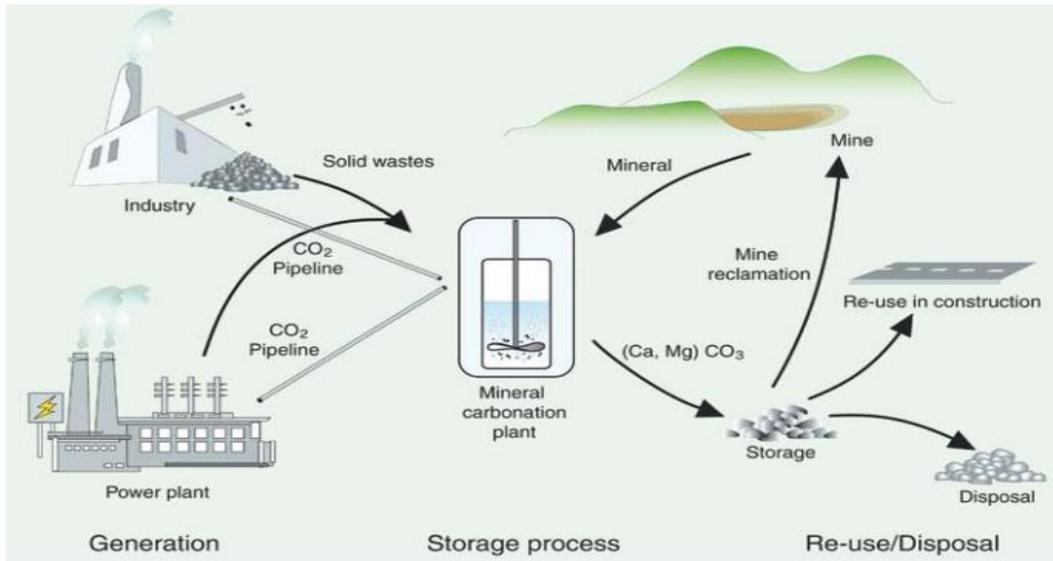


Figure 4 Diagramme général de l'implantation de la carbonatation minérale comme procédé de séquestration ex-situ (IPCC, 2005; Pasquier, 2014)

Les concepts de processus de CM ex-situ qui ont été étudiés peuvent être grossièrement divisés en méthodes directes et indirectes (figure 5).

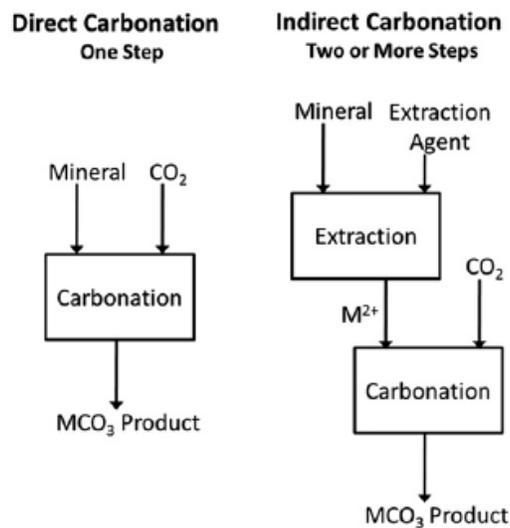


Figure 5 Schéma comparatif entre la carbonatation directe et indirecte (Bobicki et al., 2012)

- Carbonatation minérale indirecte

La carbonatation indirecte est une voie par laquelle le processus CM global est divisé en deux ou plusieurs étapes, dont par exemple, l'extraction de Ca, Mg ou Fe de la matière première, la dissolution du CO<sub>2</sub> (en cas de carbonatation aqueuse) et la précipitation des carbonates se déroulent séparément et/ou dans des réacteurs différents. Beaucoup de voies indirectes de carbonatation utilisant divers minéraux ont été proposées (Bobicki *et al.*, 2012). Le produit final de la carbonatation minérale indirecte est généralement un carbonate pur (Olajire, 2013).

- Carbonatation minérale directe

La carbonatation directe est l'approche la plus simple de la carbonatation minérale, par exemple, une serpentine ou un résidu solide riche en Ca, Mg est carbonaté dans une étape de processus unique. Pour un procédé aqueux, cela signifie que l'extraction des métaux de la matière première et la réaction subséquente avec le dioxyde de carbone dissous pour former des carbonates prennent place dans le même réacteur (Sipilä *et al.*, 2008).

- Carbonatation par voie sèche

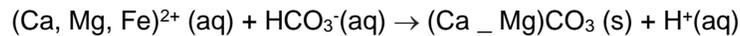
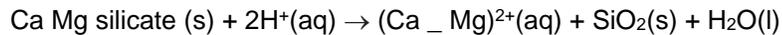
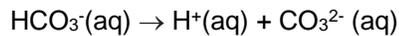
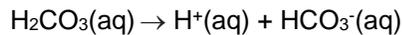
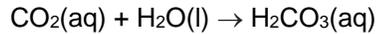
Cette méthode consiste à faire réagir le CO<sub>2</sub> gazeux avec un réactif solide à une température et une pression bien déterminées. La littérature indique que ce type d'approche simple de carbonatation utilisant des minéraux naturels que les serpentinites, et la wollastonite, mène à de faibles taux de conversion et ne constitue pas un procédé viable à l'échelle industrielle, car le temps de réaction pour ce type de carbonatation est très long (Huijgen *et al.*, 2005). Cette approche de carbonatation s'avère intéressante dans le cas de l'utilisation des cendres volantes comme réactif solide, mais avec des températures atteignant jusqu'à 300 °C (Reddy *et al.*, 2011).

- Carbonatation par voie humide

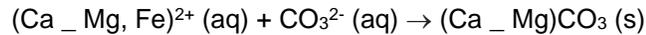
Les synthèses de la littérature s'accordent pour considérer que la voie la plus prometteuse pour le stockage du CO<sub>2</sub> par carbonatation minérale est la voie aqueuse. Les cinétiques obtenues sont plus rapides et les conditions optimales de température sont plus modérées que la voie sèche pour les silicates magnésiens : 70-180°C (contre 300 - 500°C) (Bonfils, 2012). Les mécanismes de carbonatation minérale sous conditions aqueuses peuvent être résumés en trois étapes principales :

- Dissolution du CO<sub>2</sub> dans la phase aqueuse ;
- Lessivage des ions divalents de la matrice minérale ;
- Précipitation du carbonate.

**Équation 3 Série de réactions mises en jeu lors de la carbonatation minérale en phase aqueuse (Huijgen et al., 2005)**



ou :



### 2.3 Gestion des matières résiduelles

L'activité humaine génère d'importantes quantités de matières résiduelles qui sont au cœur des préoccupations environnementales mondiales. En Chine par exemple, une estimation de 200 millions de tonnes des déchets sont générées chaque année, représentant 29 % de la production mondiale totale de déchets (Shou-WeiJian, 2012).

Au fil des années, et grâce aux travaux de recherche effectués, la gestion de matières résiduelles, qu'elles soient d'origine domestique ou industrielle, s'est amplement améliorée. Des efforts ont été déployés depuis quelques années afin de réduire les matières résiduelles enfouies par l'application du principe des 3RV-E (Réemploi, Réduction, Recyclage, Valorisation, Enfouissement). Ce principe vise la diminution du grand tonnage des matières résiduelles éliminées directement par enfouissement et permet l'augmentation de la durée de vie des sites d'enfouissement déjà existants, évitant ainsi le recours à l'utilisation des nouveaux sites d'enfouissement (Guilbault, 2013).

L'incinération des déchets est parmi les méthodes utilisées pour la gestion des matières résiduelles vu que cette opération peut conduire à une forte réduction de la quantité des déchets de 65 à 80% en masse et 85 à 90% en volume et fournir aussitôt de l'énergie utilisable (Shou-WeiJian, 2012).

Deux principaux sous-produits solides d'incinération seront particulièrement définis à savoir les cendres volantes et les cendres résiduelles ou de grilles connues aussi sous le nom de mâchefers.

Aux États-Unis, une majeure partie des cendres volantes est mélangée avec les cendres de grilles avant d'être éliminée dans des décharges mixtes (A.I.Fernández, 2013). En Suède, au Danemark et en Allemagne, les résidus d'incinération sont éliminés dans des décharges sécurisées après un processus de traitement spécifique.

Mis à part la réduction en masse et volume des matières résiduelles par l'incinération, les résidus d'incinération demeurent une préoccupation majeure dans de nombreux pays du monde. L'élimination des déchets d'incinération par décharge n'est plus un choix faisable vu leur tonnage important au fil des années, la limitation de la disponibilité des sites d'enfouissement dans de nombreux pays pour enfouir les cendres d'incinération et leur éventuelle toxicité sur l'environnement (Lam et al., 2010). Plusieurs pays dans le monde ont instauré un mode de gestion des cendres d'incinération par valorisation suivant des réglementations environnementales prédéfinies. De grands efforts ont été déployés pour gérer les cendres avec une utilisation bénéfique en France, en Italie et aux Pays-Bas (Quina et al., 2008).

Les mâchefers sont généralement classés comme un déchet non dangereux selon le catalogue européen des déchets et ont donc un potentiel de recyclage élevé. Les mâchefers ont été utilisés comme substitut de granulats dans les fondations routières et les chaussées bitumineuses dans plusieurs pays européens (Costa et al., 2007).

D'autre part, suite aux opérations de traitement et stabilisation des cendres d'incinération, si nécessaire, ces déchets peuvent être utilisés dans les décharges comme couverture journalière ou matériau de base des routes, comme matériel de construction ou produits de substitution ou dans les sites de stockage souterrains (Schreurs et al., 2000). L'utilisation des mâchefers dans les briques de béton pour remplacer le sable et le gravier, doit tenir compte de la lixiviation des métaux lourds, qui ne doit pas dépasser les limites réglementaires du pays en question (Costa et al., 2007).

Au Québec, les mâchefers servent comme matériel de recouvrement pour les sites d'enfouissement à ciel ouvert (Ville de Québec, 2021).

Afin de s'assurer de l'innocuité et l'éventuelle utilisation des matières résiduelles, la valorisation des déchets au Québec est régie essentiellement selon les normes du règlement sur les matières dangereuses, le règlement sur l'enfouissement et l'incinération de matières résiduelles (REIMR, 2012) ainsi que le guide de valorisation des matières résiduelles inorganiques non dangereuses (GVMRIND,2002) du ministère de l'Environnement et de la Lutte contre les changements climatiques (MELCC,2021).

### **2.3.1 Cendres volantes**

Les cendres volantes sont des résidus issus de l'incinération des matières résiduelles, entraînés par les fumées de combustion de l'installation d'incinération et captés à différents niveaux par le système d'épuration des fumées avant la sortie des gaz de combustion dans l'atmosphère (REIMR, 2012).

Concernant les cendres volantes issues de la combustion du charbon, elles sont constituées des composants inorganiques qui fusionnent pendant la combustion, se solidifient en prenant une forme sphérique et se transforment en une matière particulaire de très fine taille variant entre 0,074 et 0,005 mm de diamètre (Guilbault, 2013).

Les cendres volantes provenant de l'incinération des déchets sont classées comme matières résiduelles dangereuses, en raison de leur teneur élevée en métaux lourds, sels solubles, et composés organiques chlorés. Les cendres volantes ne peuvent pas être utilisées ni même mises en décharge sans un traitement préalable approprié (Poletini et al., 2001)(Colangelo *et al.*, 2015). Des méthodes de stabilisation par séparation, solidification, et traitements thermiques pourront être appliquées sur les cendres volantes avant élimination ou utilisation. La méthode choisie dépendra de la législation en vigueur dans chaque pays concerné (Quina et al., 2008).

### **2.3.2 Cendres de grilles ou mâchefers**

Contrairement aux cendres volantes, ces cendres sont qualifiées de cendres lourdes qui se déposent par gravité à la base des fours de l'incinérateur (Guilbault, 2013).Générés

dans les incinérateurs de déchets, les mâchefers représentent environ entre 20 et 30% des quantités de déchets à l'entrée (Kaibouchi et al., 2006).

Chaque année, environ 18 millions de tonnes de mâchefers sont produites en Europe et bien plus dans le monde. La composition des cendres de grilles s'est avérée très variable, selon la nature de l'alimentation de l'incinérateur, qui comprend les métaux, les plastiques et les déchets putrescibles (Gunning et al., 2010).

Les mâchefers sont sous forme d'un mélange hétérogène principalement composé de matériaux fins, de composants fondus, de céramiques et de pierres, de petites quantités de composants métalliques, ainsi que de traces de matière organique imbrûlée (Schnabel et al., 2021). Les cendres fraîches contiennent des constituants alcalins réactifs (principalement  $\text{CaO}$  /  $\text{Ca}(\text{OH})_2$ ) et présentent une éventuelle lixiviation des métaux traces (par exemple Pb, Zn, Cu) (Kaibouchi et al., 2006).

Les mâchefers issus de la combustion de charbon sont moins complexes à traiter car ils sont issus d'une seule matière première. Ce qui n'est pas le cas pour les mâchefers issus de la combustion de déchets qui sont plus complexes à retraiter (Guilbault, 2013).

Les cendres de grilles sont classées comme déchet non dangereux par le catalogue européen des déchets et la législation catalane, puisqu'elles sont généralement riches en oxyde de calcium et en silice avec des quantités minimales de métaux lourds. Ces cendres peuvent être donc utilisées comme matériau de construction secondaire (A.I.Fernández, 2013).

La valorisation des cendres de grilles de l'incinérateur de la ville de Québec fera l'objectif de ce présent projet de recherche.

### **2.3.3 Incinérateur de la ville de Québec**

À Québec, l'incinérateur municipal (Annexe I) situé dans le quartier Limoilou, reçoit les ordures ménagères des secteurs industriel, résidentiel et commercial de l'ensemble de la Ville de Québec et des municipalités régionales voisines. Sa capacité maximale de traitement de déchets par année est d'environ 312 000 tonnes. Ce sont environ 270 000 tonnes d'ordures et 22 000 tonnes de boues séchées qui sont brûlées chaque année dans les quatre fours de l'incinérateur. Ce dernier est en continu fonctionnement 7 jour sur 7 et 24 heures sur 24. Les boues proviennent des deux stations de traitement des eaux

usées. Le processus consiste principalement à la déshydratation des boues, séchage puis incinération avec les déchets. Les camions de collecte de déchets déversent leur charge dans la fosse à déchets de l'incinérateur. Les ordures sont ensuite réparties dans les quatre fours pour être incinérées à l'aide d'un pont roulant. La température d'incinération est d'environ 950°C (Ville de Québec, 2021).

L'incinération des déchets produit ainsi de la chaleur, de la vapeur, des fumées et des cendres de grilles qui seront dans la plupart du temps traités et/ou utilisés. En effet, une partie de la chaleur produite est utilisée pour sécher les boues, et l'autre partie est convertie en vapeur qui est vendue à des clients. Un projet d'économie circulaire a été lancé en 2019 en partenariat avec l'université Laval pour la valorisation de la vapeur de l'incinérateur qui sera utilisée comme alimentation en énergie renouvelable de l'hôpital de l'Enfant Jésus (Ville de Québec, 2021).

Quant au traitement des fumées, il s'effectue à l'aide des dispositifs antipollution différents et de produits réactifs. L'épuration des gaz est réalisée en utilisant des dépoussiéreurs à manche, des électrofiltres, de la chaux hydratée et charbon actif.

Une surveillance continue des procédés et de certains paramètres d'émission atmosphériques a été instaurée tout au long des opérations d'incinération. Ces paramètres d'émissions sont : les matières particulaires, l'anhydride sulfureux (SO<sub>2</sub>), le monoxyde de carbone (CO) et l'acide chlorhydrique (HCl).

Des contrôles techniques sont aussi effectués pour les dioxines et furannes, les cendres volantes et les métaux lourds. Le traitement des fumées engendre environ 11 000 tonnes de résidus solides par année. Ces résidus sont traités et décontaminés par des procédés d'extractions chimiques.

Également, l'incinération des déchets produit ainsi 65 000 tonnes par année de cendres de grille ou mâchefers. Ces mâchefers en vertu d'une entente entre la ville de Québec et l'entreprise AIM (American Iron and Metal), sont traités en récupérant les métaux ferreux et non ferreux à savoir l'aluminium le cuivre et le zinc. Une fois épurés, ces mâchefers servent comme matériel de recouvrement pour les sites d'enfouissement à ciel ouvert. La Ville de Québec, en poursuivant les travaux d'amélioration des procédés en continu, vise à se conformer aux normes les plus strictes de l'industrie afin de minimiser l'impact du

fonctionnement de l'incinérateur sur l'environnement en allant plutôt vers la valorisation des déchets (Ville de Québec, 2021).

Dans le contexte du développement durable au Québec, la gestion des cendres d'incinération s'avère primordiale afin de réduire le recours à l'enfouissement et d'augmenter la part de leur mise en valeur (Guilbault, 2013) et la durée de vie des sites d'enfouissement.

## **2.4 Carbonatation des cendres d'incinération**

La carbonatation des cendres solides d'incinération (les mâchefers) est la principale réaction chimique qui contribue à leur stabilisation lors de leur maturation (Kaibouchi et al., 2006). En effet, le vieillissement (ou la maturation) réduit la mobilité des contaminants susmentionnés dans les mâchefers et est généralement appliqué avant l'utilisation géotechnique du matériau.

La réaction de carbonatation, en utilisant le  $\text{CO}_2$  est une réaction irréversible gaz / solide médiée par l'eau, en particulier la carbonatation de la portlandite  $\text{Ca}(\text{OH})_2$ , qui est le composé majeur des mâchefers (Kaibouchi et al., 2006). Par cette réaction, le  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  est converti en  $\text{CaCO}_3$  et l'alcalinité est consommée (Brück et al., 2018).

Le procédé industriel consiste à entreposer et exposer les mâchefers aux conditions atmosphériques pendant quelques mois, périodiquement tournés, et potentiellement arrosés (Brück et al., 2018).

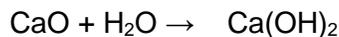
L'oxydation des ferrailles et des imbrûlés et la carbonatation des éléments alcalins et alcalino-terreux sont les principaux mécanismes chimiques impliqués. En effet, ces réactions exothermiques provoquent un échauffement pendant les trois premiers mois de la maturation. Une conséquence de la réaction de carbonatation comme évoquée précédemment, est la diminution du pH de l'eau interstitielle contenue dans la porosité du matériau : passage des valeurs de 11/12 à des valeurs de 8/9. À cette plage de pH, les solubilités des différents métaux contenus dans les mâchefers ainsi que leur mobilisation sont nettement réduites (Kaibouchi et al., 2006).

Les mâchefers, dont les métaux traces sont figés dans leur matrice, peuvent être valorisés par exemple dans le domaine des travaux publics tout en tenant compte bien évidemment des lois et règlements en vigueur.

### 2.4.1 Modélisation de la réaction de carbonatation des mâchefers

Les mâchefers contiennent différents composés calciques, dont principalement la portlandite  $\text{Ca}(\text{OH})_2$ . Cette dernière provient de la chaux vive ( $\text{CaO}$ ) produite dans le four d'incinération par calcination des carbonates de calcium qui sont présents dans les déchets. La chaux vive est par la suite éteinte ( $\text{Ca}(\text{OH})_2$ ) au moment de la trempe des mâchefers en sortie de four pour les refroidir selon la réaction suivante :

**Équation 4**                    **Réaction de la chaux vive avec l'eau**



Au cours de la réaction de carbonatation, la portlandite réagit avec le  $\text{CO}_2$  dissous pour former du carbonate de calcium ( $\text{CaCO}_3$ ).

D'autres composés du calcium et d'éléments alcalins et alcalino-terreux présents dans le mâchefer peuvent être carbonatés comme  $\text{K}^+$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Mg}^+$ .

**Équation 5**                    **Réaction de carbonatation de la portlandite**



La cinétique de la réaction de carbonatation est un élément essentiel de la modélisation.

Elle est contrôlée essentiellement par les transferts solide-liquide et gaz-liquide de dissolution en phase aqueuse du calcium et du  $\text{CO}_2$ . En effet, lorsque le  $\text{CO}_2$  est injecté dans le pilote, il est consommé par la réaction de carbonatation, dès qu'il rencontre du mâchefer. Par la suite, sa progression est notée au fur et à mesure que la portlandite est consommée (Kaibouchi et al., 2006).

## 2.4.2 Travaux antérieurs de carbonatation des échantillons solides

Quelques travaux à l'échelle laboratoire de carbonatation des différents déchets, solides alcalins et résidus d'incinération de certains pays sont résumés dans le tableau 2.

À l'échelle industrielle, « Carbon8 Systems » est la première entreprise à utiliser la technologie de carbonatation accélérée (Accelerated Carbonation Technology : ACT) dont les recherches ont été réalisées par l'université de Greenwich à London (Annexe II).

Il s'agit d'un traitement des déchets industriels à savoir les déchets solides d'incinération, les poussières de ciment ainsi les scories d'acier et des sols contaminés. Cette technologie a fait de cette entreprise un leader mondial de la capture permanente de dioxyde de carbone, via un processus commercial permettant ainsi à cette entreprise de développer des produits sous forme de matériaux neutres en carbone pour le besoin de l'industrie du génie civil. Ce procédé offre des solutions écologiquement durables pour les problèmes des déchets des industries.

En effet, le processus est une version contrôlée et accélérée du processus naturel de carbonatation prenant seulement 15 à 20 minutes au lieu de décennies ou de millénaires comme c'est le cas au niveau du processus naturel. La solution durable de Carbon 8 Systems présente plusieurs avantages :

- Réacheminement des déchets des décharges ;
- Traitement rapide là où les déchets sont générés ;
- Économies importantes sur les frais et les taxes des décharges ;
- Capture permanente de CO<sub>2</sub> ;
- Remplacement des agrégats naturels par des produits durables à faible teneur en carbone (Carbon8 ,c8s.co.uk/, mars 2021)

**Tableau 2 Travaux de carbonatation des solides alcalins dans certains pays**

<b>Méthodes</b>	<b>Paramètres étudiés</b>	<b>Conditions opératoires</b>	<b>Conclusions</b>	<b>Références</b>
<b>Carbonatation directe discontinue des mâchefers (Sanyo Chambre MCO-17Al)</b>	Lixiviation des métaux traces dans les mâchefers	CO <sub>2</sub> : 10% et 20%  Humidité : 2.3, 6, 13, 25, 37 et 50 %. Fraction granulométrique : 0,1 à 2mm. T(°C) : 30, 37 et 50.  Temps : 24h.	Niveau de carbonatation optimal à 10% de CO <sub>2</sub> Teneur d'humidité idéale entre 13 et 25%. T= 50°C Diminution du pH de 11,5 à 8 Diminution de la lixiviation de Cu et Cr.	Van Gerven, Van Keer (2004) <i>Belgique</i>
<b>Carbonatation directe continue des mâchefers</b>	Caractérisation thermodynamique et cinétique de la réaction dans les différentes conditions expérimentales du pilote	Temps : 2 à 7h.  CO <sub>2</sub> : 100 %.	Réaction prépondérante : carbonatation de la portlandite et la cinétique contrôlée par les transferts gaz-liquide et solide-liquide, eux-mêmes limités par les solubilités du CO <sub>2</sub> et du calcium dans la phase aqueuse.	Kaibouchi, S., et al.(2006) <i>France</i>
<b>Procédé de carbonatation directe en phase humide des cendres résiduelles et cendres volantes</b>	Lixiviation des métaux et effet de la composition minéralogie initiale sur le taux de carbonatation	Ratio L/S : 0.05 – 0.6 w/w. CO <sub>2</sub> : de 0.03 à 100 % T : entre ambiante et 50°C. Temps de séjour de quelques heures à quelques semaines. Échantillon séché et tamisé : seule la fraction granulométrique de 0,1 à 4 mm a été étudiée.	Réduction de la lixiviation des métaux en particulier Pb et Zn. Le type et l'étendue des effets de la carbonatation accélérée sur la libération des métaux sont fortement liés à la fois aux caractéristiques minéralogiques des résidus et au degré de carbonatation atteint. Aucune conclusion générale et univoque sur le lessivage ne peut être tirée.	Costa et al. (2007) <i>Italie</i>

Méthodes	Paramètres étudiés	Conditions opératoires	Conclusions	Références
<b>Carbonatation aqueuse des résidus de l'unité de contrôle de dépollution d'air de l'incinérateur</b>	Effet du ratio liquide/solide et température sur l'efficacité de la carbonatation et la lixiviation des métaux	CO <sub>2</sub> : 100% Pression : 1, 3, 5, 7 ou 10 bars.  Ratio liquide/solide : L/S de 0,02 à 0,6 l/kg.  T(°C) : 30, 40 et 50.	Séquestration optimale du CO <sub>2</sub> de plus de 250 g/kg de résidu a été atteint en moins d'1h avec 100% CO <sub>2</sub> à 3 bars avec un ratio L/S 0,2 l/kg, à 30 °C ou L/S de 0,02 l/kg à 50° C. Diminution de la mobilité du Pb, du Zn et Cu, un léger changement de mobilité pour Cr et Sb, et aucun effet majeur sur la libération d'As et des sels solubles.	Baciocchi et al. (2009) <i>Italie</i>
<b>Carbonatation accélérée des différentes classes granulométriques des mâchefers</b>	Fractions granulométriques A :12 - 5.6mm B : 5.6 – 2 mm C : 2 – 0.425 mm D : 0.425 – 0.150 mm E : < 0.150 mm Broyées à une granulométrie <425 µm : réactivité liée à la composition chimique	Rapport (L/S) : 0-0,6l/kg T (°C) : 30 à 50 P : 1 à 10 bars Temps :0,5 à 48 h CO <sub>2</sub> : 100 %	Optimal d'absorption de CO <sub>2</sub> à P = 10 bar, T = 30 °C, t = 2 h, et un L/ S = 0,3 l/kg. Rendement de séquestration de CO <sub>2</sub> par clases granulométrique après 8h : A : 4,2 %; B : 4,1 %; C : 4,0 %; D : 9% E : 14 %. Réduction de la lixiviation du Pb Diminution du pH suite à la carbonatation a entraîné un effet de mobilisation du Cr.	Baciocchi et al. (2010) <i>Italie</i>
<b>Carbonatation accélérée des différents types de déchets</b>	Réactivité du CO <sub>2</sub> liée à la teneur totale en calcium Déchets testés : poussière de ciment, cendres d'incinération des déchets cliniques, cendres d'incinération du papier, boues d'épuration.	P : 10,20,30 et 40 bars CO <sub>2</sub> : 100 % Temps : maximum 72 h	Poussières de ciment et cendres volantes de charbon étaient les plus réactives. 260 g de CO <sub>2</sub> séquestré par kg de cendres volantes de charbon après 18h à 30 °C et sous haute pression. La minéralogie du matériel porteur de calcium est aussi déterminante pour l'efficacité de captage du CO <sub>2</sub> .	Gunning et al. (2010) <i>Royaume-Uni</i>

Méthodes	Paramètres étudiés	Conditions opératoires	Conclusions	Références
<b>Carbonatation des mâchefers dans un réacteur à lot de tambour rotatif</b>	Effet de la vitesse de rotation du tambour et niveau de remplissage Taux d'humidité des cendres. Lixiviation des métaux Effets de la concentration en CO <sub>2</sub> .	CO <sub>2</sub> : 15,35,55,75 et 100%. Taux d'humidité : 15,18,21,24 et 27 %. Fraction granulométrique <10mm Temps : 120 min	Niveau de carbonatation optimal : 75% de CO <sub>2</sub> . Teneur d'humidité optimale : 21%. Forte diminution de la lixiviation de Pb et Zn mais n'a pas pu empêcher la lixiviation des chlorures et des sulfates.	Brück, Schnabel (2018) <i>Allemagne</i>
<b>Carbonatation minérale des cendres volantes de charbon</b>	Efficacité de la carbonatation reliée aux différentes conditions de pression et température	T : 25 et 45°C. P : de 1 à 15 bars. Rapport liquide/solide : de 0,06 à 0,35.	Séquestration du CO <sub>2</sub> maximale : 140,6 g/kg à 25°C et 181,8 g/kg à 45°C. Une augmentation de 20° C décale le temps de réaction de 209 à 135 min. Pour des pressions supérieures à 10 bars, l'effet de la température sur l'absorption du CO <sub>2</sub> n'est pas aussi évident que pour les faibles pressions.	Mazzella et al. (2016) <i>Italie</i>
<b>Carbonatation-lavage et minéralisation des mâchefers (EquiAsh®)</b>	Lixiviation des métaux traces contenus dans les cendres après l'application du procédé	Fraction granulométrique : <2mm T=20 – 40°C Mélange air – CO <sub>2</sub> (4% v/v) pendant 3 semaines	15Kg CO <sub>2</sub> /Tonne de cendres sous forme de CaCO <sub>3</sub> 8<pH<8,5 à long terme	Steketee, J.M. Langevoort (2020) <i>Pays-Bas</i>
<b>Carbonatation aqueuse dans un système saturé en CO<sub>2</sub> des solides alcalins industriels et gisements naturels</b>	Efficacité de la carbonatation en fonction de la topologie atomique du réactif solide	Séchage et broyage : broyeur à boulets pendant 40 min Fraction granulométrique entre 38 et 53 µm S/L = 0.01 100% de CO <sub>2</sub> barbotée en continu avec à une pression atmosphérique à 60 °C	Rendement de carbonatation : Cendres volantes de combustion de charbon : 12,7% après 24h, contre 19,5% après 72h. Scories de fer et d'acier (5 types) une moyenne de séquestration de 33,6% après 24h contre 35,14% après 72h.	La Plante <i>et al.</i> (2021) <i>États Unis</i>

## 2.5 Granulation

La granulation appelée aussi agglomération, pelletisation ou bouletage est l'étape clé dans de nombreuses industries, à savoir dans le traitement des minéraux, les produits chimiques agricoles, les produits pharmaceutiques et le traitement des déchets (Iveson *et al.*, 1998).

Il s'agit d'un processus d'agrandissement de taille de particules à granuler qui permet la formation de matériaux granulaires à partir de poudres fines, en utilisant la méthode de dispersion liquide dans des lits fluidisés, dans des disques ou dans des granulateurs à cisaillement élevé (Litster *et al.*, 2004).

### 2.5.1 Processus général de granulation

La performance du processus de granulation est régie principalement en fonction des propriétés techniques du matériau à granuler, de l'humidité du milieu, de la position et l'angle d'inclinaison du tambour ou du disque de bouletage ainsi que la vitesse de rotation.

Lorsque le matériau est sec à granuler, les différences de taille de ces particules, leur forme ou leur densité peuvent provoquer une ségrégation lors de la granulation. Cependant, la ségrégation peut être inhibée en présence d'eau (Brück *et al.*, 2018).

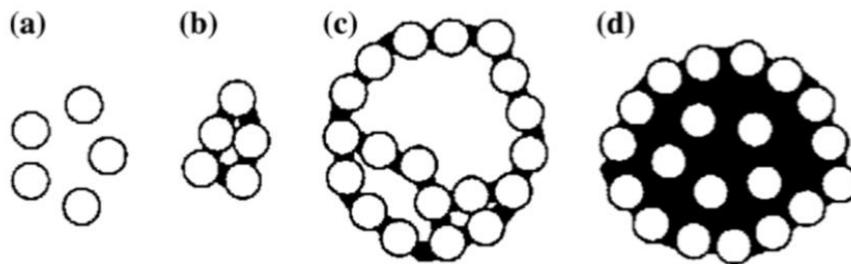
La théorie du processus de pelletisation a été émise par rapport aux lois mécaniques et cinétiques suivant les observations et analyses effectuées conformément aux paramètres suivant (Arslan *et al.*, 2006) et (Baykal *et al.*, 2000) et est présentée comme suit :

Lorsqu'un échantillon à grains fins est humidifié par l'eau généralement, une fine pellicule liquide se forme à la surface des grains (figure 6-b). Lorsque les particules sont mises en rotation dans un tambour ou un disque de granulation, il y aura formation des structures en forme de boule. Pour une humidité suffisante, des forces de liaison améliorées entre les grains seront formées assurant leur cohésion. (Litster *et al.*, 2004).

La structure primaire forme le noyau du granulat qui grossit progressivement au fur et à mesure que des particules plus hydratées seront enrobées sur le noyau (figure 6-d).

Cette structure peut ne pas être compactée et présentera des vides d'air (figure 6-c).

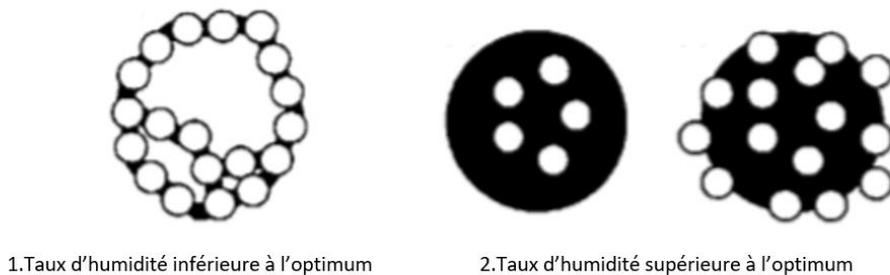
Lorsque ces structures formées sont entraînées en rotation dans le tambour de pelletisation, il y aura une condensation des particules grâce aux forces mécaniques développées par les particules qui se cognent les unes contre les autres et contre les parois du dispositif de granulation. Les forces centrifuges et gravitationnelles créées par la rotation du tambour assureront le rapprochement des particules et la formation d'une structure granulaire plus dense et confère aux granulats formés une résistance suffisante pour être manipuler. Les performances techniques des granulats formés sont améliorées à mesure que la structure se densifie (Arslan *et al.*, 2006).



**Figure 6 Mécanisme de formation de granulat**

Les particules commencent à fusionner en raison de l'augmentation de la quantité d'eau et donc l'augmentation de la tension superficielle.

Si la quantité d'humidité dépasse ou serait inférieure à la quantité optimale de formation de granulat, il y aura formation des structures présentées par la figure 7 (Arslan *et al.*, 2006) et ceci engendrera un éventuel blocage de la réaction de granulation.



**Figure 7** Enjeux de la formation des granulats par rapport à la quantité d'eau

Pour résumer, la granulation est un processus d'agglomération de particules en des ensembles d'agrégats plus grands en pulvérisant un liquide sur les particules lorsqu'elles sont agitées dans un tambour, un lit fluidisé, un mélangeur à cisaillement élevé ou un dispositif similaire.

Les particules peuvent aussi être liées entre elles, par l'intermédiaire du liant, par une combinaison de pression capillaire, de tension de surface et de forces visqueuses jusqu'à ce que des liaisons plus permanentes soient formées par séchage ou frittage ultérieur (Iveson *et al.*, 1998).

Différents liants peuvent être utilisés dans le processus de granulation des cendres de grilles par exemple comme le ciment, chaux ou cendres volantes (Cioffi *et al.*, 2011).

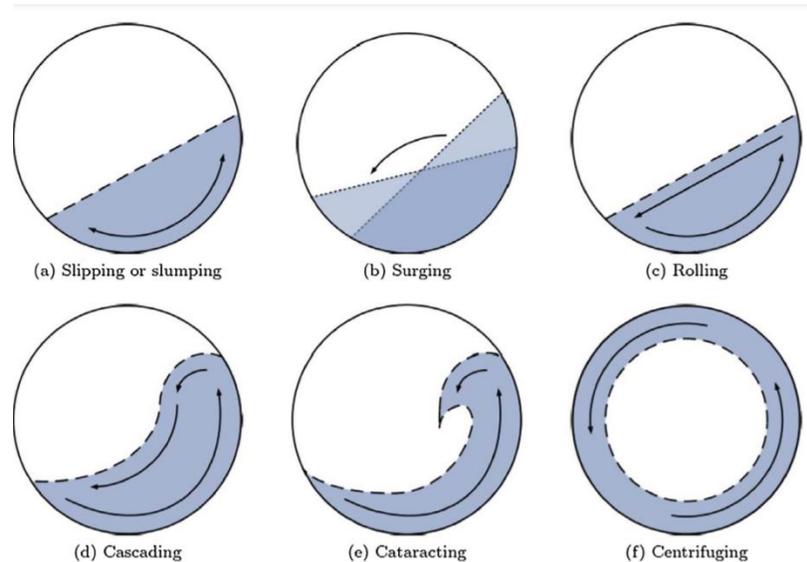
Certains avantages des matériaux agglomérés comprennent des propriétés d'écoulement améliorées, une réduction de la poussière, et une densité apparente accrue.

Cependant, il est difficile de prédire le comportement de granulation d'une nouvelle formulation à partir de ses seules propriétés fondamentales. Ainsi, une granulation incorrecte provoque des problèmes dans les processus en aval tels que l'agglomération et la ségrégation entraînant de mauvaises performances à la compression (Iveson *et al.*, 1998).

Cela dit, il est nécessaire de faire des tests préliminaires sur un nouveau matériel afin d'obtenir une recette adéquate de granulation tout en tenant compte des conditions opératoires à savoir le pourcentage du liant, temps de granulation, et temps de cure.

## 2.5.2 Réacteur de granulation

Le dimensionnement, la configuration et l'angle d'inclinaison du dispositif de granulation ainsi que le sens et la vitesse de rotation du tambour sont parmi les éléments déterminants de la forme et des performances mécaniques des granulats (Govender, 2016). Les différents régimes de mouvement du tambour ont aussi une influence sur la formation des granulats (Brück et al., 2018). Différents modes de rotation de tambour de granulation sont présentés ci-après à la figure 8.



**Figure 8 Modes de rotation du tambour de granulation (Govender, 2016)**

À une vitesse bien définie du tambour rotatif, le débit est supposé statique ainsi les grains sont supposés se déplacer à la vitesse angulaire du tambour rotatif.

Un mouvement de glissement (Figure 8 a) et b) est susceptible de se produire à rotation lente et à faible friction entre le solide et la paroi du tambour. Dans ce cas, la réaction de granulation sera inhibée.

Le mouvement de roulement est caractérisé par le mouvement continu d'une fine couche de solides sur le lit incliné. Puisque la surface libre est continuellement renouvelée, le mélange et l'échange de chaleur devraient être plus efficaces par rapport à un écoulement glissant (Brück et al., 2018).

Le roulement de chute en cascade (figure 8 d)) se caractérise par un des écoulements plus rapides au cours lesquels les particules du mélange interagissent principalement par collision et dont les forces gravitationnelles et centrifuges sont équilibrées. La granulation s'avère adéquate pour ce type de mouvement.

Pour des vitesses de rotation plus élevées, il y aura un phénomène de certification qui fait que les particules du mélange soient quasiment collées à la paroi du tambour rotatif et donc leur cohésion deviendra impossible (Govender, 2016).

### **2.5.3 Combinaison carbonatation-granulation**

L'utilisation de la carbonatation accélérée en combinaison avec un processus de granulation a été utilisée afin de produire des granulats à partir de différents déchets industriels, dont des déchets solides d'incinération, des cendres volantes, des poussières de four à ciment (Berber *et al.*, 2020).

Les granulats s'avèrent être des matériaux largement utilisés dans plusieurs domaines. Ils sont devenus des matériaux de première nécessité dont leur approvisionnement doit être assuré de façon permanente et durable surtout pour la filière de construction. Cependant, la disponibilité des granulats dans le milieu naturel a ses limites et ceci fait de ces derniers des ressources épuisables d'autant plus que les lieux de leur extraction deviennent de plus en plus éloignés des lieux de leur utilisation (Rahmouni *et al.*, 2016).

Cela dit, et afin de répondre au besoin vital de la construction, et au besoin universel de conservation des ressources naturelles ainsi que la protection de l'environnement contre le dégagement de CO<sub>2</sub>, il est indispensable de développer des matériaux de substitution aux granulats naturels en valorisant les déchets et les sous-produits des industries.

Comme mentionné précédemment, la carbonatation des cendres d'incinération se présente comme maillon d'une économie circulaire qui permettrait de répondre au besoin exprimé plus haut par l'industrie de construction dans le respect des ressources naturelles non renouvelables est une possible solution à ce dilemme. La combinaison cendres-CO<sub>2</sub> donne naissance aux granulats carbonatés, qui peuvent être transformés en granulats usuels (remplacer la fraction de gravier dans des briques en béton) sous notamment, certaines conditions.

Cependant, avant l'utilisation de ces granulats carbonatés, il est nécessaire de mener une méthodologie de caractérisation des propriétés intrinsèques de ces sous-produits (les granulats carbonatés) et des produits finaux (les bétons à base de granulats carbonatés (Rahmouni *et al.*, 2016).

Dans la littérature, différents tests de carbonatation et granulation des déchets dont les cendres d'incinération ont été réalisés dont le but de confectionner un béton à base de granulats carbonatés. Suite à l'analyse des caractéristiques de granulats carbonatés, une évaluation expérimentale des propriétés mécaniques et thermiques de bétons à base de granulats carbonatés ainsi qu'une étude comparative des performances des bétons conçus avec les granulats carbonatés et des bétons de référence à base de granulats naturels ont été réalisées.

Afin d'adapter au mieux la formulation du béton conçu avec des granulats carbonatés, des calculs sur le rapport d'efficacité eau/ciment dans le béton ont été effectuées et des mesures de la capacité d'absorption d'eau ainsi qu'un test de résistance à l'écrasement ont été également réalisés.

### **Travaux antérieurs de granulation ou combinant carbonatation-granulation**

Une panoplie de travaux de granulation ou combinant granulation/carbonatation a été réalisée avec différents types de déchets d'incinération à savoir les cendres volantes, les mâchefers, les cendres de charbon et différents liants comme le ciment, la chaux et les cendres volantes...

Le tableau 3 suivant présente les différentes conclusions de quelques travaux de granulation ou de combinaison granulation carbonatation tout en mentionnant les conditions opératoires utilisées et les analyses réalisées sur les granulats formés.

**Tableau 3 Travaux de combinaison carbonatation/granulation dans certains pays**

<b>Méthodes</b>	<b>Conditions opératoires</b>	<b>Conclusions</b>	<b>Références</b>
<b>Granulation des cendres volantes en présence du ciment</b>	Taux de ciment par rapport à la quantité de cendres volantes : 10, 20 et 30 % Différents angles et rotations testés pour le granulateur	Production optimale : angle entre 42 et 45°, 42 à 48 rotations par minute Apparition des premiers granulats entre 6 et 9 minutes de réaction Temps maximal de réaction de 20 minutes Résistance à la compression de 0.185 à 1.423 MPa Entre 21.31 et 36.67 % de taux d'absorption d'eau L'ajout du ciment augmente la gravité spécifique et la résistance au cisaillement mais diminue l'absorption d'eau.	Arslan & Baykal, (2006) <i>Turquie</i>
<b>Stabilisation et solidification dans un granulateur à plaques rotatives</b>	Différents mélanges testés : cendres résiduelles, broyées à sec (<125µm) entre 60 et 90 % (Distribution granulométrique des cendres reçues de l'incinérateur : de >25mm jusqu'à <0,125 mm) Température ambiante Ajout de liants hydrauliques : cendres volantes de ciment, de chaux et de charbon <ul style="list-style-type: none"> <li>• Ciment : de 10 à 30%</li> <li>• Chaux : 30%</li> <li>• Ciment/ chaux :10/20%</li> <li>• Chaux/cendres volantes de charbon : 20 à 40%</li> </ul> Liquide/Solide : de 0.28 à 0.35 Rotation du granulateur : de 35 à 55 rpm Durcissement des granulats pendant 24h dans une chambre climatique à 40°C et à une humidité relative de 95% 14 jours de cure à température ambiante.	Taille des granulats : de 5 à 20 mm Formation du gel Al(OH) <sub>3</sub> après 7 d'hydratation : provoque un gonflement et par la suite fissure dans les produits durcis Densités de granules (1170 et 1330 kg /m <sup>3</sup> ) : classés comme agrégats légers Capacité maximale d'absorption (WAC) 13.46% Augmentation de WAC avec la diminution de la teneur du liant Résistance à la compression : 1.9 à 4.5 MPa Lixiviation des métaux Cr, Cu, Pb et Zn après 72h allant jusqu'à 672h ne dépasse pas la limite de la réglementation	Cioffi <i>et al.</i> (2011) <i>Italie</i>

Méthodes	Conditions opératoires	Conclusions	Références
<b>Combinaison de carbonatation accélérée et granulation humide des scories d'aciérie</b>	CO <sub>2</sub> : 100% à 1 bar Température ambiante Temps de réaction : entre 30 et 120 min Dispositif utilisé : diamètre 0,3 m et hauteur de 0,23 m, équipé d'une lame et opéré à 24 tr/min avec une inclinaison de 50°	Granulés obtenus : de 4 à 10 mm Valeurs maximales d'absorption du CO <sub>2</sub> : entre 120 et 144 g par kg d'échantillon Diminution du pH et immobilisation du Ba Un degré de carbonatation plus élevé se produisant sur la couche externe des granulés par rapport au noyau interne.	Morone <i>et al.</i> (2014) <i>Italie</i>
<b>Granulation cimentaire à froid en double étapes cendres volantes</b>	Liants utilisés : ciment, chaux, Utilisation de 50% à 70% de cendres volantes prélavées Système de pulvérisation d'eau sur les cendres et les liants 45 tr/min pour la vitesse de rotation et 45° pour l'angle d'inclinaison Durcissement des granulats pendant 12h puis pendant 14j Seconde étape de granulation avec 1: 1 un liant de cendres volantes de charbon / ciment	Granulats de 4 à 12 mm de densité moyenne d'environ 1050 kg/m <sup>3</sup> . Taux d'absorption de 8,9 à 15,5% pour la granulation en une étape et 7,3 à 13,7% pour la granulation en deux étapes Résistance à l'écrasement 1,3 à 6,2 MPa Dépassement des limites de lixiviation du Cd et du Zn Libération des métaux est beaucoup plus faible dans le cas des granulés fabriqués via la granulation en deux étapes La libération de métal est affectée par le type de liant. En effet, les granulés à base de ciment contenant 70% de cendres se comportent mieux que les granulés à base de chaux correspondants.	Colangelo et al. (2015) <i>Italie</i>

Méthodes	Conditions opératoires	Conclusions	Références
<b>Granulation par combinaison de mélange de cendres volantes-liant.</b>	<p>L'eau est pulvérisée sur les matériaux au moment de la granulation</p> <p>Les granulats seront séchés à l'air libre pendant 24 heures suivi par un processus de collage à froid (durcissement à l'eau) pendant 28j</p> <p>Position du granulateur : de 35° à 50°</p> <p>Vitesse de rotation de 35 à 50 rpm</p>	<p>Forme ronde des granulats et l'évolution en taille dépendent du type de liant ajouté et du temps de granulation.</p> <p>Liant : chaux hydratée donne de meilleurs résultats que le ciment.</p> <p>Grande efficacité atteinte pour un angle de 36°, 55 rpm 17 minutes de réaction et 28% d'eau</p> <p>Absorption d'eau 24h suivant le type du liant : 16.5 jusqu'à 35.1 % (dépendant de la porosité)</p> <p>Densité des agrégats issus des cendres volantes, de la chaux hydratée et du laitier broyé de haut fourneau est d'une moyenne de 2,42 26.7 MPa pour les granulats de 10mm.</p>	<p>Vali <i>et al.</i> (2020)</p> <p><i>Inde</i></p>
<b>Étape 1 : pré mélange, hydratation et carbonatation</b> <b>Étape 2 : combinaison carbonatation-granulation</b>	<p>Différents mélanges de résidus préalablement séchés et des particules fines de carrière : *MSWI *APC de 1% à 100%</p> <p>Étape 1 : 3000 r/min, Étape 2 : 600 r/min</p> <p>Échantillon initial mélangé avec de l'eau pendant 2 min (L/S = 0.2–0.3 w/w) puis injection de 20% CO<sub>2</sub> 100L/h pendant 30 minutes.</p> <p>Étape 2 : ajout d'additifs : ciment portland ou particules fines, ajout d'eau (L/S = 0.2– 0.5 w/w) pour initier l'agglomération</p> <p>Ajout 20% CO<sub>2</sub> pendant 20min</p> <p>Séchage des particules 2h à 105°C.</p> <p>*MSWI: municipal solid waste incineration</p> <p>*APC: air pollution control</p>	<p>Taille des granulats : 4-10mm de forme régulière</p> <p>Résistance à la compression : 1.03-4.03 MPa</p> <p>L'ajout entre 5% à 10% de ciment augmente la résistance à la compression des granulats</p> <p>Granulats contenant &gt;11% de MSIW APC : ph = 11.5 (supérieur à la limite)</p> <p>Lixiviation du chlorure, plomb, chrome, molybdène et cuivre qui dépassent la limite pour les rejets inertes.</p>	<p>Berber <i>et al.</i> (2020)</p> <p><i>Estonie</i></p>

Méthodes	Conditions opératoires	Conclusions	Références
<b>Granulation des résidus miniers avec et sans ciment portland</b>	Appareil de granulation (le même utilisé dans cette étude) avec une inclinaison de 15° par rapport à la surface horizontale. Entre 15 et 50 rpm. Temps de granulation : 15,30 et 45 minutes. Teneur en ciment : 2, 6 ou 10 % en poids des solides. Contenu liquide : de 13 à 16 % du poids total.	Sans ciment : Granulats de 1 à 41 mm. Teneur en liquide < à 13,5 % : croissance incontrôlée avec des particules mal agrégées 13.5 à 15.5% de liquide : agrégats sphériques et plus consolidés et compacts que ceux avec des teneurs élevées en liquide. À 30 rpm après 45 min : taille maximale atteinte À 45 et 50 rpm : effondrement des granulats après 15 min. Avec ciment : À 13.5 %d'humidité : coalescence incontrôlée par un séchage excessif du mélange. À 16% d'humidité ; formation de granulats grossiers de taille supérieure à 24 mm. 13% et 14% d'humidité : résistance à la compression de 0,30, 0,72 et 1,18 MPa pour 2, 6 et 10% de ciment. Densité moyenne des granulats : de 3,12 ± 0,37 g / cm <sup>3</sup> .	Viry et al. (2021) Canada
<b>Combinaison de carbonatation accélérée et granulation humide des cendres volantes de combustion</b>	Granulométrie initiale des cendres : 0.13mm. Test laboratoire : granulateur à disque (diamètre 0,3 m et hauteur 0,23 m), 24 tr/min et incliné à 50°. Test à grande échelle : réacteur de 150 cm de largeur et 8cm de diamètre interne. T : 25 à 60°C. Liant utilisé : eau ou activateur alcalin (silicate de sodium). Durée des tests de carbonatation : 30 min Pression gaz : 1 bar.	Résultats des tests laboratoire presque similaires aux tests à grande échelle. Meilleures performances techniques et environnementales des granulats : à 60°C et 40% de CO <sub>2</sub> (75g de CO <sub>2</sub> /kg de granulats). La plus grande augmentation de la taille des particules a été obtenue en utilisant l'activateur alcalin comme liant plutôt que l'eau.	Baciocchi et al. (2021) Italie

## 2.6 Cadre législatif

La valorisation ou l'utilisation possible des granulats confectionnés à partir des mâchefers est régie par les guides de valorisation et de direction des politiques du service des matières résiduelles du Ministère de l'Environnement du Québec.

En premier lieu, une comparaison des valeurs des concentrations des contaminants en mg/L obtenues après les tests de lixiviation TCLP (protocole détaillé dans la section 5.3.1) sur l'échantillon avec les limites admissibles du règlement sur les matières dangereuses RMD est réalisée. Si les valeurs trouvées sont inférieures aux valeurs du RMD, le matériel testé sera qualifié de non dangereux. Par la suite, d'autres essais de caractérisations pourront être réalisés afin de déterminer les voies d'utilisation du matériel suivant les guides de valorisation de la province.

Cette partie présente des extraits du guide de valorisation des matières résiduelles inorganiques non dangereuses de source industrielle comme matériau de construction GVMRIND (2002) et les critères d'admissibilité selon les critères A, B et C du guide d'intervention sur la protection des sols et réhabilitation des terrains contaminés (guide, 2021). Les valeurs limites réglementaires des critères A, B et C sont présentées l'annexe I et II du règlement sur la protection et la réhabilitation des terrains (RPRT).

Le guide GVMRIND a été élaboré dans le but de favoriser la valorisation des matières résiduelles dans le respect de l'environnement. Il a été également rédigé dans le but de favoriser les démarches pour la valorisation des matières résiduelles inorganiques non dangereuses de source industrielle (par exemple, le sable de fonderie, les scories d'aciérie, les résidus miniers, les mâchefers, etc.) GVMRIND (2002).

En ayant recours aux critères d'admissibilité d'utilisation ou de valorisation des matériels résiduelles, une classification peut être réalisée comme précisé ci-après.

En premier lieu, un classement direct en fonction du contenu en mg/kg ou du choix d'un usage de catégorie III peut être réalisé. Pour ce faire, les critères génériques de contenu en mg/kg pour les métaux et métalloïdes présents dans l'échantillon sont déterminés. Les valeurs d'analyses trouvées seront rapportées aux valeurs du règlement sur la protection et la réhabilitation des terrains pour les critères d'utilisation A, B et C.

À la suite de la classification suivant les critères énumérés, une classification suivant les catégories d'utilisation I, II et III peut être définie.

Bien que les matières résiduelles (dans notre cas la fraction lourdes des cendres d'incinération), ne soient pas des sols, des analogies peuvent être relevées, au regard de l'exposition des différents récepteurs humains ou environnementaux, en présence de granulométries similaires GVMRIND (2002).

Pour les usages routiers recouverts par exemple, le critère C est retenu. Un matériau de granulométrie inférieure à 2,5 mm (granulométrie similaire à celle d'un sol) et présentant des teneurs en métaux ou métalloïdes supérieures au critère C sera donc classé directement dans la catégorie III.

Une matière résiduelle est considérée de granulométrie inférieure à 2,5 mm si elle contient plus de 10 % de matériau présentant cette granulométrie.

La mobilité des contaminants sera évaluée à l'aide de la capacité de neutralisation et de trois tests de lixiviation (la lixiviation à l'eau, la lixiviation en milieu acide acétique et la lixiviation pour simuler des pluies acides) simulant différentes conditions qui ne seront pas nécessairement celles auxquelles seront soumis les matériaux dans les différents usages. Comme mentionné dans le GVMRIND, si l'usage envisagé est de catégorie III, il ne sera pas pertinent de procéder à l'ensemble des analyses de la procédure. « En effet, toutes les matières résiduelles qui échouent un des essais se retrouvent automatiquement dans la catégorie III. L'analyse du contenu en mg/kg demeure toutefois pertinente pour l'évaluation de la compatibilité (effet sur la matrice) avec l'utilisation envisagée » (GVMRIND,2002).

L'étape finale de classement est présentée dans l'annexe VII.B. En effet, après la réussite des tests de mobilité, il y aura classement dans la catégorie I si la matière résiduelle est d'une granulométrie supérieure à 2,5 mm, ou dans la catégorie II si elle est d'une granulométrie inférieure à 2,5 mm.

Les définitions des différents usages suivants les trois catégories sont présentées dans l'annexe VII.C. Un « oui » dans une colonne signifie que l'usage est permis.

« Pour la catégorie I, l'ensemble des usages est permis sans restriction, sauf pour la construction sur des terrains résidentiels, où un facteur de sécurité est introduit par une restriction supplémentaire : la granulométrie doit être supérieure à 5 mm. Étant donné

que le ballast de chemin de fer est toujours de dimension supérieure à 2,5 mm (aspect géotechnique), il a été inscrit seulement dans la catégorie I » (GVMRIND,2002).

Pour la catégorie II, les usages qui ne sont pas permis, en comparaison avec la catégorie I, sont : la construction d'une fondation de route et d'un accotement non asphalté, et l'utilisation comme abrasif en hiver, qui sont des utilisations non recouvertes, ainsi que la construction sur des terrains résidentiels et sur des terrains commerciaux et industriels, en raison de la sensibilité des milieux ou de la difficulté de contrôler l'usage GVMRIND (2002).

L'utilisation pour la construction sur des terrains commerciaux et industriels serait envisageable pour des matériaux de catégorie II à condition que le promoteur puisse assurer que les matières résiduelles demeureront confinées en permanence sous une structure.

D'après l'annexe VII.C, les usages pour la catégorie III sont moins nombreux et ne sont pas en contact direct avec les sols. « Des usages pour cette catégorie peuvent être définis sous forme d'enrobé (filler minéral, traitement de surface, enrobés à chaud, enrobés à froid, granulats pour coulis de scellement, béton maigre, fabrication de béton et matière première dans la fabrication de clinker), à l'intérieur de sites d'enfouissement (matériel de recouvrement journalier ou mensuel) et de matériel de nettoyage (sablage) du béton et de l'acier » (GVMRIND,2002).

### 3 ORIGINALITÉ DE L'ÉTUDE

---

La combinaison carbonatation et granulation des déchets d'incinération représente une solution de grand intérêt qui permet à la fois de séquestrer le CO<sub>2</sub> et de valoriser les déchets incinérés qui sont généralement entreposés dans les sites d'enfouissement.

La réduction du recours à l'enfouissement des mâchefers et leur mise en valeur ainsi que l'augmentation de la durée de vie des sites d'enfouissement sont des éléments d'une grande importance dans le contexte du développement durable au Québec.

Dans cette optique d'économie circulaire, l'originalité de cette étude réside dans le fait de valoriser les cendres d'incinération issues de la fosse à mâchefers de l'incinérateur de Québec, tout en captant une certaine quantité de CO<sub>2</sub>, en ayant recours à la carbonatation et granulation afin d'en produire des matériaux usuels ou de substitution et qui seront sans risque sur l'environnement à long terme.

L'objectif principal du projet est l'optimisation des conditions de la réaction de granulation et d'une éventuelle séquestration de CO<sub>2</sub> dans les granulats formés.

Une caractérisation partielle (Test de lixiviation TCLP) a été réalisée sur les granulats confectionnés en ayant recours au protocole de carbonatation-granulation établi. Les valeurs de caractérisation ont été comparées en premier lieu avec le règlement sur les matières dangereuses. D'autres essais de caractérisation peuvent être réalisés afin de déterminer les voies potentielles de valorisation et d'utilisation des granulats confectionnés.

Pour ce projet d'étude, le ciment portland a été utilisé comme liant hydraulique pour tous les essais de granulation des mâchefers. Différentes proportions de mélange de cendres, d'eau et de ciment ont été testés afin d'établir la formulation optimale et d'aboutir à une résistance à la compression comparable à celle des granulats utilisés dans les travaux de génie civil.

## 4 OBJECTIFS ET ÉTAPE DU PROJET

---

L'objectif général de cette étude est de développer un procédé de granulation et de carbonatation des mâchefers en vue d'obtenir des matériaux valorisables à long terme tout en captant une certaine quantité de CO<sub>2</sub>. Les deux principaux objectifs au niveau économique et écologique se définissent comme suit :

- Valorisation des cendres issues de la fosse à mâchefers de l'incinérateur de la ville de Québec par granulation à travers la confection des granulats exploitables et la production de matériaux usuels ou de substitution dans des applications du génie civil
- Diminution des quantités de déchets dédiés à l'enfouissement et qui pourront être nuisibles pour le sol à long terme et le captage du CO<sub>2</sub> dans les granulats formés pour la diminution des émissions du CO<sub>2</sub> dans l'atmosphère.

Les principaux volets de ce projet se présentent comme suit :

- Caractérisation des cendres de grilles : avec les méthodes standards de caractérisation pour déterminer la composition et la nature des échantillons.
- Évaluation de la capacité de carbonatation des mâchefers par voie humide à l'échelle laboratoire.
- Tests de lixiviation TCLP (Toxicity Characteristic Leaching Procedure) afin de déterminer le taux de lixiviation des métaux traces des mâchefers
- Tests de granulation sur les mâchefers : avec et sans ajout du CO<sub>2</sub> afin de voir la recette de granulation adéquate et évaluer les effets des paramètres opératoires sur la formation des granulats.
- Caractérisation des granulats confectionnés après réaction de granulation et carbonatation et définition des voies potentielles d'utilisation.

## 5 MATÉRIELS ET MÉTHODES

---

L'objectif de cette partie est de décrire la caractérisation des échantillons de mâchefers, de détailler les méthodes de prétraitement des échantillons, de déterminer leur composition chimique, de présenter les méthodes de caractérisation et d'analyses ainsi que les protocoles expérimentaux suivis, et de décrire les dispositifs expérimentaux utilisés pour la réalisation des essais de granulation et carbonatation.

Au cours du présent travail :

- Différents échantillons ont été prélevés de la fosse à mâchefers de l'incinérateur de la ville de Québec et ont été caractérisés ;
- Les échantillons ont subi un triage et des étapes de prétraitement : séchage, tamisage et broyage (si nécessaire) avant la réalisation des essais de granulation et de carbonatation ;
- Le calcul de la capacité théorique de séquestration du CO<sub>2</sub> des mâchefers du premier lot a été évaluée à l'échelle laboratoire en ayant recours à la formule de Steinour ;
- Des essais de lixiviation en suivant le protocole (TCLP, EPA 1311) du CEAEQ ont été effectués sur des échantillons carbonatés afin de déterminer le taux de lixiviation de quelques métaux ;
- Des essais préliminaires de granulation ont été effectués sur trois fractions granulométriques des mâchefers afin d'étudier leurs réactivités en fonction de leur granulométrie initiale ;
- Des essais préliminaires de combinaison granulation/carbonatation ont été réalisés à 15 Psi pour des durées de réaction allant de 30 min à une heure ;
- Les conclusions tirées des essais préliminaires ont permis d'établir un plan d'expériences afin d'optimiser le pourcentage de réactifs utilisés lors des essais de granulation/carbonatation ;
- Des essais de lixiviation ont été réalisés sur quelques granulats formés avec et sans CO<sub>2</sub> afin de déterminer le taux de lixiviation de quelques métaux.

## 5.1 Méthodologie

La méthodologie générale adoptée au cours de ce projet se présente comme suit :

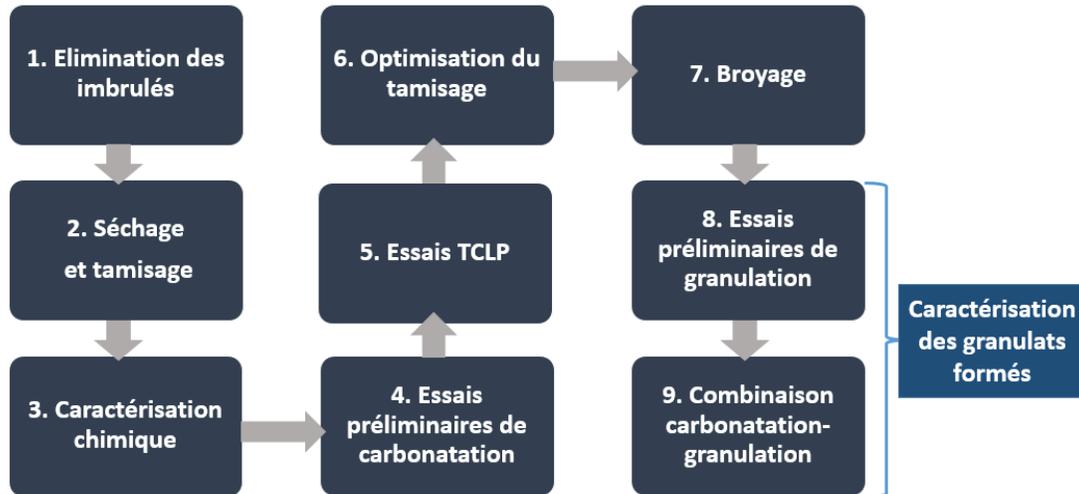


Figure 9 Méthodologie générale du projet

## 5.2 Description des échantillons

### 5.2.1 Échantillonnage

Trois lots d'échantillons prélevés sur différentes périodes ont été reçus de la part de la ville de Québec de la fosse à mâchefers de l'incinérateur municipal sous forme de solide humide. Les mâchefers ont été prélevés dans des points de prélèvements différents de la fosse afin d'assurer l'homogénéité de l'échantillon dans chaque lot. Les échantillons ont été reçus dans des chaudières en plastique scellées de capacité maximale de 30 kg.

À chaque réception de lot d'échantillon, le contenu des chaudières est vidé et homogénéisé.

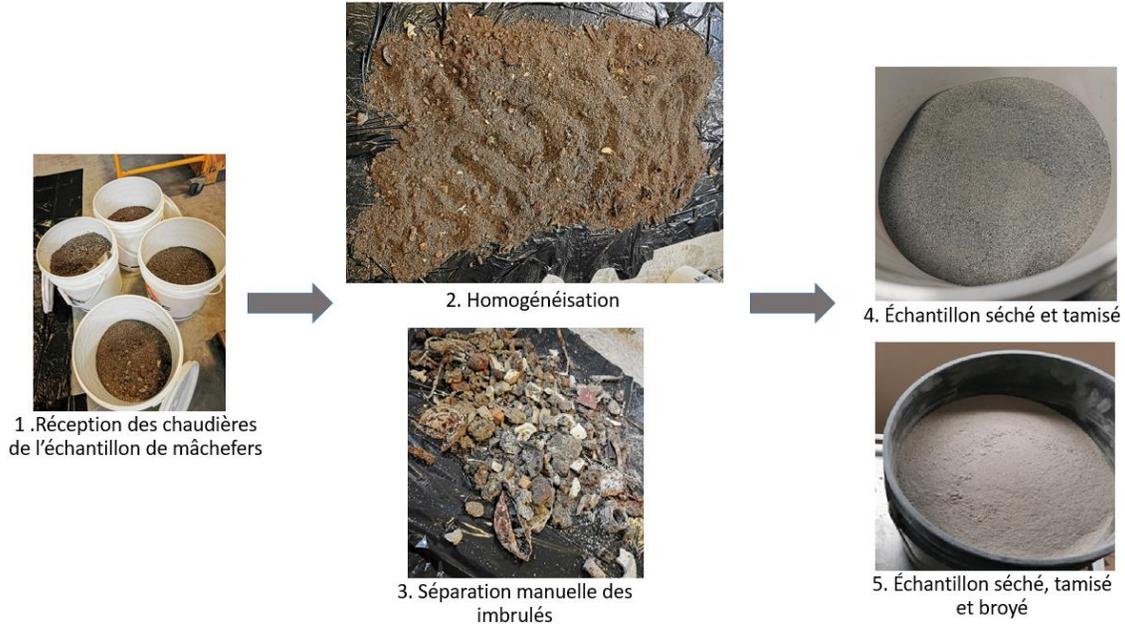
Les imbrulés et les fractions grossières de ferrailles ont été séparés manuellement lors de l'homogénéisation de l'échantillon et aussi au cours des étapes de tamisage et de broyage. Cette fraction grossière sera à traiter dans les projets futurs par des méthodes de traitement spécifiques. Après homogénéisation et séparation des imbrulés, le contenu

de mâchefers a été réparti sur les chaudières pour les utilisations ultérieures. Des proportions d'échantillons ont été prélevés à plusieurs niveaux de chaque chaudière afin d'avoir un échantillon représentatif qui fera l'objet de la caractérisation initiale.

Le processus de traitement pour les trois lots d'échantillon reçus se présente comme suit:

- Le premier lot d'échantillon de 19 kg a été dédié à la caractérisation à l'échelle laboratoire afin de déterminer sa composition chimique. Différentes fractions granulométriques de l'échantillon ont été analysées afin de déterminer l'influence de la granulométrie de l'échantillon de cendres sur la composition en éléments chimiques. Des essais de carbonatation ont été réalisés sur quelques fractions granulométriques.
- Le deuxième lot de 60 kg a été utilisé pour les essais préliminaires de granulation/carbonatation avec les optimisations apportées suite au traitement du premier lot. Une étape de broyage a été réalisée au cours du traitement de l'échantillon. Des conclusions ont été tirées par la suite quant au comportement envers la granulation et la carbonatation.
- Le troisième lot d'environ 118 kg a été utilisé pour les essais de granulation/carbonatation en suivant les optimisations apportées lors du traitement du 2<sup>ème</sup> lot. Des conclusions ont été tirées par rapport aux conditions optimales de formation des granulats.

Les étapes d'homogénéisation et d'élimination des imbrulés pour un lot d'échantillon sont présentées la figure suivante :



**Figure 10 Homogénéisation et séparation des imbrulés et prétraitement de l'échantillon de cendres reçues**

Il est à noter qu'un processus de prétraitement a été réalisé sur les trois lots d'échantillons reçus avant de procéder aux essais de granulation/carbonatation.

### 5.2.2 Prétraitement des échantillons

Les étapes de prétraitement des lots d'échantillon de cendres sont les suivantes :

- Séchage

Les mâchefers reçus se présentent sous forme de solide humide (figure 10-1). Après l'élimination manuelle des imbrulés, la totalité de l'échantillon a été séchée à l'étuve à 60°C pendant 24h. Dans les mêmes conditions, le taux d'humidité d'un échantillon représentatif a été par la suite calculé.

- Tamisage et granulométrie

Avant de procéder aux analyses chimiques de caractérisation, un tamisage à sec de l'échantillon de cendres a été réalisé afin de définir les différentes fractions granulométriques des particules de l'échantillon. Le contenu de chaque tamis (Test Sieve, W.S. Tyler®, OH, USA) est pesé et la fraction d'échantillon recueillie par le tamis est rapportée sur la quantité d'échantillon totale afin de calculer le pourcentage de chaque fraction granulométrique.

- Broyage

En fonction de la granulométrie trouvée, une étape de broyage sur quelques fractions granulométriques a été réalisée afin de réduire la taille des particules et d'améliorer la réactivité du mélange réactionnel composé de cendres, ciment et eau lors de l'optimisation des essais de granulation. Pour ce faire, un concasseur (modèle Sturtevant), un broyeur rotatif et du broyeur à disque (de marque Restch) ont été utilisés comme le montre la figure suivante.



**Figure 11 Broyeurs utilisés lors des étapes de broyage**

Une étape de broyage a été réalisée en mélangeant les deux fractions 1-2 mm et 2-4 mm. La fraction supérieure à 4mm a été aussi partiellement traitée.

La vitesse de rotation du broyeur à disque a été optimisée à 700 rpm pendant une minute. Les schémas suivants montrent les étapes de broyage de ces fractions ainsi que le type de broyeur utilisé à chaque étape.

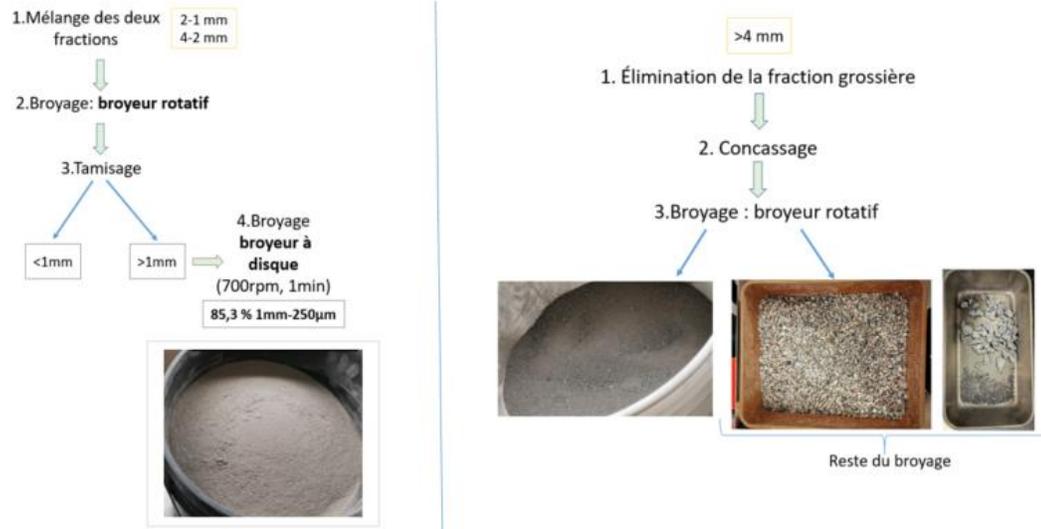


Figure 12 Étape de broyage du 2<sup>ème</sup> lot

### 5.2.3 Techniques de caractérisation des échantillons

Chaque lot d'échantillon réceptionné a été traité et caractérisé en ayant recours à différentes méthodes analytiques. La caractérisation vise aussi à l'analyse de la composition chimique des échantillons.

En effet, la composition des cendres d'incinération est sujette à plusieurs facteurs dont la nature des déchets incinérés et les conditions opératoires d'incinération. En raison de la variation de la composition des déchets incinérés de façon quotidienne, hebdomadaire et mensuelle, les caractéristiques des échantillons peuvent changer. Cette variation observée nous permettra d'évaluer son effet sur la réactivité des mâchefers pour juger de l'utilité du développement d'un procédé de granulation et de séquestration du CO<sub>2</sub> à long terme.

Parmi les caractéristiques déterminées de l'échantillon initial :

- Taux d'humidité ;
- Perte au feu ;
- Granulométrie initiale ;
- Composition en éléments chimiques.

### **5.3 Protocoles et dispositifs expérimentaux**

Des essais de lixiviation, de carbonatation et de granulation des mâchefers sont les principaux essais menés pour la réalisation de ce projet.

#### **5.3.1 Essais de lixiviation**

Dans le but de s'assurer que les granulats formés à partir des mâchefers traités n'auront aucune incidence néfaste sur l'environnement notamment lorsqu'ils seront utilisés comme produits de substituant dans le béton, des tests de lixiviation « (TCLP, EPA 1311) Toxicity Characteristic Leaching Procedure » ont été réalisés sur l'échantillon initial et sur les agrégats formés.

Selon les lignes directrices sur la gestion des matières résiduelles et des sols contaminés traités par stabilisation et solidification du MELCC, il s'agit d'un essai relativement agressif qui vise à déterminer la quantité de contaminants susceptible d'être lixiviée à long terme. La solution de lixiviation acide utilisée accélère le phénomène de neutralisation qui se produira avec le vieillissement de la matrice

Le protocole de lixiviation est utilisé conformément aux protocoles du CEAEQ.

#### **Descriptif du protocole TCLP**

Le solide utilisé pour les essais TCLP doit avoir une grosseur inférieure à 9,5 mm. Par la suite, il est mis en contact avec la solution de lixiviation (rapport solide-liquide de 1 : 20) et agité pendant 18 heures à la température ambiante. La solution de lixiviation utilisée est réalisée comme suit :

Dans un ballon de 1 litre contenant environ 500 ml d'eau, verser 5,7 ml d'acide acétique glacial,  $\text{HCH}_3\text{CO}_2$ . Peser précisément environ 2,572 g d'hydroxyde de sodium NaOH et le

dissoudre dans le ballon ; compléter au trait de jauge avec de l'eau. Le pH de cette solution devrait être  $4,93 \pm 0,05$ .

### **Étapes de lixiviation**

- Mélanger le solide et la solution de lixiviation avec un rapport de 1:20 dans des bouteilles de 100ml en plastique
- Boucher la bouteille et placer sur l'appareil de lixiviation pendant 18 heures  $\pm$  2 heures avec une vitesse de rotation de  $30 \pm 2$  tours/minute
- Après la lixiviation, laisser décanter la solution afin de faciliter la filtration.
- Filtrer la solution sur un filtre de porosité  $0,45 \mu\text{m}$

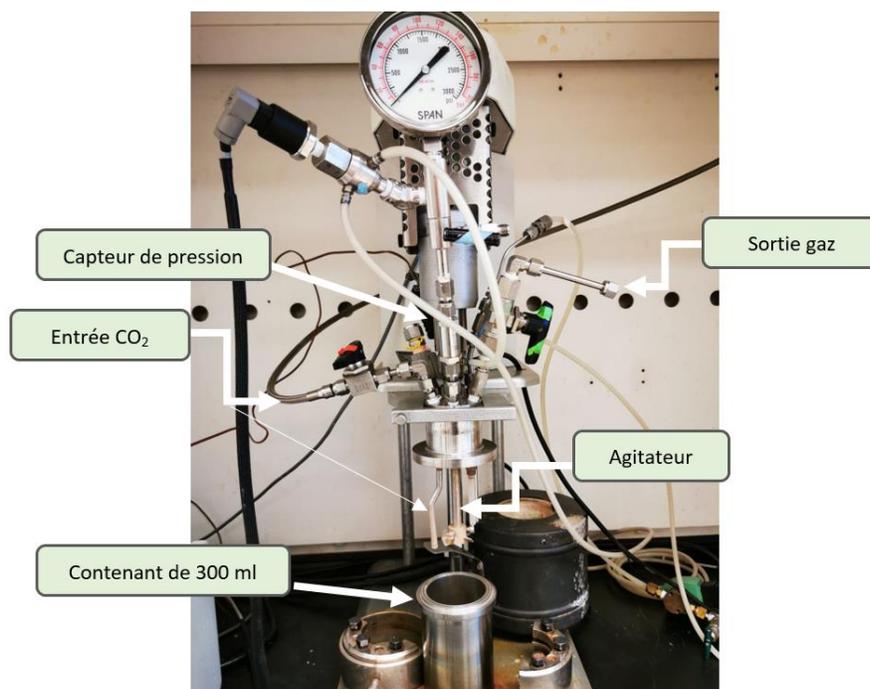
Les solutions de lixiviation obtenues après filtration seront analysées par ICP-AES.

### **5.3.2 Essais de carbonatation par voie humide**

Les essais de carbonatation servent à déterminer la capacité de stockage du  $\text{CO}_2$  dans le matériel solide et éventuellement de figer certains métaux dans la matrice carbonatée.

Les quantités de  $\text{Ca}(\text{OH})_2$  dans les cendres ainsi que les éléments susceptibles de réagir avec le  $\text{CO}_2$ , à savoir les sels de Magnésium, sont déterminées avant la réaction de carbonatation.

Les tests sont réalisés par voie humide. Des essais préliminaires de carbonatation sur des échantillons du premier lot sont réalisés avec 100% de  $\text{CO}_2$ . Les essais de carbonatation sont conduits dans un système fermé (réacteur 300ml), alimenté en continu d'un pourcentage de  $\text{CO}_2$ , à une pression de 100 Psi comme le montre la figure 13.



**Figure 13 Réacteur de carbonatation de 300ml**

Les conditions opératoires préliminaires des tests de carbonatation des mâchefers sont les mêmes conditions optimisées par notre équipe de recherche en utilisant des résidus riches en calcium/magnésium et en utilisant le dispositif de carbonatation décrit. Un temps de réaction (30 minutes – 1h) et de pourcentage de solide dans la pulpe (5 – 15%) ont été testés afin d'identifier le comportement du matériel face aux conditions de carbonatation et d'en tirer l'optimal de chaque condition opératoire.

Pour chaque essai, les phases liquides et solides sont séparées par filtration sous vide et analysées. Le solide est séché à 60 °C puis analysé par l'appareil d'analyse CHN afin de déterminer le taux de carbonatation.

La phase liquide est analysée par ICP-AES pour déterminer sa composition en éléments dissous et par un analyseur de carbone total pour mesurer la teneur en carbone inorganique. Des tests de lixiviation TCLP ont été réalisés sur les produits de carbonatation afin de voir le comportement des métaux après carbonatation.

### 5.3.3 Essais de granulation

- **Granulation**

Les essais de granulation sont effectués dans un tambour rotatif de capacité maximale fixée à moins de 2 kg par essai. Le dispositif de granulation est présenté dans la figure 14. Premièrement, les tests sans ajout de CO<sub>2</sub> permettront d'établir la recette de granulation adéquate : % humidité, % ciment (joue le rôle de liant), % temps de granulation, temps de cure. Le sens de rotation du granulateur ainsi que l'angle par rapport à l'horizontal ont été fixés pour tous les essais de granulation de ce projet.

Chaque essai de granulation est suivi d'une analyse granulométrique et de résistance à la compression après 7, 28 et 56 jours des granulats formés afin de déterminer les meilleures conditions opératoires. Les résultats des résistances à la compression des granulats confectionnés sont comparés avec celles des granulats de référence.

Le dispositif de granulation utilisé pour la réalisation des différents essais de granulation et carbonatation a été confectionné dans nos laboratoires annexes de l'INRS appelés LISTE « Laboratoires pour l'innovation Scientifiques et technologies de l'environnement » par la doctorante Elisabeth Viry en 2018 (Viry *et al.*, 2021).

Il s'agit d'un autocuiseur utilisé en guise de tambour rotatif (de diamètre 36cm et de profondeur 44cm), déposé sur deux rouleaux liés à un moteur, entraînant sa rotation comme le montre la figure 14. Les forces centrifuges et gravitationnelles de l'autocuiseur assurent au fur et à mesure la formation des granulats grâce aux liaisons pouzzolaniques qui s'établissent à partir des particules de l'échantillon initial de cendres d'incinération, du liant utilisé (ciment portland) et de l'eau.

L'ensemble du dispositif de granulation a été déposé sur des piliers à un angle de 45° par rapport à un plan de travail horizontal. Le choix de cet angle a été optimisé en cours de la réalisation des essais préliminaires de granulation et a été fixé pour tous les essais réalisés. Les vitesses de rotation testées varient entre 20 et 45 rotations par minute (rpm). Le sens de rotation du dispositif de granulation choisi pour tous les essais de granulation est celui du sens des aiguilles d'une montre.

Un revêtement époxy (SuperMetalGlide Belzona 1341, Belzona Inc., FL, USA) a été appliqué sur les parois internes du tambour rotatif afin d'éviter le colmatage et la cimentation de l'échantillon qui peuvent entraîner le blocage de la réaction de granulation.

- **Couplage granulation - carbonatation**

Les essais de granulation avec injection de CO<sub>2</sub> servent à apprécier l'efficacité de la carbonatation sur la formation de granulats et à vérifier toute éventuelle amélioration de la résistance des granulats après avoir eu à capter une certaine quantité de CO<sub>2</sub>.

Un système d'injection du CO<sub>2</sub> a été ajouté au dispositif lors des essais de combinaisons granulation/carbonatation. Il s'agit de barboter du gaz contenant 100% CO<sub>2</sub> dans une colonne remplie à environ 50% d'eau distillée pour humidifier le gaz et faire injecter directement dans le tambour rotatif qui sera fermé hermétiquement à une pression environ de 15 PSI. Un manomètre est mis à disposition afin d'assurer le suivi de la pression de gaz dans le tambour aux cours des réactions de combinaisons granulation/carbonatation.

La présentation de tout le dispositif expérimental est montrée par la figure suivante :

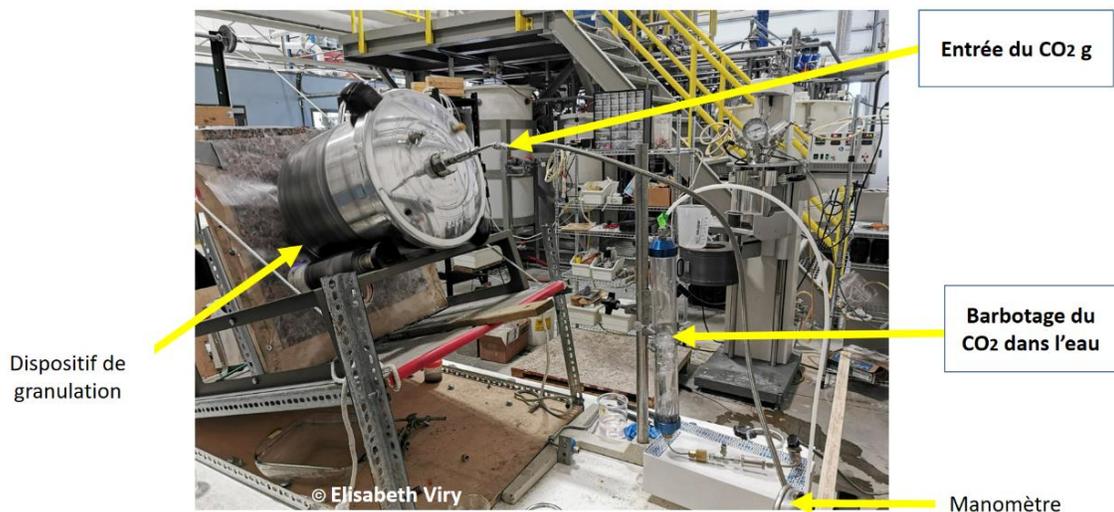


Figure 14 Dispositif de granulation/carbonatation confectionné au LISTE

## Méthodes de préparation du mélange réactionnel

Quatre méthodes de préparation du mélange réactionnel ont été utilisées pendant les essais préliminaires de granulation.

Le tableau suivant présente le descriptif de chaque méthode ainsi que les résultats trouvés.

Tableau 4 Méthodes de préparation du mélange réactionnel

Méthodes	Description	Résultats
1	<b>Mélange de tous les réactifs avant d'initier la granulation</b>	Au bout de 3 minutes de rotation, il y aura formation de bloc ou adhésion du mélange (phénomène de cimentation) sur les parois du tambour.
2	<b>Mélange de cendres et de ciment et ajout progressif de l'eau goutte à goutte</b>	Formation de granulats à l'ajout des premières gouttes d'eau puis disparition des granulats et le mélange reprend l'allure de la forme initiale (poudre).  Même à des quantités élevées d'eau, la granulation en suivant la méthode 2 s'avère impossible. Il est aussi à noter que des taux très élevés en eau bloquent la réaction de granulation.
3	<b>Mélange de cendres et de ciment et pulvérisation de l'eau</b>	Le système de pulvérisation utilisé à l'échelle laboratoire s'avère inadéquat pour le déroulement de la granulation. En effet, au moment de pulvérisation de l'eau, il y a eu adhésion des particules fines de l'échantillon et du ciment sur les parois du tambour.  Le système de pulvérisation automatique de l'eau sera intéressant dans le cas d'utilisation de tambour de plus grande dimension sous certaines conditions d'utilisation.
4	<b>Mélange de cendres avec la moitié de la quantité d'eau et de ciment. Ajout progressif et alternée des liants</b>	Formation progressive de granulats de différentes tailles. Augmentation de la taille des granulats suivant le pourcentage de liants utilisés et la vitesse de rotation du tambour rotatif.

La manière de l'ajout de liant et d'eau a été optimisée au cours des essais préliminaires de granulation. Les meilleurs rendements de granulation ont été obtenus lors du mélange de la moitié des quantités d'eau et de ciment avec l'échantillon de cendre pendant deux

minutes avant de lancer la granulation. L'eau et le ciment sont ajoutés en petite quantité et d'une façon alternée lors de la granulation.

La méthode 4 a été retenue et adoptée comme méthode de granulation pour tous les essais de ce projet.

Cette méthode a été optimisée en ajoutant petit à petit la moitié restante des liants. L'ajout de liants avec une cadence d'une minute par ajout, se fait au moment de lancement de granulation. La durée maximale de l'ajout progressif et alterné des liants est de 15 minutes et le reste de temps est dédié pour la suite de la granulation. Au dernières deux minutes de granulation, les granulats confectionnés ont été dispersés à l'aide d'un gratteur afin d'éviter à ce qu'ils collent entre eux et forment un bloc.

#### 5.4 Méthodes analytiques et calculs

- **Taux d'humidité**

Le taux d'humidité initiale de chaque fraction représentative de chaque lot d'échantillon reçu a été déterminé en séchant cette fraction à 60°C pendant 24 heures.

Il s'agit de peser un contenant vide, puis le même contenant avec l'échantillon avant et après séchage. Le calcul du pourcentage d'humidité se présente comme suit :

**Équation 6**                      **Pourcentage d'humidité des échantillons de mâchefers**

$$\% \text{ d'humidité} = \frac{(m_1 - m_0) - (m_2 - m_0)}{(m_1 - m_0)} * 100$$

Avec

- $m_0$  : Masse du contenant vide (g)
- $m_1$  : Masse du contenant avec l'échantillon humide (g)
- $m_2$  : Masse du contenant avec le résidu sec (g)

- **Perte au feu « PAF » ou loss of ignition « LOI »**

Il s'agit de mettre l'échantillon sec dans un creuset en porcelaine dans une étuve dédiée opérant à 1025°C pendant une durée de 6 heures.

La perte au feu donne une indication sur le taux de matière organique et la teneur en carbone organique (Corg) dans l'échantillon. En effet, à une température de 450°C, le matériel organique présent dans l'échantillon est oxydé et transformé sous forme de gaz carbonique (CO<sub>2</sub>) et de vapeur d'eau. Après combustion, il ne reste que la fraction minérale dans le récipient. Les traces de soufre sont éliminées de l'échantillon par perte au feu à 1025°C avant de procéder à l'analyse de la composition chimique de l'échantillon par ICP-AES. En effet, l'éventuelle présence du soufre dans l'échantillon peut endommager les creusets en platine utilisés lors de la fusion alcaline.

- **Granulométrie initiale**

La granulométrie initiale a été déterminée en tamisant l'échantillon sec en utilisant des tamis de différentes tailles de mailles comme présenté dans la figure suivante :



**Figure 15 Tamis utilisés lors du tamisage**

Le but de cette étape de tamisage est de déterminer s'il y a une relation entre la taille des particules de l'échantillon initial et le pourcentage des éléments chimiques qui y sont présents de manière à déceler tout éventuel impact sur les rendements de la granulation et la carbonatation.

- **Composition en éléments chimiques**

Chaque fraction représentative de chaque lot d'échantillon a été analysée afin de déterminer leur composition en éléments chimiques. Ainsi pour procéder à la première étape qui est la fusion alcaline, la fraction représentative doit être séchée et broyée.

- **Fusion alcaline**

Les différents échantillons des mâchefers traités de chaque lot sont analysés par fusion alcaline au Méthaborate de Lithium ( $\text{LiBO}_2$ ) afin de faire passer leurs composants inorganiques vers la phase aqueuse.

### **Protocole de fusion**

Dans des creusets en Platine, on introduit 0,1g de l'échantillon solide sous forme de poudre avec 1g de Méthaborate de Lithium ( $\text{LiBO}_2$ ) puis fusionné à la température de la flamme de propane pendant quelques minutes. Une fois la fusion terminée, le liquide fondu est versé automatiquement dans des béchers en téflon contenant 100mL d'acide à fusion préalablement préparé (0,5% HCl, 10%  $\text{HNO}_3$ ).

Le mélange est par la suite mis sous agitation pour assurer sa dissolution totale dans l'acide. La même procédure a été réalisée pour les échantillons de contrôle et pour le blanc. Le blanc fusionné où le méthaborate de lithium est fusionné seul puis versé dans 100mL d'acide à fusion et le blanc non fusionné où 1g de méthaborate de lithium solubilisé, sans fusion, dans 100mL d'acide à fusion.

Les solutions obtenues à la suite de la fusion sont ensuite analysées par spectrophotométrie à émission de plasma induit ICP-AES (modèle Vista AX CCO Simultaneous ICP-AES, Palo Alto, CA, Etats-Unis).

- **Analyse élémentaire par ICP-AES**

La spectrophotométrie à émission de plasma induit (ICP-AES) est une technique d'analyse chimique qui permet de doser des éléments chimiques (Métaux, Alcalins, P, S, Si ...) contenant dans un échantillon liquide ou solide fusionné (Araújo et al., 2017). Cette méthode a la particularité de quantifier simultanément jusqu'à 50 éléments dans le même échantillon (Hoffman, 1996).

Une gamme d'étalonnage spécifique a été préparée pour chaque analyse en utilisant la même matrice d'acide de dilution des échantillons.

Le but de l'analyse par ICP-AES des échantillons de mâchefers lors de la caractérisation est de déterminer le taux des éléments chimiques en mg/L y présents. Pour les échantillons solides, les éléments chimiques analysés seront convertis en g/kg d'échantillon puis sous formes d'oxydes en pourcentage massique comme le montre les deux équations 7 et 8 suivantes :

**Équation 7**      **Conversion de la concentration d'un élément chimique de mg/L à partir de l'analyse à l'ICP-AES en g/kg**

$$C_f \text{ (g/Kg)} = \frac{C_i \times V}{m_{fs}}$$

Avec

$C_f$	: Concentration de l'élément en g par un kilogramme d'échantillon	g/kg
$C_i$	: Concentration de l'élément donné par l'analyse ICP-AES	mg/L
$V$	: Volume final de la solution de fusion	mL
$m_{fs}$	: Masse du solide sec fusionné	g

**Équation 8**      **Conversion de la concentration de l'élément en % massique d'oxyde**

$$\% \text{ oxyde} = \frac{C_f \times M_{oxy}}{M_{ele} \times S \times 10}$$

Avec

$\% \text{ oxyde}$	: Pourcentage massique de l'oxyde de l'élément	%
$C_f$	: Concentration de l'élément en g par un kilogramme d'échantillon	g/kg
$M_{oxy}$	: Masse molaire de l'oxyde de l'élément	g/mol
$M_{ele}$	: Masse molaire de l'élément	g/mol
$S$	: Coefficient stœchiométrique	

Les pourcentages d'oxydes calculés à partir des résultats de l'ICP-AES seront pris en compte pour le calcul par la suite de la capacité théorique de séquestration du CO<sub>2</sub> en utilisant la formule de Steinour (Cho et al., 2011) comme suit :

Équation 9                      Formule de Steinour pour le calcul de la valeur théorique de carbonatation (Cho et al., 2011)

$$\%Th_{seq\ CO_2} = 0,785 \%CaO + 1,091 \%MgO + 1,41 \%Na_2O + 0,935 \%K_2O - 0,55 \%SO_3$$

- **Détermination du pourcentage de carbone**

L'appareil d'analyse élémentaire CHN (*Organic Elemental Analyser Flash 2000 Thermo Scientific*) permet le dosage du carbone (C), de l'hydrogène (H), de l'azote(N) dans un échantillon solide.

Après réaction de carbonatation et filtration de la solution, le solide recueilli est séché à 60°C puis analysé par l'analyseur CHN afin de donner le pourcentage de carbone %C dans le solide.

Il s'agit de peser environ 1 mg de chaque échantillon solide dans une capsule en étain, faire placer les capsules dans un disque numéroté puis introduit dans l'analyseur CHN pour analyse. La température de combustion dans l'analyseur CHN est de 950°C.

Le taux de captage du CO<sub>2</sub> par 1 kg d'échantillon a été calculé par en se basant sur les résultats du l'analyse CHN.

Équation 10                      Masse du CO<sub>2</sub> capté dans la phase solide en gCO<sub>2</sub>/kg de mâchefers

$$m_{CO_2\ solide} = 1000 \times \left( \frac{m_c\ phase\ solide}{m_{éch\ init}} \right) \times \frac{M_{CO_2}}{M_C}$$

Avec

$m_{CO_2\ solide}$  : Masse du CO<sub>2</sub> calculé dans la phase solide (g)

$m_c\ phase\ solide$  : Masse du carbone formé dans la phase solide (g)

$m_{éch\ init}$	: Masse de l'échantillon initial	(g)
$M_{CO_2}$	: Masse molaire du dioxyde de carbone	(g/mol)
$M_C$	: Masse molaire du Carbone	(g/mol)

L'équation 11 présente le calcul de la masse de carbone formé dans la phase solide à partir des résultats CHN des pourcentages de carbone dans l'échantillon initial et l'échantillon carbonaté.

**Équation 11**                      **Calcul de la masse de carbone formé**

$$m_{c\ phase\ solide} = \frac{\%C_{éch\ init} - \%C_{éch\ carb}}{100}$$

Avec

$m_{c\ phase\ solide}$	: Masse du carbone formé dans la phase solide	(g)
$\%C_{éch\ init}$	: Pourcentage du carbone dans l'échantillon initial	%
$\%C_{éch\ carb}$	: Pourcentage du carbone dans l'échantillon carbonaté	%

À la suite des essais de granulation, le taux de granulation et le pourcentage de perte de masse ont été calculé. Les granulats confectionnés ont été caractérisés par la détermination de leur résistance à la compression, leur capacité d'absorption d'eau et leur densité apparente.

- **Taux de granulation**

Après chaque essai de granulation, le contenu du granulater est vidé dans un sac en plastique qui sera fermé hermétiquement.

Le durcissement des granulats se fait dans les sacs scellés et à température ambiante. La granulométrie des agrégats formés sera déterminée 7 jours après l'essai de

granulation. Pour ce faire, différents tamis de différentes tailles de mailles ont été utilisés de diamètres 14, 10, 8, 5, 2,5 mm.

Après tamisage, la quantité restante de diamètre < 2,5 mm sera considérée comme quantité non granulée et sera soustraite du pourcentage de granulation. Le pourcentage de granulation a été déterminé en tenant compte de la masse initiale introduite dans le dispositif de granulation et la masse recueillie après la granulation comme le montre l'équation suivante :

**Équation 12**            **Pourcentage de granulation**

$$\% \text{ granulation} = \left( \frac{m_t - m_{reste}}{m_{init}} \right) \times 100$$

Avec

$m_t$             : Masse totale après granulation            (g)

$m_{reste}$         : Masse restante < 2,5mm après granulation        (g)

$m_{init}$          : Masse initiale introduite dans le granulateur        (g)

N'est considéré comme granulats que la fraction dont le diamètre est supérieur à 2,5 mm. La fraction dont le diamètre est inférieur à 2,5 mm est la partie non granulée est considérée comme reste du procédé de granulation.

Le calcul du pourcentage de perte de masse (quantité qui reste adhérente aux parois du granulateur) est comme suivi :

**Équation 13**        **Pourcentage de perte de masse**

$$\% \text{ perte de masse} = \left( \frac{Q_i - Q_f}{Q_i} \right) \times 100$$

Avec

$Q_i$             : Quantité du mélange réactionnel introduit dans le granulateur        (g)

$Q_f$             : Quantité recueillie après granulation            (g)

- **Résistance à la compression**

La mesure de la résistance à la compression des essais de granulation a été réalisée sur 4 à 6 agrégats, suivant le nombre de granulats pour chaque classe granulométrique, individuels après différentes périodes de durcissement de 7, 28, 56 et 112 jours pour certains essais. Le test de compression consiste à mesurer la force de compression appliquée sur un granulat jusqu'à l'apparition de la première fissure.

Pour ce fait, un granulat est placé entre deux plaques de compression de capacité maximale de 2,5 kN. La capacité maximale du piston supérieur est de 889,5 N.

Le dispositif de compression utilisé (Digital Control Panel Model DC4050 Mark-10 ESM 1500S, USA) est présenté par la figure 16.



**Figure 16**      **Dispositif de compression**

La vitesse de compression utilisée pour tous les essais a été fixée à 10mm par minute. Au moment de la rupture (apparition de la première fissure), le système de compression est arrêté. La distance entre les deux plaques du dispositif est ainsi déterminée en utilisant un pied à coulisse.

La résistance à la compression est par la suite calculée suivant l'équation (Hiramatsu et al., 1966).

**Équation 14**      **Résistance à la compression en MPa**

$$R = \frac{2.8 \times F}{\pi \times d^2}$$

Avec

<b>R</b>	: Résistance à la compression	(MPa)
<b>F</b>	: Valeur de force appliquée au point de rupture	(N)
<b>d</b>	: Distance entre les deux plaques à la rupture	(mm)

- **Densité apparente**

Il s'agit de faire plonger une masse bien déterminée de granulats dans une éprouvette d'eau distillée et de noter la différence du volume engendrée. La masse volumique calculée est rapportée à la masse volumique de l'eau qui est  $\approx$  à 1 g/cm<sup>3</sup>. La densité apparente est calculée comme suit :

**Équation 15**      **Densité apparente des granulats**

$$d = \left( \frac{m_g}{V_f - V_i} \right) / d_{\text{eau}}$$

Avec

<b>d</b>	: Densité apparente moyenne des granulats	(g/cm <sup>3</sup> )
<b>m<sub>g</sub></b>	: Masse des granulats	(g)
<b>V<sub>f</sub></b>	: Volume final d'eau	(ml)
<b>V<sub>i</sub></b>	: Volume initial d'eau	(ml)
<b>d<sub>eau</sub></b>	: Densité de l'eau	(g/cm <sup>3</sup> )

- **Capacité d'absorption d'eau**

Le pourcentage d'absorption d'eau d'une masse de granulats est déterminé par le calcul de la différence de masse des granulats avant et après immersion dans l'eau pendant 24h.

Équation 16            % Absorption d'eau pendant 24h

$$\% \text{ Absorption d'eau (24h)} = \left( \frac{m_f - m_i}{m_i} \right) \times 100$$

Avec

$m_f$  : Masse des granulats après immersion dans l'eau pendant 24h (g)

$m_i$  : Masse des granulats avant immersion dans l'eau (g)

## 6 RÉSULTATS ET DISCUSSIONS

### 6.1 Caractérisation des échantillons

Le tableau suivant décrit les principales caractéristiques des trois lots d'échantillon et présente le pourcentage de chaque fraction granulométrique des mâchefers séchés et tamisés de chaque lot.

Tableau 5 Principales caractéristiques des trois lots d'échantillon

Lot d'échantillon	Lot 1	Lot 2	Lot 3
Date de réception	Juin 2020	Novembre 2020	Juin 2021
Masse de l'échantillon brute (kg)	19.0	60.2	118.8
Humidité (%)	19.4	11.9	14.5
PAF (%)	7.5	6.9	10.9
% massique des fractions granulométriques de l'échantillon initial traité*	> 2 mm : 34.0% 2 - 1mm : 27.5 % 1mm-600µm :16.0% 600-500µm : 4.0% 500-300µm: 9.0% 300-250µm : 2.0% <250µm : 7.5%	> 4 mm : 37.2% 4 -2 mm : 17.4 % 2 -1 mm : 20.0 % <1mm : 25.0%	> 4 mm : 22.0 % 1 - 4mm : 46.5% <1mm : 31.5%

L'échantillon traité\* : L'échantillon homogénéisé, séché et tamisé

Comme démontré dans le tableau 5, les valeurs d'humidité, de perte au feu et de la granulométrie initiale de l'échantillon reçu pour les trois lots diffèrent en fonction des périodes et de points de prélèvement dans la fosse à mâchefers. Ceci aura un impact par la suite sur les valeurs de l'analyse élémentaire et le comportement à la granulation et carbonatation. Ce qui explique la diversité des résultats de caractérisation des mâchefers dans la littérature et les différentes tendances à la granulation par la suite.

Une fusion alcaline suivie d'une analyse élémentaire par ICP-AES ont été réalisées sur les six fractions granulométriques du premier lot. Avant de procéder aux analyses, chaque fraction granulométrique a été broyée par le broyeur à disque à 800 rpm pendant une minute. Les résultats d'analyses en triplicata de chaque fraction granulométrique du premier lot exprimés en mg/L et en mg/kg sont présentés respectivement dans l'annexe III et IV.

Aucune tendance claire sur l'effet taille/pourcentage des éléments dans chaque fraction granulométrie n'est observée. Suivant les résultats trouvés pour le premier quant à l'analyse élémentaire de chaque fraction granulométrique, l'étape de tamisage a été optimisée pour le 2<sup>ème</sup> et le 3<sup>ème</sup> lot comme décrit dans la section 6.3.

Pour les analyses ICP-AES afin de comparer la composition chimique des trois lots d'échantillon, deux gammes ont été préparées pour les éléments majeurs et mineurs. Le choix de la composition des gammes d'analyses s'est basé sur la littérature premièrement puis sur les résultats des essais préliminaires concernant les valeurs des éléments présents dans les échantillons de mâchefers. Les éléments chimiques sous forme de pourcentage d'oxyde qualifiés d'éléments majeurs sont : SiO<sub>2</sub>, CaO, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Na<sub>2</sub>O et MgO. Alors que ceux inférieurs à 1,5% sont qualifiés d'éléments mineurs. Ces derniers ont été divisés sur deux groupes, G1 qui regroupe les oxydes K<sub>2</sub>O, P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, TiO<sub>2</sub>, ZnO et PbO et G2 qui regroupe les oxydes BaO, CuO, CdO, CoO, MnO et NiO.

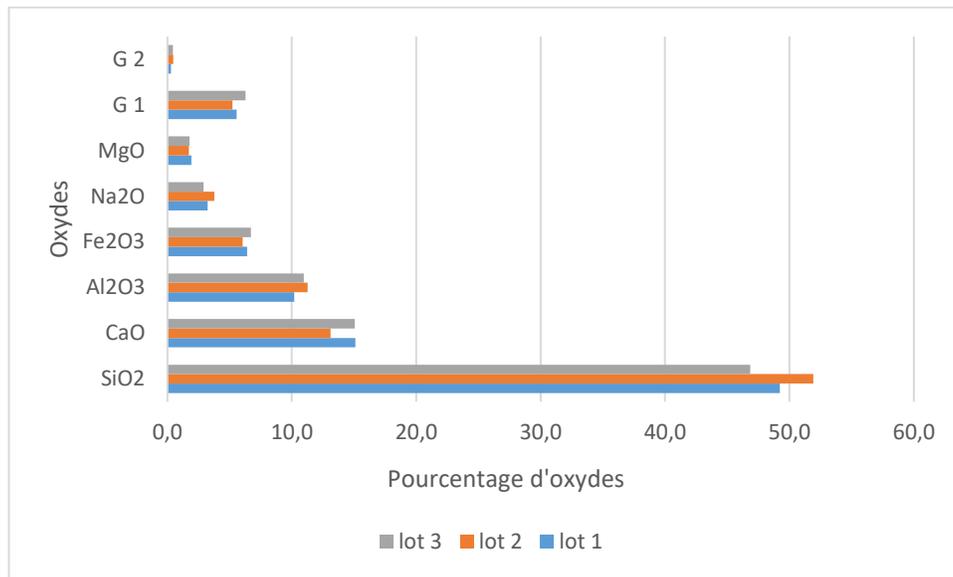
Les résultats des analyses ICP en mg/L, mg/kg ainsi que la conversion en pourcentage de chaque élément chimique et oxyde correspondant pour les trois d'échantillon sont présentés dans l'annexe V.

Les valeurs illustrées dans le tableau 6 sont les moyennes en pourcentage d'oxydes des résultats d'analyses élémentaires de chaque lot d'échantillon. Les essais ont été réalisés en triplicata pour le lot 1 et en duplicata pour le lot 2 et 3 pour la fraction < 1 mm et la fraction broyée.

**Tableau 6 Valeurs des pourcentages d'oxydes des 3 lots d'échantillon**

	Oxydes	lot 1	lot 2	lot 3
<b>Éléments chimiques majeurs</b>	<b>SiO<sub>2</sub></b>	49,2	51,9	46,8
	<b>CaO</b>	15,1	13,1	15,1
	<b>Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub></b>	10,2	11,3	11,0
	<b>Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub></b>	6,4	6,0	6,7
	<b>Na<sub>2</sub>O</b>	3,2	3,8	2,9
	<b>MgO</b>	1,9	1,7	1,8
<b>Éléments chimiques mineurs</b>	<b>G 1</b>	5,6	5,2	6,3
	<b>G 2</b>	0,3	0,5	0,5
<b>PAF (%)</b>		7.5	6.9	10.9

La figure 17 présente les pourcentages d'oxydes des éléments majeurs et des éléments mineurs qui sont divisés sur les deux groupes G1 et G2.



**Figure 17** Pourcentage d'oxydes dans les lots 1, 2 et 3 d'échantillon de mâchefers

Les analyses de la composition initiale de l'échantillon de cendres montrent une dominance du pourcentage du dioxyde de silicium pour des valeurs de 46,6% jusqu'à 52,6%.

Le deuxième élément le plus abondant est le calcium déterminé sous forme de CaO qui représente environ 15% de la totalité du pourcentage d'oxydes et qui peut réagir par la suite avec le CO<sub>2</sub> au cours de réaction de carbonatation. L'aluminium est le troisième élément abondant dans les fractions analysées d'environ 11% sous forme de Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> suivi du fer sous forme de Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> d'environ 4,8% allant jusqu'à 7,6%.

Des études de recherche ont démontré que les principaux éléments chimiques des mâchefers, présentés sous forme d'oxyde sont SiO<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, et CaO (Abdulmatin *et al.*, 2018).

Les résultats d'analyses de la composition initiale réalisées dans ce projet concordent avec les résultats trouvés dans la littérature (Abdulmatin *et al.*, 2018) pour la dominance de SiO<sub>2</sub>, CaO, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> et Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dans les mâchefers.

Pour des valeurs de SiO<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> en poids supérieurs à 70% et une perte au feu de 5 à 6%, les cendres de grilles répondent aux exigences des cendres volantes qui sont classés comme matériaux pouzzolaniques (Abdulmatin *et al.*, 2018).

Le potentiel de granulation des mâchefers est régi à la fois par la composition chimique, la granulométrie initiale et le pourcentage de ciment ajouté assurant ainsi l'établissement des liaisons permanentes entre les particules du granulat.

## **6.2 Essais préliminaires de carbonatation sur l'échantillon initial**

Les essais préliminaires de carbonatation ont été réalisés en milieu aqueux avec des fractions représentatives du premier lot afin de définir les tendances de carbonatation de mâchefers lors du traitement des lots qui suivent.

Chaque fraction a été broyée par le broyeur à disque. Le recours au broyage des fractions était dans le but de faciliter l'opération d'agitation de la pulpe au sein du réacteur de carbonatation utilisé. Des taux de pulpe de 5,10 et 15% ont été utilisés pour les essais préliminaires de carbonatation.

Les essais ont été conduits en batch dans le réacteur de 300 ml comme mentionné dans la section 5.3.2 avec une injection en continue de 100 %CO<sub>2</sub> tenue à 100 Psi pendant des périodes de 30 minutes allant jusqu'à 60 minutes à 600 rpm et à température ambiante. Notons que les essais conduits dans le réacteur de carbonatation ont été réalisés à température ambiante.

Les conditions opératoires utilisées pour les essais préliminaires de carbonatation, les résultats d'analyses CHN ainsi que le calcul du taux de captage du CO<sub>2</sub>, traduit en masse de CO<sub>2</sub> solide en gramme par kilogramme d'échantillon, sont présentées dans le tableau 7.

**Tableau 7 Conditions opératoires et résultats d'analyses des essais préliminaires de carbonatation**

No.	Durée (minutes)	%pulpe	m <sub>s</sub> (g)	pH <sub>i</sub>	pH <sub>f</sub>	%C	%CO <sub>2</sub>	m <sub>c</sub> formé (g)	Taux de captage du CO <sub>2</sub> (%)
1	60	5	10,05	11,01	6,2	3,1	11,3	0,0041	1,48
2	60	10	20,05	11,3	6,17	3,4	12,6	0,0000	1,40
3	60	15	30,03	11,26	6,16	3,4	12,5	0,0074	0,91
4	30	5	10,04	10,82	6,04	2,8	10,4	0,0018	0,66
5	30	10	20,05	11,16	6,17	3,1	11,2	0,0039	0,72
6	30	15	30,07	11,22	6,3	2,5	9,1	-	-
7	60	5	10	10,97	6,03	2,6	9,6	-	-
8	60	10	20,06	11,01	6,29	2,8	10,1	0,0010	0,18
9	60	15	30,02	11,35	6,31	3,2	11,8	0,0056	0,68

%C de l'échantillon initial = 2,7 %

Le calcul empirique de la valeur moyenne théorique de séquestration de CO<sub>2</sub>, d'après les pourcentages d'oxydes calculés et la formule de Steinour utilisée, est estimé à 21.9% équivalent à 219 g/kg de solide.

Alors que d'après les résultats de CHN des essais de carbonatation effectués, la masse du CO<sub>2</sub> capté dans le solide ne dépasse pas 2 grammes par kilogramme d'échantillon.

Le calcul empirique de la capacité de carbonatation suivant la formule de Steinour a mis en évidence la réaction de plusieurs éléments chimiques avec le CO<sub>2</sub> à savoir le calcium, le magnésium, le sodium et le potassium exprimés sous formes d'oxydes afin de former des carbonates. Alors que sur le plan pratique et suivant les conditions opératoires utilisées lors de la carbonatation, la réactivité des éléments chimiques vis-à-vis du CO<sub>2</sub> peut différer. La formule de Steinour est une approximation d'un rendement de carbonatation idéal où tous les éléments susceptibles de réagir avec le CO<sub>2</sub> sont pris en compte dans le calcul du rendement.

Les rendements de carbonatation trouvés à partir des essais réalisés peuvent être comparés avec les valeurs de rendements des travaux de recherche de carbonatation des déchets solides. Trois volets de comparaisons sont détaillés en se basant sur : la réactivité de l'échantillon vis-à-vis le CO<sub>2</sub>, les conditions opératoires utilisées (température, pression et ratio L/S) et la granulométrie initiale de l'échantillon.

### **Réactivité de l'échantillon**

Bien que l'échantillon de mâchefer utilisé lors des tests de carbonatation est alcalin (pH supérieur à 10), et présente un taux de calcium assez important (jusqu'à 15% de CaO), les faibles rendements de carbonatation des mâchefers trouvés dans ce projet peuvent être expliqués par la non réactivité des éléments, essentiellement le calcium, vis-à-vis le CO<sub>2</sub> dans les conditions opératoires utilisées.

La réactivité du dioxyde de carbone en fonction de la teneur totale en calcium dans l'échantillon a été étudiée par Gunning et al. (2010). Des essais de carbonatation à haute pression, atteignant 40 bars, et une température de 30°C du milieu réactionnel ont été réalisés sur différents types de déchets. Un échantillon riche en calcium y compris les poussières de ciment et les cendres d'incinération de papier ont présenté jusqu'à 26% en poids de dioxyde de carbone séquestré. Les cendres de bois, les mâchefers, et les cendres d'incinération des boues d'épuration ont atteint des taux de séquestration entre 4% et 9% dans les mêmes conditions opératoires.

Les cendres d'incinération des déchets cliniques par exemple n'ont eu aucune réaction avec le CO<sub>2</sub> malgré la présence du calcium à plus de 20 %. Les résultats des essais de carbonatation de Gunning et al. (2010) ont rapporté une faible réactivité, voire une réactivité nulle, de certains déchets ayant quand même une forte teneur en calcium. La réactivité du dioxyde de carbone semble être significativement influencée non seulement par la teneur totale en calcium, mais par la phase minérale dans lesquelles le calcium est lié dans d'autres phases, y compris le phosphate de calcium. D'où l'importance de la détermination de la minéralogie du matériel vu que certains minéraux porteurs de calcium peuvent être non réactifs vis-à-vis le CO<sub>2</sub>.

Des étapes d'extraction de la matrice des mâchefers des éléments susceptibles de réagir avec le CO<sub>2</sub> peuvent être effectuées afin d'augmenter le rendement de la carbonatation.

Comme mentionne La Plante et al. (2021) pour la minéralisation des solides silicatés suivant un processus impliquant les 3 étapes : (i) la dissolution du  $\text{CO}_2$  dans l'eau et sa spéciation en ions  $\text{HCO}_3^-$  et  $\text{CO}_3^{2-}$ , (ii) la dissolution du silicate qui donne du  $\text{Ca}^{2+}$  et du  $\text{Mg}^{2+}$  dissous dans la solution, et (iii) la nucléation et la croissance des carbonates insolubles ( $\text{CaCO}_3$ ,  $\text{MgCO}_3$ ...). Des moyennes de rendements de séquestration du  $\text{CO}_2$  trouvés de 19,5% et 33,6% respectivement pour les cendres volantes de combustion de charbon et des scories de fer et d'acier (La Plante et al., 2021).

L'activation de la surface du minéral pour augmenter son rendement effectif vis-à-vis de la carbonatation peut être envisagée. Cela peut être réalisé par une variété de méthodes de prétraitement physique, y compris la réduction de taille, la séparation magnétique, ou le traitement thermique (Costa et al., 2007).

### **Conditions opératoires utilisées**

La réaction de carbonatation nécessite souvent des températures de traitement élevées atteignant les 100 °C et des pressions partielles de  $\text{CO}_2$  supérieures à 40 atm. L'imposition à de telles conditions améliore la libération de Ca et de Mg, susceptibles de réagir avec le  $\text{CO}_2$ , mais entraînant un coût énergétique conséquent (La Plante et al., 2021).

En ce qui concerne la cinétique d'absorption du  $\text{CO}_2$  dans le cas des cendres d'incinération d'unité de dépollution d'air, Baciocchi et al.(2009) ont mentionné qu'elle dépend des trois variables : rapport liquide/ solide noté (L/S), température de traitement et pression de  $\text{CO}_2$ .

À un ratio L/S de 0,02 allant jusqu'à 0,2 l/kg, une augmentation significative de l'absorption du  $\text{CO}_2$  a été rapportée pour un temps de réaction de 4h. Néanmoins, au-delà de 0,3 l/kg, une diminution de l'absorption du  $\text{CO}_2$  a été observée. Ce comportement traduit qu'une certaine quantité d'eau est suffisante pour la solubilisation d'ions. À des taux élevés d'eau, la croissance de l'épaisseur du film d'eau cause une résistance à la diffusion du  $\text{CO}_2$  ce qui inhibe son absorption par le matériel.

L'effet de la température sur la capacité de séquestration du  $\text{CO}_2$  a été aussi évoqué dans les travaux de Baciocchi et al. (2009) notant que pour un ratio L/S de 0,02 l/kg, une augmentation de 30 à 50° C a fortement amélioré la cinétique de carbonatation traduite par une augmentation de l'absorption du  $\text{CO}_2$  après 1 h de réaction de 8,0 % à 24,0 %.

Pour un ratio L/S de 0,2 l/kg, la température n'a aucun effet sur le taux de carbonatation mais en revanche améliore la dissolution du calcium. Ceci dit, L'effet de la température sur le taux d'absorption du CO<sub>2</sub> s'avère significatif à des teneurs en eau nettement inférieures à la valeur optimale de 0,2 l/kg.

L'efficacité de la carbonatation des cendres de charbon a été rapportée aux conditions de pression et température comme mentionné dans les travaux de Mazzella et al. (2016). Une augmentation de l'absorption du CO<sub>2</sub> avec l'augmentation de la température raccourcissant ainsi le temps nécessaire pour capter un pourcentage plus élevé de CO<sub>2</sub>. En revanche, dans une plage de pression de 10 à 15 bars, la cinétique de la réaction de carbonatation est ralentie et dans ce cas l'effet de la température est moins marqué.

Les résultats d'essais réalisés par Mazzella et al. (2016) ont montré que pour une température de 25°C et une pression de 10 bars, 70% en poids de CO<sub>2</sub> a été séquestré. Le même résultat de séquestration a été trouvé à 45°C pour une pression de 5 bars. Pour une pression de 5 bars et une température de 25°C, 22% en poids du CO<sub>2</sub> a été séquestré. Lorsque les basses pressions sont considérées, il n'est pas possible d'obtenir un taux de captage du CO<sub>2</sub> élevé à des températures inférieures à 25°C.

La température a également une influence sur le temps global de la réaction de carbonatation. Ainsi, pour une pression de 2,5 bars et un temps de réaction d'environ 50 minutes, le taux d'absorption du CO<sub>2</sub> à 45° C était le double par rapport à la valeur rapporté pour 25° C.

Une hypothèse a été émise par Mazzella et al. (2016) qu'à faible température, une carbonatation superficielle est privilégiée, favorisant la formation d'une coque carbonatée sur la surface des particules. À des températures plus élevées, les processus de diffusion sont plus efficaces et la carbonatation peut se poursuivre dans la masse du matériel.

### **Granulométrie initiale**

La granulométrie initiale de l'échantillon peut jouer un rôle important dans le déroulement de la réaction de carbonatation. En effet, comme indiqué par Zhang et al. (2004) ,les matériaux à grains très fins, peuvent inhiber la réaction de carbonatation. Un tassement serré des particules du solide peut limiter la perméation du CO<sub>2</sub> et donc limiter la réaction de carbonatation.

Pour différents matériaux alcalins utilisés, l'influence des paramètres considérés lors des essais de carbonatation sur le taux de séquestration du CO<sub>2</sub> ont été présentés dans différents travaux de recherche. Les conditions opératoires testées dans ce projet lors des essais préliminaires de carbonatation des mâchefers dans le réacteur de carbonatation en phase humide et à température ambiante peuvent être améliorées pour aboutir à une séquestration meilleure du CO<sub>2</sub>.

Par la suite, la réaction de carbonatation a été testée en combinaison avec la granulation dans le granulateur. Les essais de couplage carbonatation-granulation sont réalisés à température ambiante. Il s'agit dans ce qui va suivre de faire des tests en barbotant du CO<sub>2</sub> dans l'eau et l'injectant dans le granulateur contenant l'échantillon initial. D'autres essais de carbonatation sont repris avec les mêmes conditions opératoires en injectant le CO<sub>2</sub> sur les granulats formés. Avant de réaliser les essais de couplage carbonatation-granulation, des étapes de prétraitement ont été réalisées sur les lots d'échantillon comme détaillé dans la section suivante.

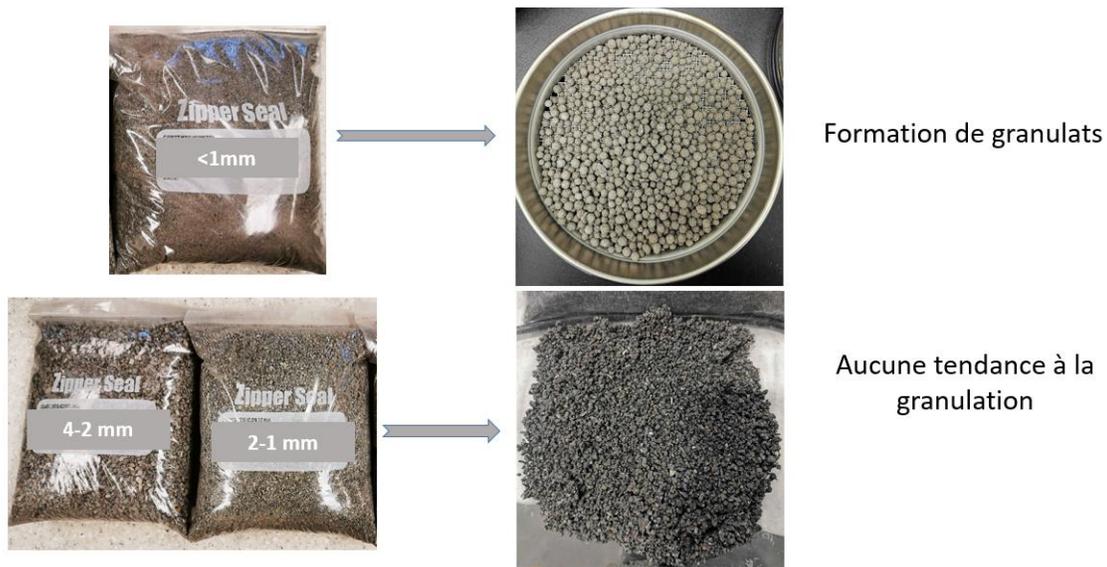
### **6.3 Prétraitement**

Des étapes de prétraitement ont été réalisées sur les mâchefers reçus du 2<sup>ème</sup> et 3<sup>ème</sup> lot afin de faciliter les réactions de granulation-carbonatation.

L'étape de tamisage a été optimisée lors du traitement du 2<sup>ème</sup> lot pour réduire le nombre de tamis utilisés à 4 tamis au lieu de 7 tamis.

#### **6.3.1 Effet de la granulométrie initiale**

L'effet de la granulométrie initiale de l'échantillon de mâchefers a été évalué suite à la réalisation des essais préliminaires de granulation pour le 2<sup>ème</sup> lot. Pour ce faire, trois fractions granulométriques inférieure à 1mm, 1-2 mm et 2-4 mm ont été testées lors des essais préliminaires de granulation comme le montre la figure 18.



**Figure 18 Tendence de la granulation des trois fractions granulométriques**

L'utilisation de la fraction inférieure à 1 mm de l'échantillon brute montre la formation de granulats de forme sphérique en présence de ciment et d'eau respectivement à des pourcentages de 12% et 17.9% et pour un temps de granulation d'environ 30 minutes. Des pourcentages de 12 à 17% de ciment et de 13,1 à 15% d'eau ont été utilisés lors des essais de granulation des fractions 4-2 mm et 2-1mm. Pour le même temps d'essai, l'utilisation des fractions 4-2 mm et 2-1mm pour les essais de granulation ne montrent aucune granulation significative et le produit final est semblable à l'échantillon initial.

La granulométrie initiale de l'échantillon de mâchefer a un effet sur la formation de granulats. En effet, la surface spécifique d'échange de l'échantillon joue un rôle important dans l'établissement de liaisons entre les particules en présence de liants lors des essais de granulation.

À partir des résultats trouvés en utilisation les trois fractions granulométriques pour les essais préliminaires de granulation, une étape de broyage a été réalisée sur les fractions de l'échantillon initial qui ne granulent pas : les 2 fractions 1-2 mm et 2-4 mm qui ont été dans un premier temps mélangées puis broyées.



**Figure 19** Fractions non broyées A : morceaux de ferrailles et imbrulés, B : fraction non broyée issue du broyeur rotatif, C : Aluminium et billes de fer trouvés dans B.

La fraction supérieure à 4mm de l'échantillon initial a été aussi traitée. Les parties grossières, essentiellement les morceaux de ferrailles et les imbrulés (figure 19.A), contenues dans cette fraction, et la fraction qui n'a pas été broyée dans le broyeur rotatif

(figure 19.B), ont été éliminées. Le reste de la fraction supérieure à 4 mm a été broyé. Les résultats du broyage des fractions susmentionnées sont présentés dans la section 6.3.2.

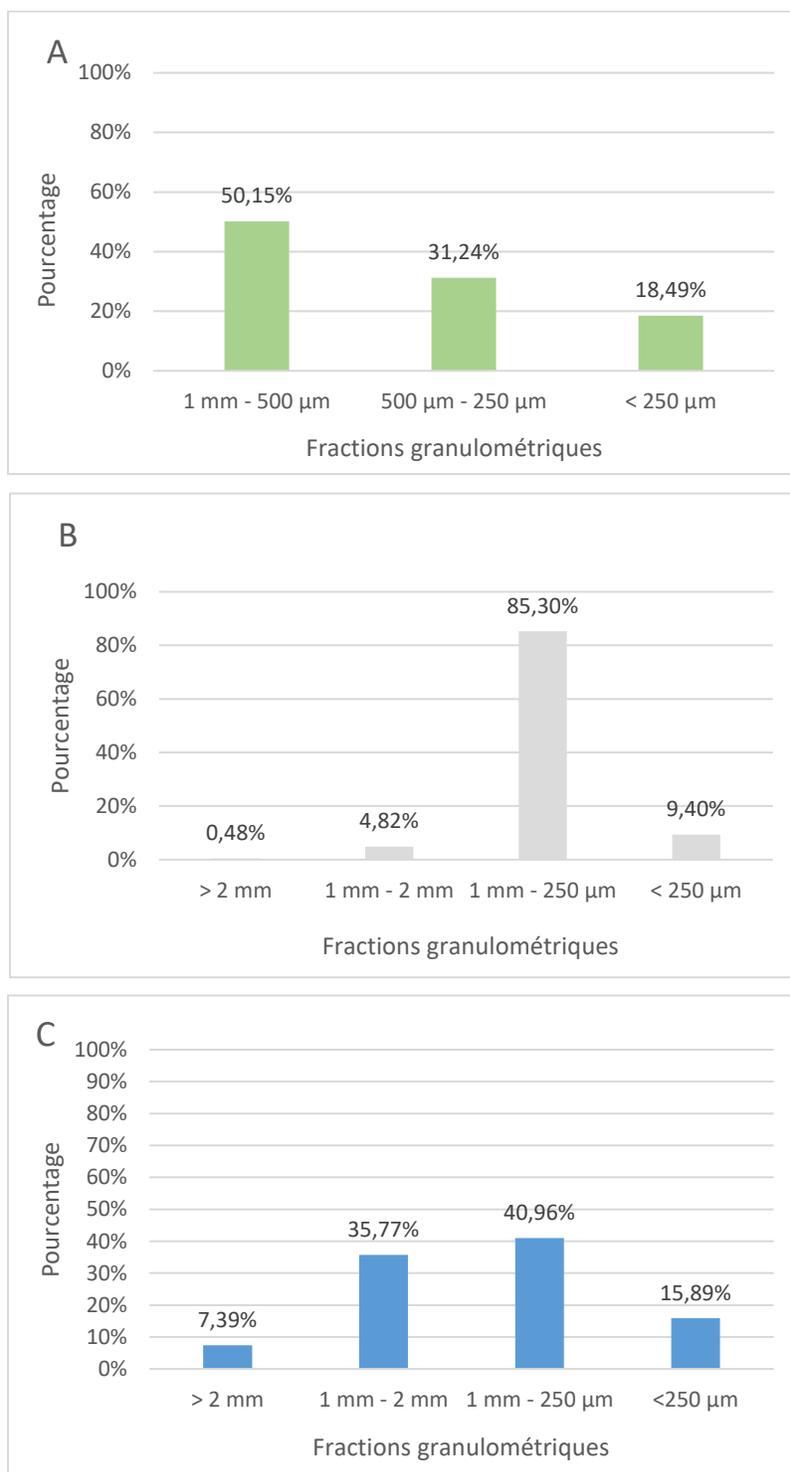
### **6.3.2 Broyage**

Le recours à l'utilisation de plusieurs types de broyeurs est en relation avec la granulométrie initiale de l'échantillon à traiter. C'est dans un ordre d'utilisation bien défini que l'échantillon a été broyé :

- Concasseur pour la fraction supérieure à 4mm
- Broyeur rotatif pour les fractions 4-1 mm
- Broyeur à disque pour les fractions 2-1mm

La fraction restante du broyage issu du broyeur rotatif (figure 19.B) s'avère intéressante pour les projets de valorisation futurs. En effet, cette fraction contient de l'aluminium de taille environ 2 cm et des billes de fer de taille 3 mm (figure 19.C) déterminée par la mesure de la densité apparente.

Les granulométries des différentes fractions utilisées pour les essais de granulation : <1mm, (1-4 mm) broyé et (> 4mm) broyé sont présentées dans la figure 19.



**Figure 20** Pourcentage des fractions granulométriques des échantillons A : inférieure à 1mm , B : ( 1-4 mm) broyée par le broyeur à disque, C : supérieure à 4mm broyée par le broyeur rotatif

L'échantillon de granulométrie supérieure à 4mm broyé par le broyeur rotatif présente un mélange assez hétérogène dont 35,77% de la fraction granulométrique 1-2 mm, 40,96% de la fraction 1mm-250 µm.

Tandis que l'échantillon de granulométrie (1-4 mm) broyé par le broyeur à disque présente un mélange de granulométrie plus fine par rapport à celui issu du broyeur rotatif avec environ 85,80% de fraction 1 mm-250 µm.

La fraction de l'échantillon brute inférieure à 1 mm avec laquelle il y'a eu formation de granulats, a une distribution granulométrique comme suit : environ 50% de la fraction 1 mm-500 µm, 31,5% de la fraction 500 µm-250 µm et 18,5 % de la fraction < 250 µm.

Les étapes de tamisage et de broyage ont été optimisées lors du traitement du 3<sup>ème</sup> lot, comme détaillé dans la section 6.4.2.

## 6.4 Essais de granulation

Les essais de granulation ont été réalisés sur le 2<sup>ème</sup> et 3<sup>ème</sup> lot d'échantillon de mâchefers.

Trois paramètres opératoires ont été fixés pour tous les essais de granulation :

- L'angle du dispositif de granulation : 45° par rapport à la surface horizontale,
- Le sens de rotation du granulateur : sens des aiguilles d'une montre,
- Une masse de 1 kg de mâchefers par essai.

Les paramètres étudiés pour les essais du 2<sup>ème</sup> et 3<sup>ème</sup> lot sont :

- % eau [15 – 20 %]
- % ciment [9– 14 %]
- Temps de réaction [30 – 45 min]
- Vitesse de rotation [18 – 45 rpm]

Le ciment sous forme de ciment Portland ordinaire (OPC) commercialisé est utilisé comme liant hydraulique pour tous les essais de granulation en la présence de l'eau distillée. Le ciment portland est bien connu comme principal agent cohésif pour la production de béton (Viry *et al.*, 2021). Il peut être aussi utilisé comme liant pour former des agrégats comme mentionnent plusieurs travaux de valorisation des déchets. Le ciment portland est composé d'un mélange d'alite ( $3CaO \cdot SiO_2$ ), de bélite ( $2CaO \cdot SiO_2$ ), d'aluminates tricalciques ( $3CaO \cdot AlO_3$ ), d'aluminoferrites tétracalciques ( $3CaO \cdot Al_2O_3 \cdot Fe_2O_3$ ) et de gypse. Les liants

hydrauliques, notamment le ciment portland, forment des produits d'hydratation en présence d'eau. Après hydratation, les principaux produits cohésifs sont le silicate de calcium hydraté noté C-S-H, ainsi que les hydroxydes d'aluminium et de calcium.

Ils doivent avoir des propriétés hydrauliques ou pouzzolaniques, pour créer une matrice solide entre les fines particules de poudre (dans notre cas les mâchefers traités), en formant des phases cimentaires sous forme d'hydrate de silicate de calcium (C-S-H) et d'hydrate d'aluminate de calcium (C-A-H) (Viry *et al.*, 2021).

Au cours de la réalisation des essais de granulation, le pourcentage de ciment est calculé à partir de la quantité de cendres ajoutées alors que le pourcentage d'eau est lié à la quantité totale du mélange introduit dans le tambour rotatif.

### **Caractérisation des essais de granulation**

Les caractéristiques suivies au cours de ce projet sont :

- Le taux de granulation des essais ;
- La résistance à la compression des granulats ;
- Leur masse volumique ;
- Et leur capacité d'absorption d'eau.

#### **6.4.1 Essais de granulation du 2<sup>ème</sup> lot d'échantillon**

Trois fractions granulométriques ont été testées pour ce lot d'échantillon :

- La fraction brute <1mm ;
- La fraction broyée issu du broyeur rotatif ;
- La fraction broyée issu du broyeur à disque.

L'effet de la granulométrie initiale des mâchefers, l'effet de l'ajout de CO<sub>2</sub> et les caractéristiques des granulats formés lors des essais de granulation du 2<sup>ème</sup> lot d'échantillon sont détaillés dans les parties qui suivent.

#### 6.4.1.1 Effet de la granulométrie initiale des mâchefers (sans CO<sub>2</sub>)

Les essais préliminaires de granulation ont servi à déterminer les conditions optimales de formation de granulats à partir des cendres d'incinération. En effet, les granulats apparaissent après une moyenne de 2 minutes de granulation pour un pourcentage de ciment idéalement compris entre 9 et 12%, un pourcentage d'eau minimal de 15% par rapport à la masse totale et une moyenne de 20 à 45 rotations par minute selon la granulométrie initiale des mâchefers.

Une augmentation significative de la granulométrie du produit par rapport à la matière première a été observée (Baciocchi et al., 2021). Après 10 minutes de granulation, et en ajoutant progressivement l'eau et le ciment de façon alternée, il y aura formation de granulats de différentes tailles allant de 2,5mm jusqu'à 35mm. La distribution granulométrique trouvée dépend des paramètres opératoires utilisés.

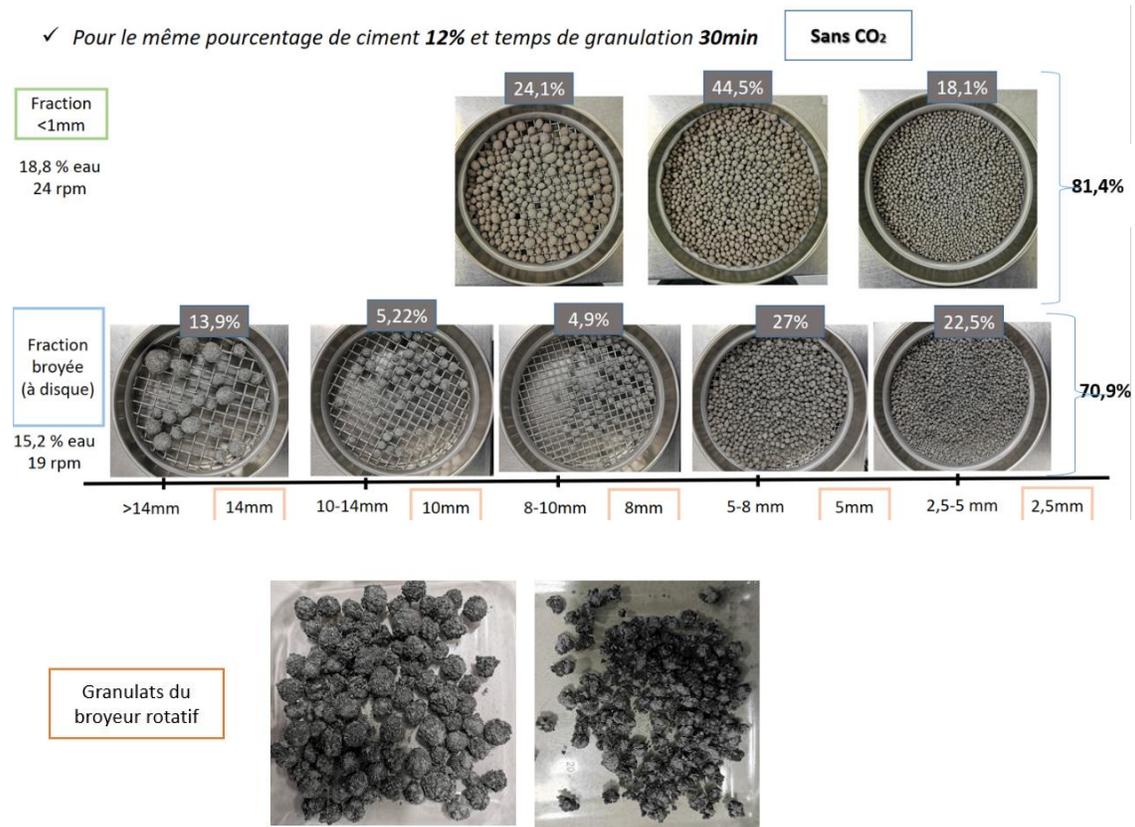
Le tableau suivant présente les différentes conditions opératoires utilisées ainsi que les principaux résultats des taux de granulation et des diamètres des granulats formés en utilisant les trois fractions granulométriques comme mentionnées précédemment et sans ajout de CO<sub>2</sub>.

**Tableau 8 Principaux résultats de granulation du deuxième lot**

Fraction	Échantillon brut <1mm	Échantillon broyé	
		Broyeur à disque	Broyeur rotatif
Eau %	[17,9 – 20]	[15,2 – 16,5]	[16,4 – 17,2]
Ciment %	[ 11 – 13 ]	[10 – 12]	[11 – 12]
Vitesse (rpm)	[18 – 31]	[19 – 20]	[19 – 20]
Temps (min)	[30 – 45]	[30 – 33]	[25 – 30]
Diamètre des granulats formés (mm)	De 10 à 2,5	De >14 à 2,5	Forme irrégulière des granulats
Taux de granulation %	[ 33,1 – 81,4 ]	[68 – 79,9]	≈50

Comme mentionné dans le tableau 8, les taux de granulation pour les essais préliminaires varient entre 33,1% et 81,4 % pour les échantillons de cendres brutes <1mm, entre 68% et 80% pour celles broyées par le broyeur à disque et d'environ 50% pour celles issues du broyeur rotatif. La taille et la forme des granulats varient aussi d'un essai à un autre

comme le montre la figure 21. Ces variations sont en étroite relation avec la granulométrie initiale des cendres et les paramètres opératoires utilisés.



**Figure 21** Différentes formes et tailles de granulats confectionnés par granulation des 3 types d'échantillon de cendres (sans CO<sub>2</sub>)

Pour les mêmes pourcentages de taux de ciment de 12% et de temps de réaction de 30 minutes, les granulats issus de l'échantillon brut <1mm et l'échantillon broyé par le broyeur à disque, ont une forme plutôt sphérique. Quant aux granulats issus du broyeur rotatif, ils ont une forme quelconque plus au moins sphérique.

Une hypothèse a été émise quant à la cohésion et la liaison des particules au sein des granulats formés qui est régie à la fois par la granulométrie initiale de l'échantillon de cendres, le pourcentage de liants utilisés, la vitesse de rotation du tambour et le temps de

réaction. Plus de détails, quant à l'effet des paramètres opératoires, sont fournis lors du traitement du 3<sup>ème</sup> lot comme mentionné dans la section 6.5.1.

Au fur et à mesure la réalisation des essais, le temps de granulation a été fixé à 30 minutes pour une durée maximale de croissance des granulats. En effet, au-delà de 30 minutes de réaction, il y avait cohésion entre les granulats formés aboutissant à la formation de gros granulats de taille supérieure à 40 mm, jusqu'à la formation de blocs. Ce phénomène peut entraîner le blocage de la réaction de granulation.

#### 6.4.1.2 Caractérisation des granulats formés (sans CO<sub>2</sub>)

De chaque essai de granulation, une résistance à la compression moyenne de 6 granulats a été déterminée pour chaque classe granulométrique. Il est à noter que selon l'expérience et le nombre de granulats dans chaque classe granulométrique, la moyenne de résistance à la compression peut fluctuer.

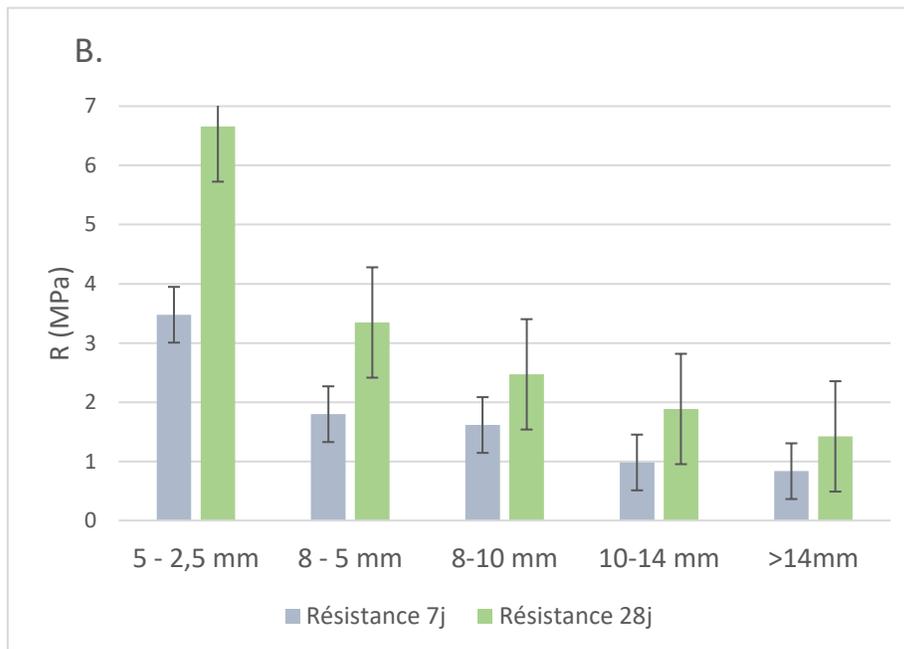
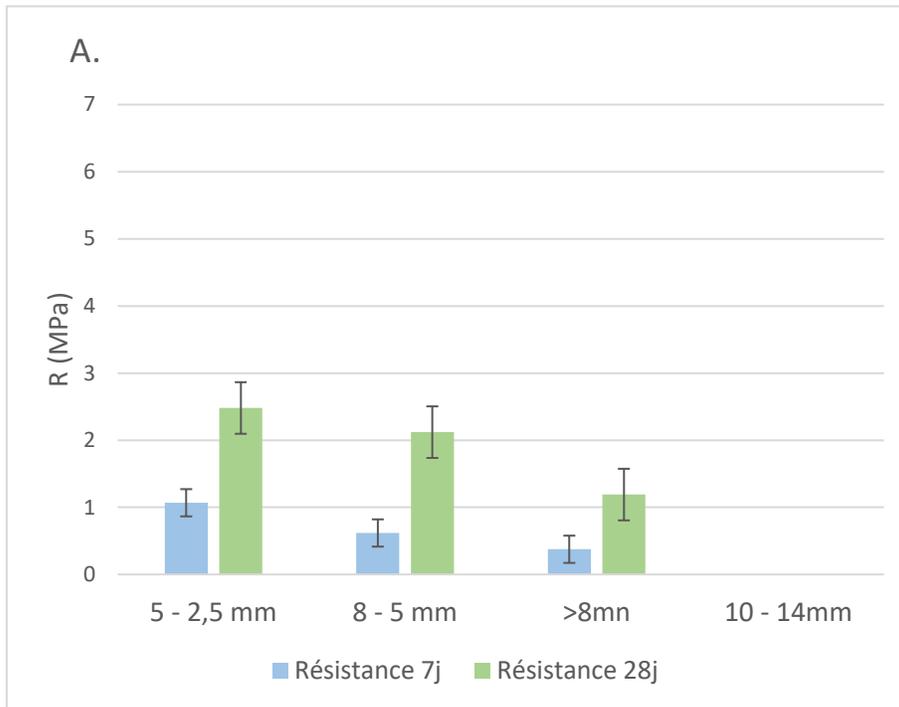
Le tableau suivant présente une comparaison des résultats de granulation obtenus avec les données de la littérature quant aux différentes caractéristiques des granulats formés et conditions opératoires.

**Tableau 9 Comparaison avec la littérature des résultats de granulation**

Paramètres des granulats	Données de la littérature		Données du présent projet	
	Berber et al. (2020)	Cioffi et al. (2011)	Granulats formés (échantillon brut <1mm)	Granulats formés (échantillon broyé)
Diamètre (mm)	4 - 10	5 - 20	2,5 - 10	2,5 - >14
Résistance à la compression MPa (7j)	1,03 - 4,03	1,9 - 4,5	0,44 - 4,72	0,37 - 7,13 (granulats <2,5mm)
Densité apparente (kg/m <sup>3</sup> )	1750 - 2500	1170 - 1330	1520 - 1780	1610 - 1970
% ciment	5- 10	10 -30	11 - 13	10 - 12
% eau	14 -35	28 - 35	17,9 - 20	15,2 - 16,5

Les granulats ayant une densité apparente  $<2000 \text{ kg/m}^3$  sont qualifiés de granulats légers, ce qui est le cas pour les granulats confectionnés à partir des mâchefers de l'incinérateur de la ville de Québec. Les figures suivantes présentent les résultats des essais de résistance à la compression pour les deux types d'échantillon de mâchefers traités.

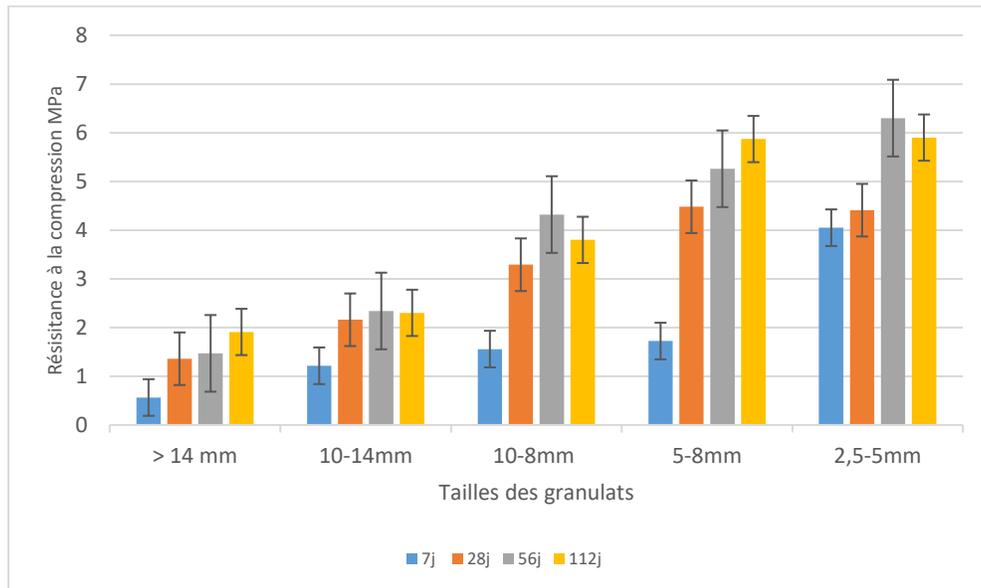
Le suivi de la résistance à la compression des granulats confectionnés à partir de la fraction  $<1 \text{ mm}$  et la fraction broyée par le broyeur à disque pour 7 et 28j est présenté dans figure 22.



**Figure 22** Résistance à la compression des granulats pour 7j et 28j A. Fraction <1mm (12% ciment, 18,8% eau ,24 rpm) , B. Fraction broyée (12% ciment, 15,2% eau, 19 rpm)

Pour la même plage de diamètre de granulats formés, la résistance à la compression avec la fraction broyée est supérieure à celle avec la fraction brute inférieure à 1 mm. La granulométrie initiale des mâchefers a un impact direct sur l'effet de l'agglomération des particules qui est défini par les résultats des résistances à la compression des agrégats après séchage.

Un suivi de la résistance à la compression des granulats a été réalisé sur quelques essais de granulation pour des périodes de 7, 28, 56 jusqu'à 112 jours de cure. Un exemple d'essai avec un échantillon broyé, 11% de ciment, 16.5 % d'eau, 20 rpm, 30 minutes a donné le résultat suivant :

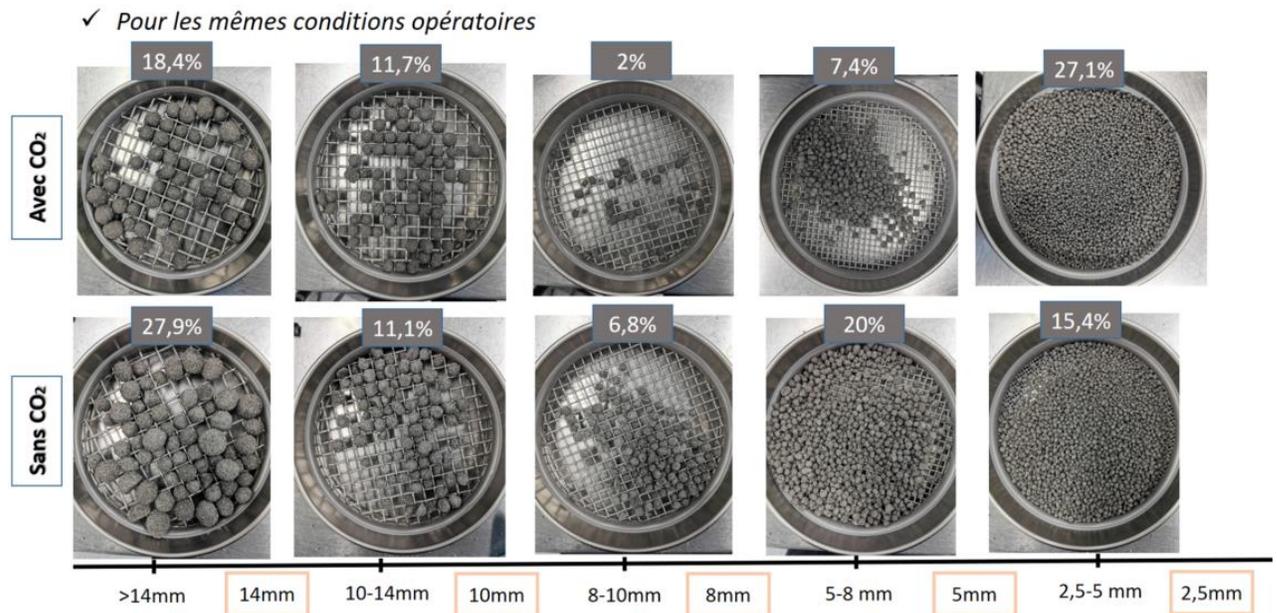


**Figure 23** Résistance à la compression après 112 jours d'un essai de granulation avec 11% ciment , 16,5% d'eau , 20 rpm pendant 30 minutes

Comme constaté dans les figures 22 et 23, plus le temps de la cure est élevé, plus la cohésion des particules augmente ce qui engendre l'augmentation de la résistance à la compression. Plus le diamètre du granulat est faible plus la résistance à la compression augmente.

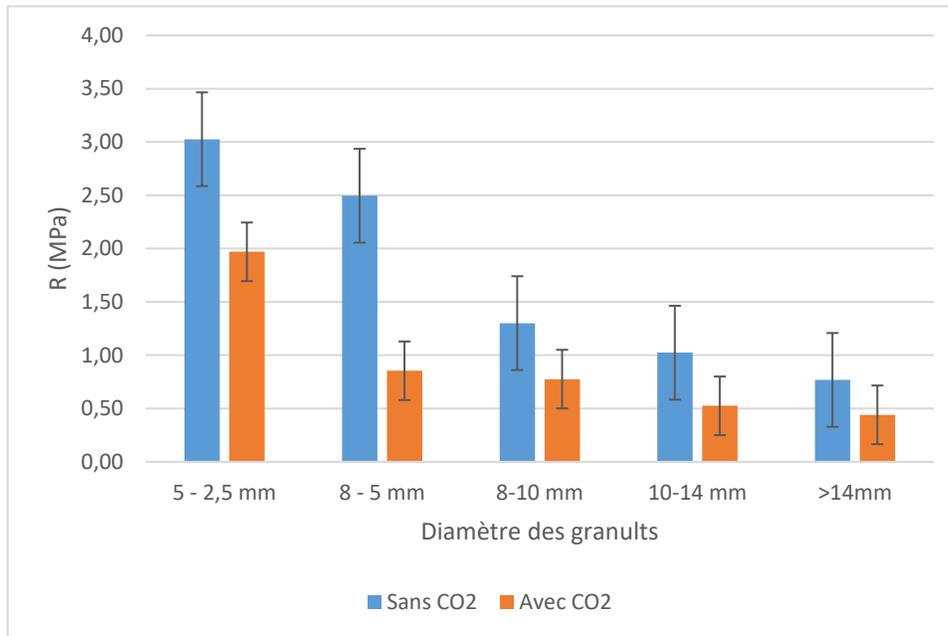
### 6.4.1.3 Comparaison des essais de granulation (avec et sans CO<sub>2</sub>)

Les mêmes conditions opératoires de quelques essais de granulation du 2<sup>ème</sup> lot ont été reprises avec l'injection du CO<sub>2</sub> comme mentionné précédemment en utilisant la fraction broyée par le broyeur à disque.



**Figure 24** Différentes formes et tailles de granulats confectionnés par granulation avec CO<sub>2</sub> (fraction broyée, 11% ciment, 16% eau, 30rpm et 30 minutes de granulation + 30 minutes d'injection de CO<sub>2</sub>)

La figure suivante présente les valeurs de résistance à la compression des granulats pour les mêmes conditions opératoires avec et sans injection de CO<sub>2</sub>.



**Figure 25** Résistance à la compression des granuls avec et sans CO<sub>2</sub> (fraction broyée, 11% ciment, 16% eau, 30rpm)

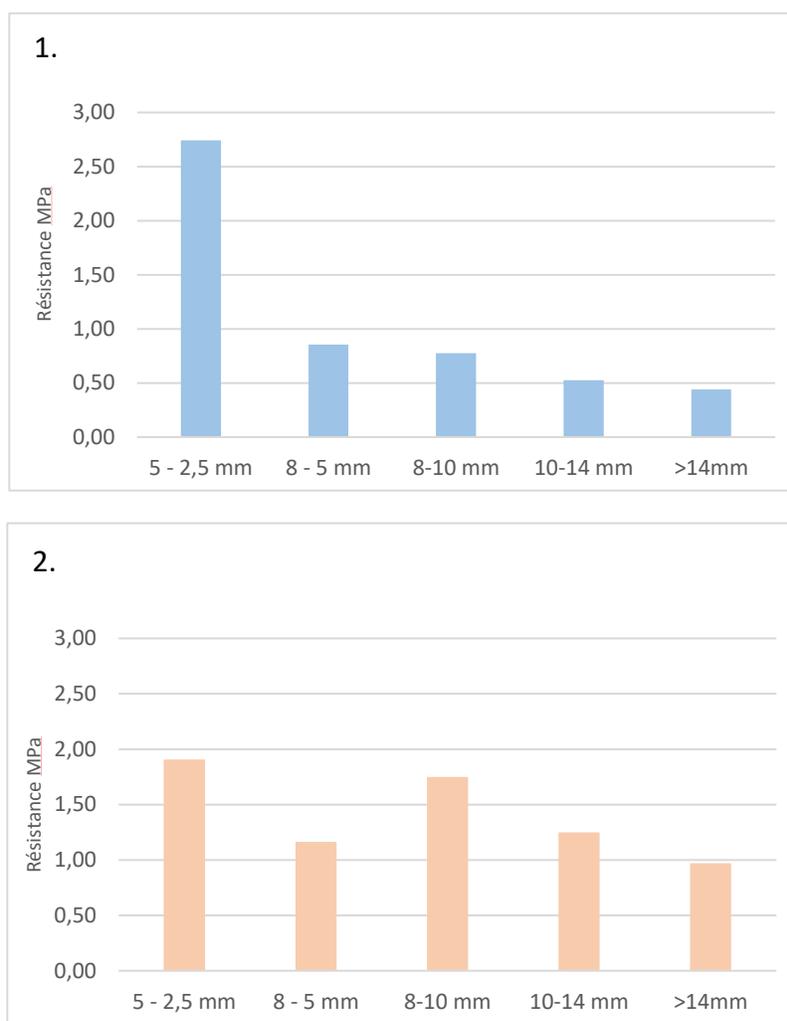
Une hypothèse a été émise quant à l'injection de CO<sub>2</sub> sur les granuls formés : Le CO<sub>2</sub> fragilise la liaison entre les particules de l'échantillon ce qui est traduit par une diminution de la résistance à la compression des granuls, il ne s'agit par de réaction de carbonatation proprement dite mais d'un phénomène d'adsorption ou d'occupation des molécules de CO<sub>2</sub> au sein des pores ou à la surface des granuls.

Quelques essais de couplage granulation-carbonatation ont été réalisés comme suit :

- Granulation puis carbonatation
- Carbonatation puis granulation

Une durée de 30 minutes pour chaque étape a été fixée pour ces essais.

La représentation graphique des deux essais de couplage avec les mêmes conditions opératoires (11% ciment, 16% eau, et 30 rpm) est présentée dans la figure 26.



**Figure 26** Résistance à la compression des granulats pour les essais de couplage  
**1. Granulation puis carbonatation , 2. Carbonatation puis granulation**

La résistance à la compression des granulats formés chute considérablement pour l'essai de granulation puis carbonatation : des valeurs inférieures à 1 MPa pour les granulats de diamètre supérieur à 5 mm. Une augmentation de la résistance à la compression est constatée pour des essais de carbonatation puis granulation en utilisant les mêmes conditions opératoires, mais qui reste inférieure à 2MPa.

Les résultats de combinaison granulation carbonatation trouvés lors des essais conduits fluctuent d'un essai à un autre en ce qui concerne les résistances à la compression des

granulats formés. Notons que la résistance à la compression est régie aussi par le taux de liant ajouté (Cioffi *et al.*, 2011).

Ainsi les observations réalisées ne peuvent pas être déterminants quant à l'efficacité du couplage carbonatation-granulation. L'augmentation de la résistance à la compression constatée lors de l'essai de carbonatation puis granulation peut être expliquée par l'établissement de liaisons entre particules de l'échantillon qui seront renforcés avec les forces centrifuges du tambour rotatif. Selon l'analyse élémentaire CHN, le taux de captage de CO<sub>2</sub> par un kg d'échantillon pour cet essai ne dépasse pas 1,6 g par kg.

La rotation du granulateur de granulation lors de l'injection du CO<sub>2</sub> assure l'homogénéité du matériel. En revanche, ceci peut présenter un obstacle pour le déroulement de la réaction de carbonatation comme constaté par Berber *et al.* (2020) qui ont mis le point sur l'inhibition de la réaction du solide avec le CO<sub>2</sub> lors de la formation de granulats dont les éléments susceptibles de réagir avec le CO<sub>2</sub> sont encore piégés dans la matrice du granulat.

Un suivi de la réaction de couplage granulation - carbonatation ainsi que l'optimisation des conditions opératoires et des étapes d'opération est recommandé pour les travaux futurs.

#### **6.4.2 Essais de granulation du 3<sup>ème</sup> lot d'échantillon**

Le prétraitement a été optimisé pour le 3<sup>ème</sup> lot en tenant compte des résultats du deuxième lot.

##### **6.4.2.1 Effet de la granulométrie initiale des mâchefers (sans CO<sub>2</sub>)**

L'échantillon a été séché à 60°C et tamisé. À la suite du tamisage, trois fractions granulométriques ont été obtenues : supérieure à 4mm, 4-1mm broyée et inférieure à 1mm brute.

Deux fractions de l'échantillon initial ont été utilisées de granulométrie respective : <1 mm échantillon brute et la fraction 1- 4 mm broyée par le broyeur à disque.

Pour plus de performance quant à la réaction de granulation, et suivant les résultats préliminaires trouvés lors de l'utilisation de la fraction <1mm brute du lot 2, la fraction <1mm du 3<sup>ème</sup> lot a été broyée à 700 rpm pour une durée de 20 secondes.

Le tableau 10 présente les conditions opératoires utilisées ainsi que les moyennes des différents résultats des essais de granulation réalisés avec le 3<sup>ème</sup> lot d'échantillon.

**Tableau 10 Conditions opératoires et résultats des essais de granulation du 3<sup>ème</sup> lot**

	<b>Échantillon broyé</b>	<b>Échantillon &lt;1mm</b>
<b>Moyenne des diamètres de granulats (mm)</b>	[>14 – 2.5 ]	[>14 – 2.5 ]
<b>Intervalle de résistance à la compression 7j (MPa)</b>		
<b>Moyenne de taille de granulats 17 mm :</b>	[0.111 – 1.706]	[0.437 – 1.255]
<b>Moyenne de taille de granulats 12 mm :</b>	[0.228 – 1.108]	[0.954 – 2.222]
<b>Moyenne de taille de granulats 7.5 mm :</b>	[0.943 – 2.821]	[1.471 – 3.040]
<b>% ciment</b>	[9 - 12]	[9 - 11]
<b>% eau</b>	[14.5 – 16.79]	[14.62 - 16.03]
<b>rpm</b>	[20 - 45]	[25 -30]
<b>% granulation</b>	[23.84 – 94.84]	[26.71 - 93.66]

#### **6.4.2.1 Effet de l'ajout de CO<sub>2</sub> sur la résistance à la compression des granulats**

En ce qui concerne les essais de granulation avec CO<sub>2</sub> pour le 3<sup>ème</sup> lot, même conclusions quant à l'effet de l'injection du CO<sub>2</sub> dans le granulateur sur la résistance à la compression des granulats.

Les essais de combinaison carbonatation/granulation seront à optimiser dans des travaux futurs.

### **6.5 Récapitulatif des essais de granulation de ce projet**

Le tableau suivant présente les valeurs des paramètres opératoires des centaines d'essais de granulation réalisés au cours de ce projet avec les échantillons bruts et broyés par le broyeur à disque des deux lots de mâchefers pour les meilleurs pourcentages de granulation parmi les différents essais de granulation.

Tableau 11 Rendement des différents essais de granulation

N° lot	Échantillon initial	%ciment	% eau	rpm	R (MPa) <sub>7j</sub> granulats de taille > 14mm - 5 mm	Taux de granulation	% perte de masse
2	<1mm	11	18.4	20	[1.196-1.771]	46.13	10.75
		12	20	20	[0.867-2.959]	57.15	6.84
		13	15.2	20	[1.357-1.548]	60.78	5.13
	broyé	10	16	20	[0.837-1.842]	69.19	7.35
		11	15.9	20	[0.783-1.787]	79.88	1.51
		12	15.2	20	[0.564-1.723]	74.8	5
3	<1mm broyé	9	15.5	25	[0.584-1.149]	87.50	4.3
		10	16.0 3	25	[0.581-1.051]	93.41	4.76
		11	15.9 1	30	[0.916-2.148]	93.66	4.18
	broyé	9	15.5	45	[0.74 -1.070]	92.16	6.16
		10	15.3 8	25	[0.203-0.943]	89.86	4.05
		11	16.5 4	25	[0.35- 1.306]	94.84	3.89
		12	15.7 9	28	[0.35-1.563]	93.54	3.44
		<b>Intervalle du % d'absorption d'eau [6,39- 12,7]</b>					

La nature de l'échantillon initial, les proportions des liants ajoutés ainsi que le temps de réaction et la vitesse de rotation du granulateur auront un impact direct sur l'efficacité de la granulation et la formation des granulats. Les intervalles des paramètres opératoires ont été définis suivant les tests préliminaires de granulation réalisés tout au long de ce projet à chaque réception de lot d'échantillon. En effet, pour chaque granulométrie de mâchefers utilisés, les pourcentages d'eau et de ciment ont été adaptés pour le bon déroulement de la granulation.

Un léger excès de ciment ou d'eau comme présenté dans la section 6.5.3 peut entraîner le blocage de la réaction de granulation. Le même cas se présente si on a un déficit de ciment. Une vitesse faible ou trop élevée est aussi un facteur déterminant de la granulation.

Comme constaté, les valeurs de rotation par minutes du granulateur, des pourcentages de ciment et d'eau et de la résistance à la compression pour 7 jours varient pour les deux lots d'échantillons étudiés.

Les granulats confectionnés à partir des mâchefers issus de l'incinérateur de Québec peuvent être utilisés comme produits de substitutions dans les travaux de génie civil ou dans la confection de béton léger tout dépendra de leur forme, densité apparente, leur résistance à la compression et lixiviation des éléments.

La définition d'intervalle d'étude sera favorable pour tester la granulation à l'échelle pilote, tout en les adaptant au fur et à mesure de la réalisation des essais préliminaires.

La recette de granulation à retenir prendra en compte à la fois de l'aspect environnemental économique et commercial en ce qui concerne respectivement le pourcentage de ciment ajouté, la vitesse de rotation du granulateur et la valeur de la résistance à la compression des granulats. Des essais préliminaires de granulation démontreront la tendance générale de la granulation des mâchefers traités et aident ainsi à se situer dans un intervalle d'étude bien défini.

### **6.5.1 Effet des paramètres opératoires sur les résultats de granulation**

Au cours de la réalisation des essais de granulation, différentes constatations ont été établies quant à l'influence des paramètres opératoires sur le rendement général de la granulation. Comme mentionné précédemment, le temps de réaction a été optimisé et

rendu à 30 minutes pour les essais à considérer pour cette partie. L'influence des trois paramètres opératoires à savoir le taux de ciment, le pourcentage d'eau et la vitesse de rotation du granulateur sont déterminés.

#### **6.5.1.1 Influence du pourcentage de ciment**

Même à des valeurs élevées du pourcentage de ciment, le taux de granulation demeure faible si le pourcentage d'eau est inférieur à 15%. Ainsi, le pourcentage du ciment doit être proportionnel à celui de l'eau afin d'assurer un certain équilibre entre les deux facteurs pour l'établissement de liaisons entre les particules des granulats. Dans certains essais de granulation, une légère augmentation de la résistance à la compression des granulats avec une augmentation du pourcentage de ciment. Mais ceci reste étroitement lié à l'ensemble des paramètres opératoires.

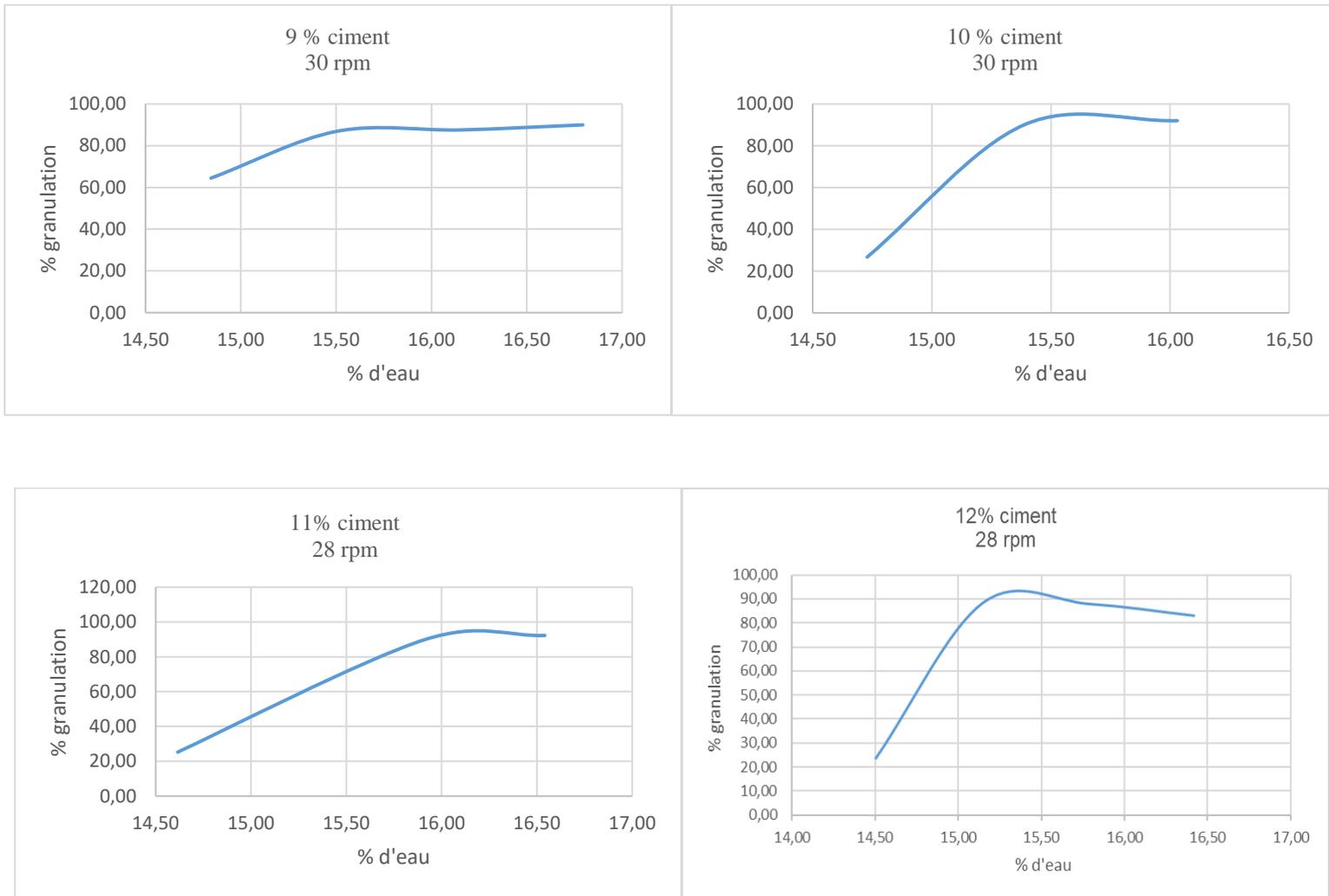
Les performances des essais de granulation seront donc déterminées en fonction du pourcentage d'eau et de vitesse de rotation, à des pourcentages de ciment bien déterminés.

#### **6.5.1.2 Influence du pourcentage d'eau**

Pour des essais à deux paramètres fixes (la rotation par minute et le pourcentage de ciment), les taux de granulation avaient une tendance d'augmenter en augmentant le pourcentage d'eau comme le montre les représentations graphiques de la figure 26.

Cette augmentation atteint un palier pour des pourcentages d'eau de 15.5, 15.38, 15.91 et 15.15% respectivement pour un taux de ciment de 9, 10, 11, et 12 % aboutissant à un taux de granulation d'une moyenne de 88.6%.

À des pourcentages d'eau inférieurs aux valeurs notées précédemment, le taux de granulation chute considérablement.



**Figure 27** Influence du pourcentage d'eau sur le taux de granulation

La linéarité de la courbe représentative des taux de granulation en fonction des pourcentages d'eau est approximative vu qu'à quelques gouttes d'eau ajoutées, il y aura une variation significative du taux de granulation. D'après les essais réalisés, un pourcentage d'eau minimale de 15.45% sera donc à utiliser pour des pourcentages de ciment de 9 à 12 %. Au-delà de la valeur minimale d'eau pour chaque essai, l'augmentation du taux de granulation n'est plus significative avec l'augmentation du pourcentage d'eau. Une valeur maximale du pourcentage d'eau de 16 à 16.8 % par rapport à la masse totale des réactifs peut être utilisée. À des valeurs supérieures aux valeurs limites, il y a eu formation de boue par la cohésion des granulats entre eux ou l'adhésion du mélange réactionnel sur la paroi du granulateur surtout à des vitesses de rotations supérieures à 40 rpm.

### 6.5.1.3 Influence de la vitesse de rotation

Pour la majorité des essais réalisés, à des pourcentages déterminés de ciment et d'eau, plus la vitesse de rotation augmente plus le rendement de granulation augmente. Le tableau 11 présente les résultats des pourcentages de granulation de quelques essais réalisés en fixant les taux de ciment et d'eau et en variant la rotation par minutes du granulateur.

**Tableau 12                      Influence de la vitesse de rotation sur le taux de granulation**

%eau	15,50	15,50	15,38	15,38	16,54	16,54	15,79	15,79
%ciment	9	9	10	10	11	11	12	12
rpm	30	45,00	30	45,00	25	45,00	20	28
Temps (min)	30	30	30	30	30	30	40	30
%granulation	84,37	92,16	79,48	92,42	94,84	91,26	54,80	88,09
%perte de masse	5,81	6,16	4,80	4,82	3,89	7,18	3,10	7,04

La variation du taux de granulation peut être significative comme le cas d'une augmentation d'environ 34% du taux de granulation pour une vitesse de rotation passant

de 20 à 28 rpm. Alors que dans certain cas, une augmentation de 20 rpm d'un essai à un autre avec les mêmes conditions opératoires n'exerçait aucune influence sur le rendement de granulation.

La vitesse de rotation minimale testée est de 20 rpm. Des rendements de granulation d'environ 80% ont été atteints. Au-dessus de 20 rpm, il y aura un phénomène de glissement et la réaction de granulation est inhibée.

Ce paramètre a été optimisé afin de minimiser le facteur énergétique du procédé. La valeur maximale testée est de 45rpm. C'est la valeur limite à ne pas dépasser sinon il y aura adhésion du mélange réactionnel sur la paroi du granulateur. Des limitations de la granulation ont été constatées lors d'un léger dépassement de cette vitesse. Des rendements de 90% environ pour les taux de granulation ont été atteints à 45 rpm. Ceci doit être tenu en compte lors de l'élaboration du bilan économique, autrement dit, si une augmentation de 25 rpm qui aura une augmentation de 10 % sur le taux de granulation sera considérée ou non.

Si à l'échelle pilote, le facteur vitesse de rotation n'aura pas un impact important sur le coût global du procédé, une vitesse de rotation de 45 rpm sera donc recommandée.

### **6.5.2 Constatations générales de la granulation**

La méthodologie de granulation adaptée au cours de ce projet était de tester et d'optimiser les quatre paramètres opératoires au fur et mesure de la réalisation des essais afin de trouver un intervalle d'études bien déterminé pour la confection de granulats à partir des mâchefers de l'incinérateur de la ville de Québec en tenant compte de la granulométrie de l'échantillon initial. Les résultats trouvés sont prometteurs pour les travaux futurs pour la réalisation de modèle expérimental et la détermination d'équation de granulation en fonction des corrélations des paramètres opératoires. Un nombre d'essais bien déterminé sera défini en ayant recours au modèle de Box Behnken par exemple avec les limites inférieures et supérieures définies dans ce projet. L'impact de chaque paramètre sur les taux de granulation sera par la suite illustré dans un modèle graphique.

D'après les essais préliminaires, Il est recommandé de réaliser les essais de granulation avec un échantillon de mâchefers d'une granulométrie assez fine de 1 mm à 250 µm ou moins afin d'augmenter la surface spécifique d'échange et faciliter les liaisons entre les

particules du mélange. L'étape de broyage sera aussi un facteur déterminant lors de l'élaboration du bilan économique. Une optimisation du broyage a été réalisée sur la fraction <1mm : 700 rpm pour une durée de 20 secondes contre 700 rpm pendant une minute pour la fraction 1 – 4 mm.

Suivant les essais de granulation à l'échelle laboratoire des différents lots d'échantillons de mâchefers reçus de la fosse à mâchefers de l'incinérateur de Québec, un protocole général de granulation a été émis lors de la réalisation de ce projet est défini comme suit :

1. Homogénéisation des cendres reçues avec élimination des fractions grossières d'imbrulés,
2. Séchage de la totalité de la quantité de mâchefers à 60°C pendant 24h,
3. Tamisage des mâchefers séchés en utilisant des tamis de 1mm et 4mm
  - La fraction <1mm de l'échantillon brute peut être directement utilisée pour les essais de granulation ou broyée à 700 rpm pendant 20 secondes pour de meilleurs rendements.
  - La fraction 1- 4 mm doit être broyée par le broyeur à disque.
  - La fraction >4 mm peut être partiellement traitée en éliminant les fractions grossières restantes et concassage puis broyage du reste.
4. Essais de granulation avec une position du tambour à 45° par rapport à la surface horizontale et suivant la nature de l'échantillon initial, l'intervalle d'étude sera comme suit :
  - 9 à 12% de ciment
  - Un minimum d'eau de 15% par rapport à la masse totale des réactifs
  - 20 à 45 de rotation du tambour par minutes
  - 30 minutes de temps maximal de réaction

### **6.5.3 Enjeux de la granulation**

Il peut y avoir un phénomène d'adhérence du mélange réactionnel à la paroi intérieure du granulater en raison des forces centrifuges engendrées par une vitesse de rotation élevée. L'adhérence aux parois et la formation de boue dans quelques essais de granulation ont été aussi causées par l'excès de liants comme le montre la figure suivante.

La fraction qui reste collée à la paroi du tambour est qualifiée aussi comme reste de granulation.



Figure 28 Les enjeux de la granulation

#### 6.5.4 Bilan de masse de la granulation

Un bilan de masse a été calculé pour le 3<sup>ème</sup> lot d'échantillon pour la détermination du rendement général du processus de granulation établie lors de projet. Il s'agit de tenir en compte de la quantité de granulats générés par rapport à la masse des mâchefers traités. Ainsi, 60% des mâchefers traités ont été valorisés par granulation dont 25% de l'échantillon brut séché et tamisé (<1mm) et 35% de l'échantillon séché, tamisé et broyé (1 -4 mm). Les 40% des mâchefers traités restant (imbrulés, ferrailles et reste du broyage) peuvent être valorisés dans les trottoirs, enrobés de bitume et remblais sous-couche de route. Un processus de séparation magnétique et de traitement chimique spécifique peut être réalisé sur cette fraction restante.

Un bilan de masse pour le 3<sup>ème</sup> lot d'échantillon a été calculé par la suite pour les différentes classes granulométriques des granulats confectionnés par rapport à la masse des réactifs utilisés lors des essais de granulation comme le montre le tableau 13.

Tableau 13

Bilan de masse des classes granulométriques des granulats

Classe granulométrique	Pourcentage de chaque fraction / masse initiale	
	Échantillon 1-4 mm broyé	Échantillon <1mm broyé
>14 mm	52,17	49,18
14 - 10 mm	9,38	10,40
10 – 5 mm	8,93	5,73
5 – 2,5 mm	7,69	10,07
< 2,5 mm	16,12	18,01
<b>Perte</b>	5,71	6,61

Mis à part la quantité < 2,5 mm non granulée récupérée après la réaction de granulation, des pertes de masse de l'échantillon ont été déterminées. C'est la quantité de matière qui soit reste adhérente à la paroi du granulater ou perdue lors des manipulations. En ce qui concerne la classe granulométrique >14 mm, les plus gros granulats confectionnés lors des essais ont un diamètre de 35 mm.

## 6.6 Discussions générales

Dans le but d'établir un procédé de valorisation des mâchefers de l'incinérateur de la ville de Québec plus économique que l'enfouissement, les essais de couplage carbonatation-granulation ont été réalisés dans le granulater confectionné.

Un temps de réaction global pour le couplage carbonatation-granulation est fixé à 60 minutes pour les essais menés dans les conditions de température ambiante. Les conditions opératoires de granulation ont été optimisées et ont conduit à la formation de granulats artificiels. En revanche, suivant les conditions opératoires utilisées, les rendements de carbonatation des mâchefers étaient à un maximum de 2g par kg d'échantillon avec une diminution de la résistance à la compression des granulats formés avec ajout de CO<sub>2</sub> en comparaison avec ceux formés, dans les mêmes conditions

opératoires, sans ajout de CO<sub>2</sub>. Dans le cadre des essais réalisés dans ce projet, l'ajout du CO<sub>2</sub> a fragilisé les liaisons entre les particules des granulats formés.

Les faibles rendements de carbonatation peuvent être expliqués par l'impact des paramètres opératoires choisis pour établir la réaction de carbonatation-granulation dans le même chaudron de granulation.

Le rendement de carbonatation, comme illustré dans les travaux de Berber *et al.* (2020), peut être traduit par le taux de captage de CO<sub>2</sub> par une tonne de déchet d'incinération issus de l'unité de contrôle de pollution d'air (23 à 108 kg de CO<sub>2</sub> par tonne de déchets). Ce rendement a été obtenu à la suite d'un procédé composé de deux étapes : pré mélange, hydratation et carbonatation puis combinaison carbonatation-granulation. La vitesse de rotation du dispositif utilisé est de 3000 rpm pour l'étape 1 et de 610 rpm pour l'étape 2. Les travaux se sont focalisés sur l'optimisation de la mixture des déchets utilisés ainsi que leur teneur en CaO (les cendres volantes, les résidus solides d'incinération, les cendres de schiste bitumineux et les poussières de four de ciment) pour augmenter le rendement de la carbonatation.

Quant aux travaux de Schnabel *et al.* (2021), les essais de carbonatation des mâchefers ont été conduits dans un réacteur tournant (2 à 8 rpm) alimenté en continu d'un gaz réactif (~ 5 vol-% CO<sub>2</sub>, ~ 60°C) provenant des gaz d'échappement d'une unité de production combinée de chaleur et d'électricité. Un débit massique de mâchefers entre 3 à 10 kg par minute est administré dans le réacteur. L'efficacité de la carbonatation a été abordée en maximisant le chargement du réacteur à tambour rotatif alimenté en continu et en minimisant le temps de séjour des mâchefers.

La variation des rendements de carbonatation des mâchefers, dans le cadre des procédés de couplage carbonatation-granulation peut être liée à la nature et la composition chimique du matériel à granuler/carbonater. Comme mentionné par Arandigoyen *et al.* (2006), la surface spécifique d'échange est une propriété physique qui peut influencer le rendement des essais de carbonatation et granulation. Ainsi la présence d'un nombre élevé de sites disponibles dans l'échantillon solide initial favorise la réaction de carbonatation et la capacité de granulation.

Les rendements de couplage carbonatation-granulation peuvent être aussi liés au mode d'alimentation en CO<sub>2</sub>, au dimensionnement du réacteur de carbo-granulation, aux étapes

du processus, au temps de séjour moyen du solide en contact avec le flux gazeux de CO<sub>2</sub>, et à la température du milieu réactionnel. En effet, la température joue un rôle important dans processus de carbonatation essentiellement car elle influence la diffusion, la cinétique de réaction et les propriétés thermodynamiques associées (Mazzella et al., 2016).

Dans l'optique d'une optimisation des coûts du procédé afin de former des granulats à partir des cendres d'incinération de la ville de la Québec, que les efforts ont été focalisés davantage sur l'optimisation du prétraitement et les essais de granulation.

Néanmoins les faibles rendements de carbonatation trouvés dans ce projet, en utilisant le dispositif de granulation confectionné dans le laboratoire de l'INRS, ne doivent pas décourager autrui à conduire des essais de combinaison carbonatation-granulation suivant le protocole de granulation énoncé dans ce projet tout en adaptant les étapes du procédé, le temps de contact gaz/solide ou encore ajouter un système de chauffage afin d'améliorer les rendements de carbonatation au sein du chaudron de granulation et former des granulats valorisables.

D'autres facteurs peuvent être optimisés et l'adaptation du processus de couplage carbonatation-granulation des mâchefers exigerait des efforts supplémentaires pour sa mise à l'échelle industrielle.

Une évaluation des propriétés mécaniques des granulats produits sera à envisager afin de vérifier que lors de l'utilisation, les particules garderont leur forme d'origine et la taille et ne subiront pas d'écrasement excessif sous les charges attendues dans les applications de génie civil (Morone et al., 2014).

Des analyses minéralogiques sur les agrégats formés suivant les différentes conditions opératoires pourront être effectuées à des fins de compréhension plus approfondie en terme de consolidation mécanique des agrégats traduits par la formation des phases cimentaires au sein du granulat.

En plus, l'empreinte carbone doit être calculée afin de prévoir le rendement global du processus de carbo-granulation des mâchefers. En effet, le chauffage, broyage et les autres étapes à forte intensité énergétique, ainsi que les additifs utilisés, présentent des émissions indirectes de CO<sub>2</sub>, qui doivent être prises en compte afin d'évaluer le rendement

net du stockage de CO<sub>2</sub> qui peut être réalisé dans une perspective de réflexion sur le cycle de vie (Baciocchi et al.,2021).

## **6.7 Débouchés**

Les caractéristiques des agrégats confectionnés peuvent être comparées avec celles des agrégats usuels. Ceci est dans le but de déterminer la voie d'utilisation et de valorisation de ces agrégats façonnés comme produits de substitution notamment dans les travaux du génie civil.

Le choix d'utilisation des granulats issus à partir des déchets d'incinération, comme produit de substitution dans le béton par exemple, repose sur ses caractéristiques intrinsèques qui jouent un rôle important sur les performances et les propriétés du béton confectionné (Rahmouni *et al.*, 2016).

Schafer *et al.* (2019) ont mentionné l'utilisation des mâchefers comme composant partiel alliés aux granulats conventionnels ou recyclés dans la construction routière à condition de ne pas dépasser les limites des concentrations des éléments lixiviés selon les guides de valorisation de la province.

Afin de déterminer les voies potentielles de valorisation des granulats confectionnés à partir des mâchefers de l'incinérateur de la ville de Québec suivant le protocole établi lors de ce projet, quelques tests de caractérisation ont été réalisés sur les matériaux obtenus selon les guides et réglementations en vigueur.

### **6.7.1 Essais de lixiviation**

Des essais de lixiviation ont été réalisés sur une proportion représentative de l'échantillon initial de cendres broyées des trois lots, et sur quelques granulats confectionnés avec et sans CO<sub>2</sub> dont le diamètre ne dépasse pas 9,5 mm suivant le protocole suivi de la CEAEQ. Le but de ces essais de lixiviation est de comparer les taux de métaux lixiviés pour l'échantillon initial, les échantillons granulés et les échantillons carbonatés et déterminer l'effet qu'induit la carbonatation pour figer les métaux dans la matrice des mâchefers.

Le tableau ci-après présente les valeurs en mg/L trouvées par analyse ICP-AES des éléments As, Ba, B, Cd, Cr, Hg, Pb, Se et U de l'échantillon initial, carbonatés et de

quelques granulats confectionnés à partir du deuxième et troisième lot ainsi que les valeurs des concentrations maximales d'un contaminant dans le lixiviat d'une matière solide selon la norme du Règlement sur les matières dangereuses (RMD.2021).

Tableau 14

Valeurs des concentrations des contaminants en mg/L obtenues après les tests TCLP

Éléments/ Échantillons	As	Ba	B	Cd	Cr	Hg	Pb	Se	U	Fluorures totaux	Nitrates + Nitrites	Nitrites
Échantillon initial lot1	<0,05	0,192	<0,01	<0,01	0,040	<0,01	0,019	< 0,01	< 0,02	<150	<5	<4
Échantillon carbonaté lot1	<0,05	0,232	<0,01	<0,01	<0,01	<0,01	0,028	< 0,01	< 0,02	<150	<5	<4
Échantillon initial lot 2	0,02	0,148	0,64	<0,01	0,062	<0,01	0,014	< 0,01	< 0,02	<150	<5	<4
Granulats lot 2	<0,05	0,228	0,206	<0,01	0,021	<0,01	0,058	< 0,01	< 0,02	<150	<5	<4
Échantillon initial lot 3	<0,05	0,121	0,395	<0,01	0,085	<0,01	0	< 0,01	< 0,02	<150	<5	<4
Granulats lot 3	<0,05	0,37	<0,01	<0,01	0,020	<0,01	0,06	< 0,01	< 0,02	<150	<5	<4
Normes RMD*	<b>5</b>	<b>100</b>	<b>500</b>	<b>0.5</b>	<b>5</b>	<b>0.1</b>	<b>5</b>	<b>1</b>	<b>2</b>	<b>150</b>	<b>1000</b>	<b>100</b>

RMD : Règlement des matières dangereuses

Les résultats d'analyses des lixiviats des échantillons solides montrent que les valeurs de concentration des éléments ne dépassent pas les valeurs de concentrations maximales d'un contaminant dans une matière liquide selon les critères de la norme du Règlement sur les matières dangereuses trouvées dans l'annexe IV.

Ceci est en faveur du procédé de granulation/carbonatation quant à la sécurité environnementale de l'utilisation des granulats de mâchefers comme produits de substitution.

L'effet de la carbonatation ou de la granulation n'a pas été significatif dans ces cas de figures vu que les valeurs des contaminants dans l'échantillon initial sont déjà trop faibles. Une première conclusion peut être émise que le procédé de carbonatation et granulation des cendres des mâchefers n'a pas amplifié les concentrations des contaminants au niveau du produit obtenu. Ceci est dit tout en tenant compte de la sensibilité de l'appareil de mesure (pour les analyses ICP-AES, les limites de détections des éléments Hg et U sont faibles).

Bien que les teneurs de métaux qualifiant le matériel de dangereux étaient inférieurs aux normes admissibles selon les réglementations de la province, la mobilité de certains métaux restait problématique comme mentionné dans les travaux de (Gunning et al., 2010).

Même si les caractéristiques de dangerosité selon le RMD ne sont pas dépassés, cela ne signifie pas que la matière résiduelle peut être utilisée sans restriction ni analyses supplémentaires (GVMRIND, 2002).

Un suivi rigoureux doit être réalisé quant à la lixiviation des métaux présents dans les mâchefers échantillonnés sur différentes périodes de temps.

Après validation de la non dangerosité du matériel brut et des granulats formés dans un premier temps, des critères d'admissibilité d'utilisation seront validés par les guides de valorisation et de direction des politiques du service des matières résiduelles du Ministère de l'Environnement du Québec.

### **6.7.2 Classification des mâchefers et des granulats confectionnés**

La caractérisation des granulats produits dans ce projet s'est arrêtée aux tests de lixiviation TCLP qui ont confirmés que le résidu est non dangereux selon le RMD. Pour l'instant, les seules utilisations possibles de ses granulats sont des applications de catégorie III selon le guide de valorisation de matières résiduelles inorganiques non dangereuses de source industrielle comme matériau de construction comme mentionné dans la section 2.6. Cette classification directe selon la catégorie III est régie selon les valeurs en mg/kg des métaux présents dans l'échantillon et qui prétend leur utilisation même si les concentrations des métaux soient supérieures aux valeurs limites du critère C du règlement sur la protection et la réhabilitation des terrains.

D'autres tests de mobilité seront à envisager pour une caractérisation plus exhaustive des granulats à savoir le test à l'eau, le test à l'acide acétique et donc une éventuelle utilisation des granulats selon les catégories I et II.

La classification selon les catégories est régie principalement par les taux de lixiviation du matériel utilisé, son contenu en carbone organique, et sa granulométrie. Selon l'annexe VII.A), d'amples détails de caractérisation et de classification sont détaillés dans les schémas décisionnels trouvés la figure du guide de valorisation.

Chaque catégorie d'utilisation englobe certains critères pour des utilisations ultérieures. Afin d'évaluer la qualité environnementale du matériel, des tests laboratoires sont réalisés afin d'extrapoler le comportement des mâchefers dans l'environnement. Selon le guide de valorisation, les différentes utilisations des granulats confectionnés selon les trois catégories sont présentées dans l'annexe VII.B).

Comme mentionné précédemment, après la validation de la non-dangérosité des mâchefers bruts et des granulats confectionnés selon le RMD (2021), des essais laboratoire préliminaires ont été réalisés sur un échantillon de mâchefers de chaque lot afin de d'établir une première caractérisation et donner des perspectives d'améliorations pour les travaux futurs.

### **6.7.2.1 Vérification du pourcentage de carbone organique total COT**

Dans un premier temps, la détermination du pourcentage de carbone organique total sert à affirmer que la matière résiduelle ne contient pas de quantité significative de matière organique susceptible d'entraîner sa biodégradation GVMRIND (2002).

« Bien que la présence de matière organique ne constitue pas une problématique environnementale, le promoteur devra en tenir compte afin d'éviter une biodégradation pouvant nuire à la pérennité de l'ouvrage, ce qui entraînerait une problématique environnementale. Le carbone organique total servira d'élément déclencheur à des études au cas par cas pour réintégrer la procédure. Le résultat sera exprimé en pourcentage de carbone organique total contenu dans la matière résiduelle » GVMRIND (2002).

L'analyse du carbone organique total a été réalisé sur des fractions d'échantillons en provenance des 3 lots. Chaque portion a été broyée à 700 rpm pendant une minute et tamisée. La fraction <150µm a été utilisée pour les analyses CHN.

1 à 2 mg d'échantillon a été mis dans une capsule en argent de 5 mm de diamètre et 9mm de hauteur, humidifié par l'eau ultra pure puis acidifié par les gaz HCl. Les capsules d'argent ouvertes contenant les échantillons sur une plaque de plastique munie de petits puits numérotés. La plaque est ensuite placée dans un dessiccateur de verre hermétique en présence du bécher contenant le HCl. Les échantillons sont exposés à la vapeur de HCl pendant 4h à température ambiante. La plaque contenant les échantillons est par la suite retirée et placée dans une étuve pendant 1h à 50°C afin d'éliminer les résidus du HCl et d'eau. Les capsules sont par la suite fermées et placées dans l'analyseur CHN.

Les résultats des analyses CHN des échantillons des 3 lots présentent un maximum de 1% et un minimum de 0,2% de carbone organique total.

Selon le guide de valorisation, les matériaux ayant un pourcentage de carbone organique total supérieur à 1% sont considérés comme matériaux contaminés. Dans ce cas, une étude spécifique doit être réalisée en aval afin de réintégrer les matériaux confectionnés dans le procédé de classification.

Si le taux du COT dépasse 1%, la seule exception possible d'utilisation est un enrobé de bitume, étant donné que ce dernier contient déjà, par nature, des composés organiques., Une étude spécifique sera nécessaire pour cette utilisation afin d'évaluer la nouvelle

formulation de bitume qui en résultera et de vérifier sa compatibilité (type et teneur en composés organiques) avec les formulations standards GVMRIND (2002).

#### **6.7.2.2 Vérification du pourcentage de soufre**

Le pourcentage de soufre est entre 0,3 et 0,5 % dans les échantillons de mâchefers.

Si les taux de soufre sont supérieurs à 0,2% dans l'échantillon initial, un traitement préalable est à envisager. Vu qu'à cette limite, un échantillon est caractérisé comme potentiellement générateur d'acide.

Les pourcentages du soufre varient d'un lot à un autre et frôlent des fois les limites admissibles par les réglementations. Il est donc recommandé d'investiguer la stabilité du soufre dans l'échantillon initial et dans la matrice des granulats confectionnés.

Dans certains cas et selon les lots d'échantillon, les taux de quelques éléments frôlent les limites admissibles citées dans le guide de valorisation. D'où la nécessité de la réalisation de ces analyses de caractérisation à chaque réception de lot afin de s'assurer de l'admissibilité de l'utilisation des échantillons selon les catégories énumérées.



## 7 CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

---

Ce projet a visé la formulation d'agrégats valorisables à partir des déchets d'incinération qui sont à la base enfouis dans des sites d'enfouissements. Les cendres d'incinération utilisées appelées aussi mâchefers étaient en provenance de la fosse à mâchefers de l'incinérateur de la ville de Québec. Pour la formulation de structures valorisables à partir des mâchefers, des essais de granulation et de couplage granulation- carbonatation ont été menés à l'échelle laboratoire durant ce projet.

La réalisation des différents essais de granulation des mâchefers a conduit à la formation des granulats de diverses tailles et formes qui se prêtent à des utilisations comme granulats de substitution dans les travaux de génie civil. La présente étude a permis d'avoir des rendements de granulation des mâchefers comparables aux études antérieures pour la confection de granulats légers.

En effet, une large gamme de granulats de différents diamètres compris entre 2,5 et 35mm, de résistance à la compression pour un temps de cure à température ambiante de 0,35 allant jusqu'à 7 MPa, d'une densité apparente  $< 2000 \text{ Kg/m}^3$ , ont été générés lors des différents essais réalisés.

L'étape de broyage a été optimisée lors du prétraitement des lots d'échantillons. Les paramètres opératoires ont été optimisés au cours des essais de granulation afin de déterminer un intervalle d'étude comme suit : 9 à 12% de ciment, un minimum d'eau de 15% par rapport à la masse totale des réactifs, 20 à 45 de rotation du tambour par minute et 30 minutes de temps maximal de réaction. Le choix des conditions opératoires repose essentiellement sur la nature de l'échantillon initial. Un broyage à 700 rpm pendant une minute de la fraction 1-4 mm de l'échantillon brute et à 700rpm pendant 20 secondes de la fraction  $< 1\text{mm}$  sera recommandé pour le bon déroulement de la réaction de granulation. Le ciment portland a joué un rôle de liant pour les granulats confectionnés assurant le maintien des liaisons entre les particules et ceci en présence de l'eau. Des tests de résistance à la compression, capacité d'absorption d'eau et de calcul de densité apparente, ont été réalisés au cours de ce projet afin de caractériser les granulats confectionnés.

Les essais de carbonatation ont été réalisés afin d'évaluer la capacité de séquestration de CO<sub>2</sub> dans la matrice des mâchefers. Cependant, les rendements des essais de carbonatation réalisés à température ambiante seront à considérer dans des travaux futurs en optimisant les conditions opératoires vu que la capacité de séquestration du CO<sub>2</sub> n'a pas dépassé 2g/kg d'échantillon.

Comme perspectives des travaux futurs, la cinétique de captation de CO<sub>2</sub> peut être étudiée comme le cas des expériences de carbonatation de Baciocchi et al. (2009) menées pour un temps de réaction de 10 min à 48h afin d'en tirer l'optimal de rendement de carbonatation. La minéralogie de l'échantillon de mâchefers doit être aussi prise en considération dans les travaux futurs afin de mieux comprendre la réactivité du CO<sub>2</sub> avec le calcium présent dans l'échantillon (Gunning et al., 2010).

Aussi, des améliorations restent possibles au niveau des conditions opératoires appliquées lors de la granulation et le couplage carbonatation- granulation.

Les modifications de la porosité et de la morphologie et microstructure du noyau et de la couche externe des granulés résultant du traitement combiné granulation-carbonatation fera l'objet d'une enquête (Morone et al., 2014).

Les essais de lixiviation de l'échantillon initial et des granulats formés sont réalisés afin de s'assurer que les limites admissibles par la norme mise en vigueur de la province ne sont pas dépassées et ainsi assurer la sécurité de l'utilisation de ces agrégats dans de nombreuses applications géotechniques. Cependant, il est recommandé de contrôler l'effet de la granulation sur la lixiviation du soufre dont son pourcentage est supérieur à 0,4% dans l'échantillon initial. D'après les résultats des essais de caractérisation réalisés, et selon le contexte québécois, une première classification d'utilisation des granulats selon la catégorie III du guide de valorisation des matières résiduelles inorganiques non dangereuses de source industrielle comme matériau de construction GVMRIND (2002) peut être réalisée.

Pour de meilleurs résultats de caractérisation des granulats formés, des tests peuvent être envisagés comme les tests de d'abrasion et de résistance à l'usure, respectivement appelés Los Angeles et micro-Deval, et des tests d'altération afin de mieux évaluer l'adéquation l'utilisation des granulats confectionnés aux normes environnementales des politiques provinciales en vigueur.

En ce qui concerne les deux objectifs définis au début du projet :

Au volet économique, environ 60% des mâchefers traités ont été valorisés par granulation dont 25% de l'échantillon brut séché et tamisé (<1mm) et 35% de l'échantillon séché, tamisé et broyé. Les 40% des mâchefers traités restant (imbrulés, ferrailles et reste du broyage) peuvent être valorisés dans les trottoirs, enrobés de bitume et remblais sous-couche de route.

Au volet écologique concernant l'impact sur l'environnement, les essais de granulation des mâchefers assurent la diminution des quantités de déchets dédiés à l'enfouissement et qui pourront être nuisibles pour le sol à long terme. La séquestration du CO<sub>2</sub> dans les mâchefers afin d'assurer d'une part la double valorisation des déchets gazeux et solides et d'autre part la réduction des émissions du CO<sub>2</sub> sera à optimiser dans les travaux de valorisation futurs.

Les perspectives de ce projet porteront sur

- L'optimisation de la réaction de combinaison carbonatation/granulation des mâchefers en phase aqueuse,
- L'incorporation des granulats confectionnés dans les mortiers de béton et comparaison des performances avec les granulats usuels,
- L'évaluation du coût global du projet par l'établissement d'une étude technico-économique afin de voir la rentabilité du projet,
- L'utilisation d'autres types de liants ayant moins d'impact négatif sur l'environnement.

Les efforts des recherches déployés, concernant la valorisation des déchets industriels essentiellement issus des activités anthropiques, sont en perpétuel développement afin d'aboutir à des nouveaux matériaux qui peuvent être comme alternative pour les matériaux usuels. Les nouveaux matériaux seront inoffensifs pour l'homme et pour l'environnement et dont la technique doit de préférence être plus économique que l'enfouissement.

Ainsi, la préservation de l'environnement requiert avant tout, un certain degré de conscience collective afin de diminuer toute activité néfaste touchant l'écosystème et qui aura certainement une répercussion sur les générations futures.

Alors, préservons notre environnement, c'est notre seule richesse !



## 8 RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

---

- Abdulmatin A, Tangchirapat W & Jaturapitakkul C (2018) An investigation of bottom ash as a pozzolanic material. *Construction and Building Materials* 186:155-162.
- A.I.Fernández RdV-ZJFJMCM (2013) Aggregate material formulated with MSWI bottom ash and APC fly ash for use as secondary building material. *Waste management* 33(3).
- Arandigoyen M, Bicer-Simsir B, Alvarez JI & Lange DA (2006) Variation of microstructure with carbonation in lime and blended pastes. *Applied surface science* 252(20):7562-7571.
- Araújo DF, Boaventura GR, Viers J, Mulholland DS, Weiss D, Araújo D, Lima B, Ruiz I, Machado W & Babinski M (2017) Ion exchange chromatography and mass bias correction for accurate and precise Zn isotope ratio measurements in environmental reference materials by MC-ICP-MS. *Journal of the Brazilian Chemical Society* 28:225-235.
- Arslan H & Baykal G (2006) Utilization of fly ash as engineering pellet aggregates. *Environmental Geology* 50(5):761-770.
- Baclocchi R, Costa G, Di Bartolomeo E, Poletini A & Pomi R (2009) The effects of accelerated carbonation on CO<sub>2</sub> uptake and metal release from incineration APC residues. *Waste Management* 29(12):2994-3003.
- Baclocchi R, Costa G, Lategano E, Marini C, Poletini A, Pomi R, Postorino P & Rocca S (2010) Accelerated carbonation of different size fractions of bottom ash from RDF incineration. *Waste Management* 30(7):1310-1317.
- Baclocchi R, Costa G, Librandi P, Stendardo S & Zingaretti D (2021) Assessment of a Carbonation-Based CO<sub>2</sub> Utilization Process for the Valorization of CFBC Ash. *Industrial & Engineering Chemistry Research* 60(29):10814-10825.
- Baude M, Colin A, Duvernoy J, Foussard A & Vailles C (2019) Chiffres clés du climat France, Europe et Monde. Edition 2020.
- Berber H, Tamm K, Leinus M-L, Kuusik R, Tõnsuaadu K, Paaver P & Uibu M (2020) Accelerated carbonation technology granulation of industrial waste: Effects of mixture composition on product properties. *Waste Management & Research* 38(2):142-155.
- Bobicki ER, Liu Q, Xu Z & Zeng H (2012) Carbon capture and storage using alkaline industrial wastes. *Progress in Energy and Combustion Science* 38(2):302-320.
- Bonfils B (2012) *Mécanismes et verrous de la carbonatation minérale du CO<sub>2</sub> en voie aqueuse*. Doctorat (Toulouse).
- Brück F, Schnabel K, Mansfeldt T & Weigand H (2018) Accelerated carbonation of waste incinerator bottom ash in a rotating drum batch reactor. *Journal of Environmental Chemical Engineering* 6(4):5259-5268.
- CCNUCC (1992) Convention-cadre des Nations Unies sur les changements climatiques. *New York* 9.

- Cho JS, Kim SM, Chun HD, Han GW & Lee CH (2011) Carbon dioxide capture with accelerated carbonation of industrial combustion waste. *International Journal of Chemical Engineering and Applications* 2(1):60.
- Cioffi R, Colangelo F, Montagnaro F & Santoro L (2011) Manufacture of artificial aggregate using MSWI bottom ash. *Waste management* 31(2):281-288.
- Colangelo F, Messina F & Cioffi R (2015) Recycling of MSWI fly ash by means of cementitious double step cold bonding pelletization: Technological assessment for the production of lightweight artificial aggregates. *Journal of Hazardous Materials* 299:181-191.
- Costa G, Baciocchi R, Poletti A, Pomi R, Hills CD & Carey PJ (2007) Current status and perspectives of accelerated carbonation processes on municipal waste combustion residues. *Environmental monitoring and assessment* 135(1):55-75.
- F. Bodéan LB, P. Piantone, A. Seron, S. Touzé (2006) Carbonatation minérale - Potentiels in et ex situ, analyse bilantielle et expérimentation en laboratoire. Rapport BRGM RP-54781-FR, 45 p., 15 fig., 1 tabl., 0 ann.
- Ghacham AB, Cecchi E, Pasquier L-C, Blais J-F & Mercier G (2015) CO<sub>2</sub> sequestration using waste concrete and anorthosite tailings by direct mineral carbonation in gas–solid–liquid and gas–solid routes. *Journal of environmental management* 163:70-77.
- Govender I (2016) Granular flows in rotating drums: A rheological perspective. *Minerals Engineering* 92:168-175.
- GIEC (2014) GIEC, 2014: Changements climatiques 2014: Rapport de synthèse. Contribution des Groupes de travail I, II et III au cinquième Rapport d'évaluation du Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat [Sous la direction de l'équipe de rédaction principale, R.K. Pachauri et L.A. Meyer]. GIEC, Genève, Suisse, 161 p.
- Gunning PJ, Hills CD & Carey PJ (2010) Accelerated carbonation treatment of industrial wastes. *Waste management* 30(6):1081-1090.
- Guilbault O (2013) *Gestion comparée des mâchefers au Québec et dans d'autres juridictions*. Maîtrise (Université de Sherbrooke). 65 p
- GVMRIND (2002) Guide de valorisation des matières résiduelles inorganiques non dangereuses de source industrielle comme matériau de construction. (Ministère de l'environnement du Québec).
- Hiramatsu Y & Oka Y (1966) Determination of the tensile strength of rock by a compression test of an irregular test piece. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences & Geomechanics Abstracts*. Elsevier, p 89-90.
- Hoffman GL (1996) Methods of analysis by the US Geological Survey National Water Quality Laboratory; preparation procedure for aquatic biological material determined for trace metals. (US Geological Survey: Branch of Information Services [distributor]).
- Huijgen WJ, Witkamp G-J & Comans RN (2005) Mineral CO<sub>2</sub> sequestration by steel slag carbonation. *Environmental science & technology* 39(24):9676-9682.
- IPCC (2005) IPCC Special Report on Carbon Dioxide Capture and Storage. (Intergovernmental Panel on Climate Change), p 40.

- Iveson S & Litster J (1998) Growth regime map for liquid-bound granules. *AIChE journal* 44(7):1510-1518.
- Jean-Baptiste P & Ducroux R (2003) Potentiel des méthodes de séparation et stockage du CO<sub>2</sub> dans la lutte contre l'effet de serre. *Comptes Rendus Geoscience* 335(6-7):611-625.
- Kaibouchi S, Broc J-S, Blanc D, Germain P & Moszkowicz P (2006) Carbonatation des mâchefers d'incinération d'ordures ménagères: étude pilote et modélisation des effets thermiques. *Déchets sciences & techniques* (41):20-24.
- Kane D & Solutions L (2015) Carbon sequestration potential on agricultural lands: a review of current science and available practices. *Association with: National Sustainable Agriculture Coalition Breakthrough Strategies and Solutions, LLC.*
- La Plante EC, Mehdipour I, Shortt I, Yang K, Simonetti D, Bauchy M & Sant GN (2021) Controls on CO<sub>2</sub> Mineralization Using Natural and Industrial Alkaline Solids under Ambient Conditions. *ACS Sustainable Chemistry & Engineering* 9(32):10727-10739.
- Lackner KS, Wendt CH, Butt DP, Joyce Jr EL & Sharp DH (1995) Carbon dioxide disposal in carbonate minerals. *Energy* 20(11):1153-1170.
- Lam CH, Ip AW, Barford JP & McKay G (2010) Use of incineration MSW ash: a review. *Sustainability* 2(7):1943-1968.
- Lecomte F, Broutin P & Lebas E (2009) *Le captage du CO<sub>2</sub>: Des technologies pour réduire les émissions de gaz à effet de serre*. Editions Technip, France
- Litster J & Ennis B (2004) *The science and engineering of granulation processes*. Springer Science & Business Media,
- Mazzella A, Errico M & Spiga D (2016) CO<sub>2</sub> uptake capacity of coal fly ash: Influence of pressure and temperature on direct gas-solid carbonation. *Journal of Environmental Chemical Engineering* 4(4):4120-4128.
- MELCC (2021) Inventaire québécois des émissions de gaz à effet de serre en 2019 et leur évolution depuis 1990. Édit Climatiques MDLEEDLLCLC).
- Morone M, Costa G, Poletini A, Pomi R & Baciocchi R (2014) Valorization of steel slag by a combined carbonation and granulation treatment. *Minerals Engineering* 59:82-90.
- Moutenet J-P, Comeau F-A & Malo M (2012) État de la situation des projets de séquestration géologique du CO<sub>2</sub> à travers le monde à la fin 2012: Rapport. (INRS, Centre Eau Terre Environnement, Québec).
- Olajire AA (2013) A review of mineral carbonation technology in sequestration of CO<sub>2</sub>. *Journal of Petroleum Science and Engineering* 109:364-392.
- Pasquier L-C (2014) *Procédé de piégeage du CO<sub>2</sub> industriel par carbonatation minérale de résidus miniers silicatés (serpentine) et valorisation des sous-produits*. Doctorat (Université du Québec, Institut national de la recherche scientifique). 226 p
- Petit Y (2018) Rapport introductif «La lutte contre le réchauffement climatique après l'Accord de Paris: quelles perspectives?». [Vertigo] *La revue électronique en sciences de l'environnement* 18(1).

- Polettini A, Pomi R, Sirini P & Testa F (2001) Properties of Portland cement—stabilised MSWI fly ashes. *Journal of Hazardous Materials* 88(1):123-138.
- Quina MJ, Bordado JC & Quinta-Ferreira RM (2008) Treatment and use of air pollution control residues from MSW incineration: an overview. *Waste Management* 28(11):2097-2121.
- Rahmouni I, Promis G, Beji H, R'mili A & Limam O (2016) Valorisation de déchets d'incinérateur dans la confection de bétons de granulats carbonatés.
- Reddy KJ, John S, Weber H, Argyle MD, Bhattacharyya P, Taylor DT, Christensen M, Foulke T & Fahlsing P (2011) Simultaneous capture and mineralization of coal combustion flue gas carbon dioxide (CO<sub>2</sub>). *Energy Procedia* 4:1574-1583.
- REIMR (2012) Guide d'application du Règlement sur l'enfouissement et l'incinération de matières résiduelles (c.Q-2,r.19).(Direction des matières résiduelles et des lieux contaminés Service des matières résiduelles Québec ).
- RMD (2021) Règlement sur les matières dangereuses in (*chapitre Q-2, a. 31, 46, 70.19, 115.27, 115.34 et 124.1*), Édit L'environnement LSLQD Québec).
- Sanna A, Uibu M, Caramanna G, Kuusik R & Maroto-Valer M (2014) A review of mineral carbonation technologies to sequester CO<sub>2</sub>. *Chemical Society Reviews* 43(23):8049-8080.
- Schafer ML, Clavier KA, Townsend TG, Kari R & Worobel RF (2019) Assessment of the total content and leaching behavior of blends of incinerator bottom ash and natural aggregates in view of their utilization as road base construction material. *Waste management* 98:92-101.
- Schnabel K, Brück F, Mansfeldt T & Weigand H (2021) Full-scale accelerated carbonation of waste incinerator bottom ash under continuous-feed conditions. *Waste Management* 125:40-48.
- Schreurs J, Van der Sloot H & Hendriks C (2000) Verification of laboratory–field leaching behavior of coal fly ash and MSWI bottom ash as a road base material. *Waste Management* 20(2-3):193-201.
- Shou-WeiJian X-GY-GQ-BX-B (2012) Utilization of municipal solid waste incineration bottom ash in blended cement. *Journal of Cleaner Production* 32:96-100.
- Sipilä J, Teir S & Zevenhoven R (2008) Carbon dioxide sequestration by mineral carbonation: Literature review update 2005–2007 , Åbo Akademi University Faculty of Technology Heat Engineering Laboratory. *Report Vt* 1:2008.
- Turri L (2017) *Stockage du CO<sub>2</sub> par carbonatation minérale de l'olivine: étude du procédé global pour la valorisation des produits de la réaction et la séparation des particules de chromite par flottation*, Génie des procédés. Université de Lorraine (NNT : 2017LORR0067)
- Unies N (1992) Convention-cadre des Nations Unies sur les changements climatiques. New York 9
- Vali KS & Murugan SB (2020) Effect of different binders on cold-bonded artificial lightweight aggregate properties. *Advances in Concrete Construction* 9(2):183-193.
- Viry E, Tran L-H, Pasquier L-C, Blais J-F & Mercier G (2021) Valorization of apatite mining flotation residues by the manufacture of artificial aggregates. *Resources, Conservation and Recycling* 171:105605.

Zhang X, Wu K & Yan A (2004) Carbonation property of hardened binder pastes containing super-pulverized blast-furnace slag. *Cement and Concrete Composites* 26(4):371-374.

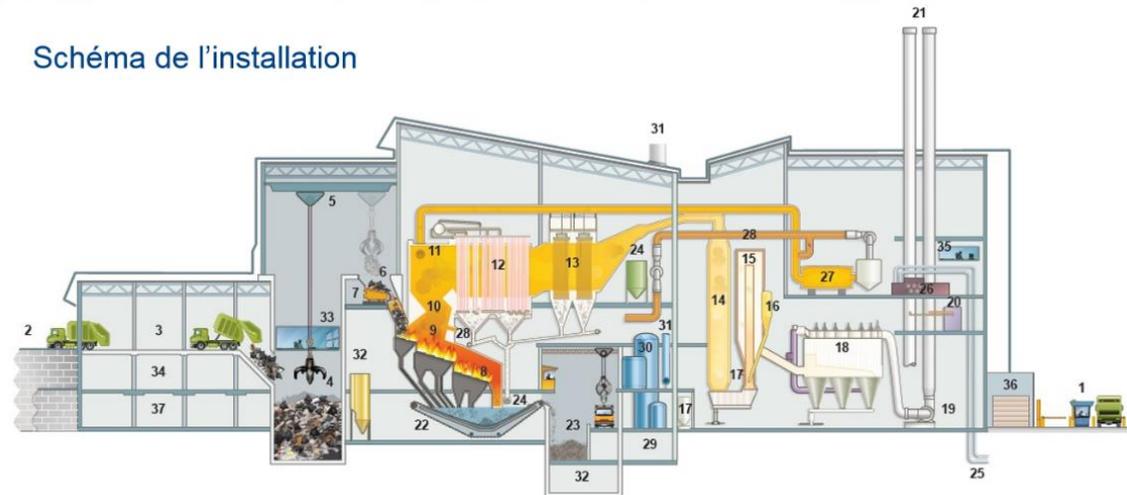
### **Sitographie**

Ville de Quebec, 2021, [ville.quebec.qc.ca](http://ville.quebec.qc.ca) (novembre 2021)

Carbon 8 System, Carbon8 ,[c8s.co.uk/](http://c8s.co.uk/) (mars 2021)

## 8 ANNEXES

### ANNEXE I : Schéma de l'incinérateur de la ville de Québec

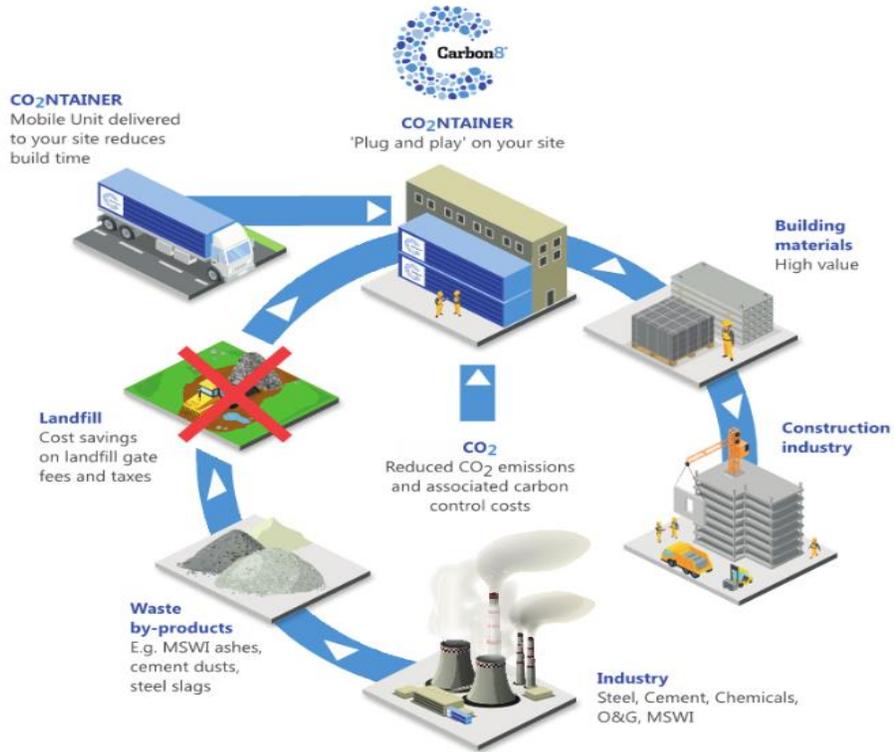


- |   |  |
|---|--|
| 1. Poste de pesés et détection radiologique | 20. Surveillance continue des émissions atmosphériques |
| 2. Rampes                                   | 21. Cheminée   |
| 3. Quai de déchargement                     | 22. Extraction des cendres de grilles (mâchefers)      |
| 4. Fosse à déchets                          | 23. Fosses à mâchefers                                 |
| 5. Pont roulant                             | 24. Récupération des cendres volantes                  |
| 6. Trémie d'alimentation                    | 25. Tuyauterie des boues épaissies (STB)               |
| 7. Table vibrante                           | 26. Filtre à bandes (STB)                              |
| 8. Grilles d'incinération                   | 27. Séchoir  |
| 9. Chambre de combustion                    | 28. Retour des gaz humides (buées)                     |
| 10. Injection des boues séchées             | 29. Bassin d'eau de procédé                            |
| 11. Prélèvement des gaz chauds              | 30. Traitement de l'eau des chaudières                 |

- |                                |   |
|--------------------------------|---|
| 12. Chaudière                  | 31. Réseau de vapeur                    |
| 13. Électrofiltre              | 32. Traitement des effluents            |
| 14. Tour de refroidissement    | 33. Salle de commande de l'incinérateur |
| 15. Réacteur                   | 34. Atelier mécanique et magasin        |
| 16. Injection de chaux         | 35. Salle de commande (STB)             |
| 17. Injection de charbon actif | 36. Expédition de boues                 |
| 18. Dépoussiérier à manches    | 37. Garage                              |
| 19. Ventilateur de tirage      |   |

(Ville.quebec.qc.ca).

## ANNEXE II : Processus de carbonatation sur site du « Carbon8 Systems »



Carbon 8 System, Carbon8 ,c8s.co.uk

### Annexe III : Résultats d'analyses ICP-AES en mg/L des six fractions granulométriques du lot 1

	Al	As	Ba	Ca	Cd	Co	Cr	Cu	Fe	K	La	Mg
<b>F1a</b>	94,26	0,06	1,20	126,43	0,01	0,01	0,32	2,63	50,56	19,39	0,02	16,67
<b>F1b</b>	82,69	0,03	1,11	112,62	0,01	0,07	0,28	2,04	43,10	17,67	0,03	14,84
<b>F1c</b>	88,61	0,04	1,12	119,55	0,01	0,05	0,32	4,04	47,57	18,67	0,03	15,91
<b>m</b>	<b>88,52</b>	<b>0,04</b>	<b>1,14</b>	<b>119,53</b>	<b>0,01</b>	<b>0,05</b>	<b>0,31</b>	<b>2,91</b>	<b>47,08</b>	<b>18,58</b>	<b>0,03</b>	<b>15,81</b>
<b>F2a</b>	69,83	-	0,96	106,82	0,01	0,05	0,42	1,90	41,08	19,05	0,03	11,99
<b>F2b</b>	75,07	-	1,04	113,54	0,02	0,05	0,38	2,21	43,04	20,29	0,03	12,73
<b>F2c</b>	70,13	0,06	0,95	105,50	0,01	0,05	0,28	1,84	40,05	18,97	0,03	11,78
<b>m</b>	<b>71,68</b>	<b>0,06</b>	<b>0,98</b>	<b>108,62</b>	<b>0,01</b>	<b>0,05</b>	<b>0,36</b>	<b>1,98</b>	<b>41,39</b>	<b>19,44</b>	<b>0,03</b>	<b>12,16</b>
<b>F3a</b>	64,91	-	0,96	88,76	0,01	0,04	0,55	1,77	39,40	19,52	0,03	9,71
<b>F3b</b>	74,35	0,08	1,11	102,51	0,01	0,05	0,64	2,08	46,12	22,48	0,04	11,21
<b>F3c</b>	64,99	0,10	0,98	89,33	0,01	0,03	0,56	2,11	39,51	20,13	0,04	9,77
<b>m</b>	<b>68,08</b>	<b>0,09</b>	<b>1,02</b>	<b>93,53</b>	<b>0,01</b>	<b>0,04</b>	<b>0,58</b>	<b>1,98</b>	<b>41,68</b>	<b>20,71</b>	<b>0,03</b>	<b>10,23</b>
<b>F4a</b>	64,71	-	1,09	102,02	0,01	0,11	0,37	2,36	39,38	19,76	0,02	10,64
<b>F4b</b>	71,68	-	1,18	112,74	0,02	0,02	0,41	2,34	43,50	21,55	0,03	11,81
<b>F4c</b>	71,41	-	1,18	112,62	0,02	0,03	0,41	2,34	43,66	22,04	0,03	11,79
<b>m</b>	<b>69,26</b>	<b>-</b>	<b>1,15</b>	<b>109,13</b>	<b>0,02</b>	<b>0,06</b>	<b>0,40</b>	<b>2,34</b>	<b>42,18</b>	<b>21,12</b>	<b>0,03</b>	<b>11,41</b>
<b>F5a</b>	60,86	-	1,03	102,85	0,02	0,04	0,50	2,02	41,69	17,50	0,02	10,85
<b>F5b</b>	68,44	-	1,16	115,78	0,03	0,05	0,56	2,19	46,49	19,75	0,03	12,16
<b>F5c</b>	67,29	-	1,15	114,13	0,02	0,03	0,54	2,24	45,77	19,90	0,03	11,98
<b>m</b>	<b>65,53</b>	<b>-</b>	<b>1,11</b>	<b>110,92</b>	<b>0,02</b>	<b>0,04</b>	<b>0,53</b>	<b>2,15</b>	<b>44,65</b>	<b>19,05</b>	<b>0,03</b>	<b>11,66</b>
<b>F6a</b>	65,67	-	1,37	173,62	0,03	0,11	0,42	1,75	45,56	18,14	0,03	16,33
<b>F6b</b>	58,33	-	1,16	152,58	0,03	0,02	0,31	1,73	39,90	16,74	0,05	13,98
<b>F6c</b>	63,22	-	1,30	165,31	0,03	0,02	0,30	1,63	44,01	17,87	0,03	15,50
<b>m</b>	<b>62,41</b>	<b>-</b>	<b>1,27</b>	<b>163,84</b>	<b>0,03</b>	<b>0,05</b>	<b>0,35</b>	<b>1,70</b>	<b>43,16</b>	<b>17,59</b>	<b>0,04</b>	<b>15,27</b>

F : fraction granulométrique; a, b, c : Les triplicatas d'analyses; F1 : 2- 1mm; F2 : 1mm-600 µm; F3 : 600µm -500 µm; F4 : 500µm-300 µm; F5 : 300 -250µm; F6 : <250µm

### Annexe III : Résultats d'analyses ICP-AES en mg/L des six fractions granulométriques du lot 1 (suite)

	Mn	Mo	Na	Ni	P	Pb	S	Si	Sr	Ti	Zn	Zr
F1a	0,98		24,07	0,11	6,52	1,68	4,17	273,65	0,62	6,77	5,55	0,25
F1b	0,87	0,02	21,27	0,22	5,65	1,48	3,80	243,15	0,55	5,96	3,80	0,20
F1c	0,91	0,01	22,83	0,13	6,09	1,61	3,97	255,16	0,58	6,43	7,59	0,30
<b>m</b>	<b>0,92</b>	<b>0,01</b>	<b>22,72</b>	<b>0,15</b>	<b>6,08</b>	<b>1,59</b>	<b>3,98</b>	<b>257,32</b>	<b>0,58</b>	<b>6,39</b>	<b>5,65</b>	<b>0,25</b>
F2a	0,74	0,04	19,93	0,23	5,62	1,29	2,44	266,01	0,53	5,48	5,51	0,25
F2b	0,77	0,03	21,37	0,11	5,53	1,32	2,55	279,66	0,56	5,73	5,34	0,26
F2c	0,70	0,02	19,81	0,13	5,18	1,16	2,26	259,34	0,51	5,34	4,43	0,21
<b>m</b>	<b>0,74</b>	<b>0,03</b>	<b>20,37</b>	<b>0,16</b>	<b>5,44</b>	<b>1,26</b>	<b>2,42</b>	<b>268,34</b>	<b>0,54</b>	<b>5,52</b>	<b>5,09</b>	<b>0,24</b>
F3a	0,62	0,03	19,69	0,18	4,08	1,25	1,55	295,23	0,51	4,73	3,78	0,20
F3b	0,72	0,04	22,89	0,18	4,68	1,44	2,07	343,44	0,59	5,47	4,17	0,22
F3c	0,63	0,03	19,88	0,18	4,13	1,24	1,73	297,04	0,51	4,77	3,68	0,19
<b>m</b>	<b>0,66</b>	<b>0,03</b>	<b>20,82</b>	<b>0,18</b>	<b>4,30</b>	<b>1,31</b>	<b>1,78</b>	<b>311,90</b>	<b>0,53</b>	<b>4,99</b>	<b>3,88</b>	<b>0,20</b>
F4a	0,70	0,04	20,49	0,27	5,37	0,76	2,55	289,76	0,54	6,06	3,43	0,21
F4b	0,77	0,04	22,54	0,15	6,04	0,79	3,09	319,78	0,60	6,59	3,82	0,26
F4c	0,76	0,03	22,52	0,13	6,12	0,74	2,90	320,88	0,60	6,66	3,80	0,25
<b>m</b>	<b>0,74</b>	<b>0,03</b>	<b>21,85</b>	<b>0,18</b>	<b>5,84</b>	<b>0,76</b>	<b>2,85</b>	<b>310,14</b>	<b>0,58</b>	<b>6,44</b>	<b>3,68</b>	<b>0,24</b>
F5a	0,75	0,03	19,35	0,12	5,21	0,67	2,26	277,34	0,54	7,11	3,42	0,27
F5b	0,84	0,01	22,11	0,12	5,86	0,81	2,70	314,27	0,61	8,01	3,80	0,28
F5c	0,82	0,04	21,80	0,15	6,03	0,79	2,67	309,56	0,60	7,88	3,79	0,29
<b>m</b>	<b>0,80</b>	<b>0,03</b>	<b>21,09</b>	<b>0,13</b>	<b>5,70</b>	<b>0,76</b>	<b>2,54</b>	<b>300,39</b>	<b>0,58</b>	<b>7,67</b>	<b>3,67</b>	<b>0,28</b>
F6a	1,13	0,02	21,73	0,22	9,28	0,89	10,22	273,66	0,85	9,14	4,56	0,48
F6b	0,92	0,03	18,72	0,11	8,12	0,72	8,88	237,74	0,72	7,83	4,01	0,39
F6c	0,96	0,01	20,46	0,12	8,53	0,76	9,49	257,05	0,79	9,76	4,43	0,46
<b>m</b>	<b>1,00</b>	<b>0,02</b>	<b>20,31</b>	<b>0,15</b>	<b>8,64</b>	<b>0,79</b>	<b>9,53</b>	<b>256,15</b>	<b>0,79</b>	<b>8,91</b>	<b>4,33</b>	<b>0,44</b>

F : fraction granulométrique; a, b, c : Les triplicatas d'analyses; F1 : 2- 1mm; F2 : 1mm-600 µm; F3 : 600µm -500 µm; F4 : 500µm-300 µm; F5 : 300 -250µm; F6 : <250µm

### Annexe IV : Résultats d'analyses ICP-AES en mg/Kg des six fractions granulométriques du lot 1

	Al	As	Ba	Ca	Cd	Co	Cr	Cu	Fe	K	La	Mg
<b>F1a</b>	87035,91	57,70	1110,03	116736,30	12,66	12,33	296,02	2428,25	46685,38	17901,65	21,50	15389,41
<b>F1b</b>	86084,86	28,47	1156,04	117247,14	9,99	76,10	290,03	2127,67	44869,87	18393,76	35,09	15450,90
<b>F1c</b>	86228,19	37,81	1085,50	116335,32	12,16	48,42	314,38	3934,54	46287,84	18169,12	29,61	15484,16
<b>m</b>	86449,65	41,32	1117,19	116772,92	11,61	45,62	300,14	2830,15	45947,69	18154,85	28,74	15441,49
<b>F2a</b>	71409,17	0,00	984,81	109239,75	11,19	49,74	428,24	1940,98	42007,74	19476,05	28,89	12256,26
<b>F2b</b>	72328,73	0,00	1001,59	109393,61	16,36	46,05	361,38	2133,24	41466,59	19553,09	26,89	12261,24
<b>F2c</b>	73348,79	60,69	995,18	110344,92	13,54	47,32	294,42	1923,91	41888,62	19845,58	29,60	12324,90
<b>m</b>	72362,23	20,23	993,86	109659,43	13,70	47,70	361,35	1999,38	41787,65	19624,91	28,46	12280,80
<b>F3a</b>	65084,42	0,00	963,78	88996,38	11,85	37,39	553,24	1769,97	39503,86	19570,74	25,96	9739,41
<b>F3b</b>	64538,55	69,95	961,32	88981,13	12,61	43,40	557,18	1802,96	40038,51	19512,65	33,58	9733,97
<b>F3c</b>	64682,51	99,32	973,89	88905,34	11,75	25,48	555,55	2100,19	39326,56	20030,39	37,18	9722,19
<b>m</b>	64768,49	56,42	966,33	88960,95	12,07	35,43	555,32	1891,04	39622,98	19704,59	32,24	9731,86
<b>F4a</b>	63723,88	0,00	1070,92	100474,78	13,30	107,35	367,69	2322,08	38786,93	19456,99	22,13	10481,29
<b>F4b</b>	63906,19	0,00	1053,08	100516,31	13,76	20,59	364,75	2084,26	38786,79	19213,83	25,01	10532,28
<b>F4c</b>	64070,36	0,00	1062,42	101041,29	14,76	30,22	365,84	2096,59	39173,69	19773,82	26,40	10574,63
<b>m</b>	63900,15	0,00	1062,14	100677,46	13,94	52,72	366,09	2167,64	38915,80	19481,55	24,51	10529,40
<b>F5a</b>	61473,25	0,00	1041,48	103888,69	20,46	43,46	509,03	2037,42	42112,42	17679,68	20,62	10954,70
<b>F5b</b>	62090,68	0,00	1056,53	105033,32	22,68	45,27	506,82	1989,27	42172,27	17913,90	25,06	11028,41
<b>F5c</b>	61603,06	0,00	1050,20	104485,73	17,39	24,32	496,52	2051,35	41902,60	18218,86	26,33	10964,20
<b>m</b>	61722,33	0,00	1049,41	104469,25	20,18	37,68	504,12	2026,02	42062,43	17937,48	24,00	10982,44
<b>F6a</b>	58343,69	0,00	1215,37	154250,50	29,74	102,06	377,59	1555,72	40481,16	16117,69	28,46	14505,14
<b>F6b</b>	59123,84	0,00	1173,22	154654,22	28,20	16,57	312,85	1751,35	40438,92	16969,76	54,20	14167,85
<b>F6c</b>	58741,30	0,00	1203,94	153613,39	27,84	16,37	281,95	1510,70	40893,35	16608,64	27,22	14400,24
<b>m</b>	58736,28	0,00	1197,51	154172,70	28,59	45,00	324,13	1605,92	40604,48	16565,36	36,63	14357,74

F : fraction granulométrique; a, b, c : Les triplicatas d'analyses; F1 : 2- 1mm; F2 : 1mm-600 µm; F3 : 600µm -500 µm; F4 : 500µm-300 µm; F5 : 300 -250µm; F6 : <250µm

**Annexe IV : Résultats d'analyses ICP-AES en mg/Kg des six fractions granulométriques du lot 1**

	Mn	Mo	Na	Ni	P	Pb	S	Si	Sr	Ti	Zn	Zr
<b>F1a</b>	901,61	0,00	22223,13	99,79	6015,59	1549,64	3847,06	252660,89	572,88	6247,39	5127,06	231,79
<b>F1b</b>	910,07	18,92	22140,15	228,42	5877,37	1537,57	3956,90	253142,39	570,19	6206,18	3955,87	208,93
<b>F1c</b>	885,73	10,35	22214,47	121,97	5924,29	1565,81	3867,65	248298,53	563,26	6257,03	7382,79	290,75
<b>m</b>	899,14	9,76	22192,58	150,06	5939,08	1551,01	3890,54	251367,27	568,78	6236,87	5488,57	243,82
<b>F2a</b>	751,80	43,52	20377,71	239,57	5747,84	1321,68	2499,53	272032,77	537,78	5604,82	5637,70	259,05
<b>F2b</b>	739,21	29,74	20584,68	110,47	5323,64	1272,76	2457,16	269448,51	543,94	5519,65	5147,26	247,88
<b>F2c</b>	736,00	17,54	20722,52	140,40	5419,75	1213,28	2362,76	271260,06	538,39	5590,17	4630,60	217,86
<b>m</b>	742,33	30,26	20561,64	163,48	5497,08	1269,24	2439,82	270913,78	540,04	5571,55	5138,52	241,59
<b>F3a</b>	623,94	32,25	19745,81	178,97	4091,52	1256,57	1549,94	296028,24	506,84	4737,92	3788,97	200,32
<b>F3b</b>	628,76	34,59	19867,95	154,96	4064,96	1252,19	1794,61	298129,53	507,92	4751,26	3624,14	191,99
<b>F3c</b>	623,46	30,27	19785,05	176,90	4107,94	1229,66	1723,53	295633,23	505,34	4746,23	3658,17	184,22
<b>m</b>	625,39	32,37	19799,61	170,28	4088,14	1246,14	1689,36	296597,00	506,70	4745,14	3690,43	192,17
<b>F4a</b>	686,87	35,77	20179,75	264,88	5291,22	744,72	2507,46	285362,83	535,67	5968,27	3374,14	208,34
<b>F4b</b>	683,06	34,41	20093,99	134,93	5380,85	704,95	2752,70	285103,95	534,55	5876,26	3403,24	233,37
<b>F4c</b>	680,04	24,92	20209,51	116,92	5493,67	659,58	2603,33	287896,25	541,97	5973,87	3412,21	220,37
<b>m</b>	683,33	31,70	20161,08	172,24	5388,58	703,09	2621,16	286121,01	537,40	5939,47	3396,53	220,69
<b>F5a</b>	753,32	25,99	19543,75	123,71	5261,55	680,40	2282,32	280133,01	546,04	7183,45	3455,03	275,27
<b>F5b</b>	757,85	10,17	20058,03	110,39	5311,64	734,27	2446,65	285102,23	549,04	7270,67	3449,22	255,25
<b>F5c</b>	749,26	35,53	19960,10	136,31	5523,92	726,70	2444,06	283411,34	544,75	7210,98	3469,77	266,68
<b>m</b>	753,48	23,90	19853,96	123,47	5365,70	713,79	2391,01	282882,19	546,61	7221,70	3458,00	265,73
<b>F6a</b>	1007,86	19,39	19306,81	193,60	8245,59	793,40	9077,28	243136,26	750,98	8120,07	4049,34	430,71
<b>F6b</b>	927,97	25,91	18977,03	109,41	8228,90	730,07	8997,05	240963,56	732,75	7937,72	4061,63	399,12
<b>F6c</b>	893,28	8,40	19014,50	112,16	7929,39	704,45	8817,40	238859,80	738,70	9068,42	4118,64	423,41
<b>m</b>	943,03	17,90	19099,45	138,39	8134,63	742,64	8963,91	240986,54	740,81	8375,40	4076,54	417,75

## Annexe V : Résultats des analyses élémentaires de chaque lot d'échantillon

### Lot d'échantillon 1

	Al	Ba	Ca	Cd	Co	Cu	Fe	K	Mg	Mn	Na	Ni	P	Pb	S	Si	Ti	Zn
<b>Résultats ICP-AES (mg/L)</b>																		
É1	56,87	1,05	124,71	0,01	0,00	0,56	40,53	13,62	12,11	0,63	31,08	0,08	4,95	0,49	5,35	243,91	6,11	2,55
É2	68,37	0,90	125,67	0,01	0,00	0,48	68,51	16,26	16,69	0,72	25,62	0,30	6,45	1,42	5,58	260,01	9,94	3,96
É3	49,76	0,77	98,38	0,01	0,00	0,84	38,14	15,87	9,51	0,50	20,34	0,08	4,36	1,29	5,21	236,32	4,28	2,55
<b>Résultats en (mg/Kg)</b>																		
É1	54332,8	1007,4	119139,6	11,95	-	539,15	38719,58	13015,18	11564,8	603,3	29694,1	78,4	4726,4	469,3	5114,8	233011,6	5839,8	2436,0
É2	55940,6	735,9	102824,8	7,05	-	395,19	56055,35	13304,74	13654,0	585,1	20962,4	246,8	5280,8	1164,6	4568,6	212742,5	8134,8	3240,3
É3	51525,6	797,5	93988,9	14,26	-	867,19	39492,18	16437,82	9844,1	517,4	21062,7	85,6	4518,6	1335,5	5399,3	244703,5	4427,5	2641,6
<b>Conversion en % d'éléments</b>																		
É1	5,433	0,101	11,914	0,001	0,00	0,054	3,872	1,302	1,156	0,060	2,969	0,008	0,473	0,047	0,511	23,301	0,584	0,244
É2	5,594	0,074	10,282	0,001	0,00	0,040	5,606	1,330	1,365	0,059	2,096	0,025	0,528	0,116	0,511	23,301	0,584	0,244
É3	5,153	0,080	10,187	0,001	0,00	0,087	3,949	1,644	0,984	0,052	2,106	0,009	0,452	0,134	0,457	21,274	0,813	0,324
m	5,393	0,085	10,795	0,001	0,00	0,060	4,476	1,425	1,169	0,057	2,391	0,014	0,484	0,099	0,540	24,470	0,443	0,264
<b>% oxydes</b>																		
m	10,188	0,095	15,102	0,001	0,001	0,075	6,400	1,717	1,938	0,073	3,223	0,017	1,109	0,107	1,255	49,230	1,023	0,345

É : échantillon

m : moyenne

## Annexe V : Résultats des analyses élémentaires de chaque lot d'échantillon (suite)

### Lot d'échantillon 2

	Al	Ba	Ca	Cd	Co	Cu	Fe	K	Mg	Mn	Na	Ni	P	Pb	S	Si	Ti	Zn
<b>Résultats ICP-AES (mg/L)</b>																		
E1	32,99	0,51	55,32	0,01	0,01	0,51	19,24	9,75	5,79	0,34	10,76	0,08	3,05	0,32	2,57	142,18	3,15	1,76
E2	39,92	0,75	58,81	0,01	0,00	2,02	32,81	6,80	6,81	0,53	24,00	0,09	3,42	0,63	2,41	153,27	2,87	2,38
<b>Résultats en (mg/Kg)</b>																		
E1	57064,7	889,3	95676,1	11,8	-	880,7	33275,3	16857,8	10009,7	592,7	18603,4	130,5	5278,1	554,9	4448,8	245919,9	5440,8	3041,4
E2	62369,2	1171,4	91884,5	8,4	-	3156,8	51259,9	10618,1	10642,8	833,3	37506,6	136,9	5339,6	982,4	3772,5	239485,1	4486,0	3712,2
<b>Conversion en % d'éléments</b>																		
E1	5,71	0,09	9,57	0,00	0,00	0,09	3,33	1,69	1,00	0,06	1,86	0,01	0,53	0,06	0,44	24,59	0,54	0,30
E2	6,24	0,12	9,19	0,00	0,00	0,32	5,13	1,06	1,06	0,08	3,75	0,01	0,53	0,10	0,38	23,95	0,45	0,37
<b>% oxydes</b>																		
E1	10,78	0,10	13,39	0,00	0,00	0,11	4,76	2,03	1,66	0,08	2,51	0,02	1,21	0,06	1,11	52,60	0,91	0,38
E2	11,78	0,13	12,85	0,00	0,00	0,39	7,33	1,28	1,76	0,11	5,06	0,02	1,22	0,11	0,94	51,23	0,75	0,46
m	11,281	0,115	13,120	0,001	0,00	0,253	6,044	1,655	1,712	0,092	3,782	0,017	1,216	0,083	1,026	51,914	0,828	0,420

E1 : Échantillon <1mm

E2 : Échantillon broyé par le broyeur à disque

m : moyenne

## Annexe V : Résultats des analyses élémentaires de chaque lot d'échantillon (suite)

### Lot d'échantillon 3

	Al	Ba	Ca	Cd	Co	Cu	Fe	K	Mg	Mn	Na	Ni	P	Pb	S	Si	Ti	Zn
<b>Résultats ICP-AES (mg/L)</b>																		
E1	61,51	1,04	125,90	0,01	0,02	1,25	46,22	17,19	11,76	0,79	20,60	0,11	8,89	0,72	6,16	247,29	6,77	3,78
E2	30,57	0,46	51,60	0,01	0,00	1,23	26,30	7,34	5,42	0,50	12,30	0,05	4,07	0,48	2,13	108,72	2,77	1,26
<b>Résultats en (mg/Kg)</b>																		
E1	54180,1	912,5	110898,1	9,5	20,6	1105,0	40711,8	15140,3	10361,8	696,4	18142,1	95,3	7832,4	632,6	5423,6	217827,5	5961,5	3329,7
E2	61906,3	934,5	104505,2	10,8	3,2	2490,2	53273,7	14862,0	10980,1	1014,1	24902,5	109,3	8242,3	976,9	4322,5	220199,4	5619,2	2556,5
m	58043,2	923,5	107701,6	10,1	11,9	1797,6	46992,8	15001,2	10670,9	855,2	21522,3	102,3	8037,3	804,7	4873,1	219013,4	5790,3	2943,1
<b>Conversion en % d'éléments</b>																		
E1	5,42	0,09	11,09	0,00	0,00	0,11	4,07	1,51	1,04	0,07	1,81	0,01	0,78	0,06	0,54	21,78	0,60	0,33
E2	6,19	0,09	10,45	0,00	0,00	0,25	5,33	1,49	1,10	0,10	2,49	0,01	0,82	0,10	0,43	22,02	0,56	0,26
<b>% oxydes</b>																		
E1	10,23	0,10	15,51	0,00	0,00	0,14	5,82	1,82	1,72	0,09	2,45	0,01	1,79	0,07	1,35	46,59	0,99	0,41
E2	11,69	0,10	14,62	0,00	0,00	0,31	7,62	1,79	1,82	0,13	3,36	0,01	1,89	0,11	1,08	47,10	0,94	0,32
m	10,96	0,10	15,07	0,00	0,00	0,22	6,72	1,81	1,77	0,11	2,90	0,01	1,84	0,09	1,22	46,85	0,97	0,37

E1 : Échantillon <1mm

E2 : Échantillon broyé (1-4mm)

m : moyenne

**Annexe VI Valeurs des concentrations maximales d'un contaminant dans une matière liquide selon les critères de la norme du Règlement sur les matières dangereuses**

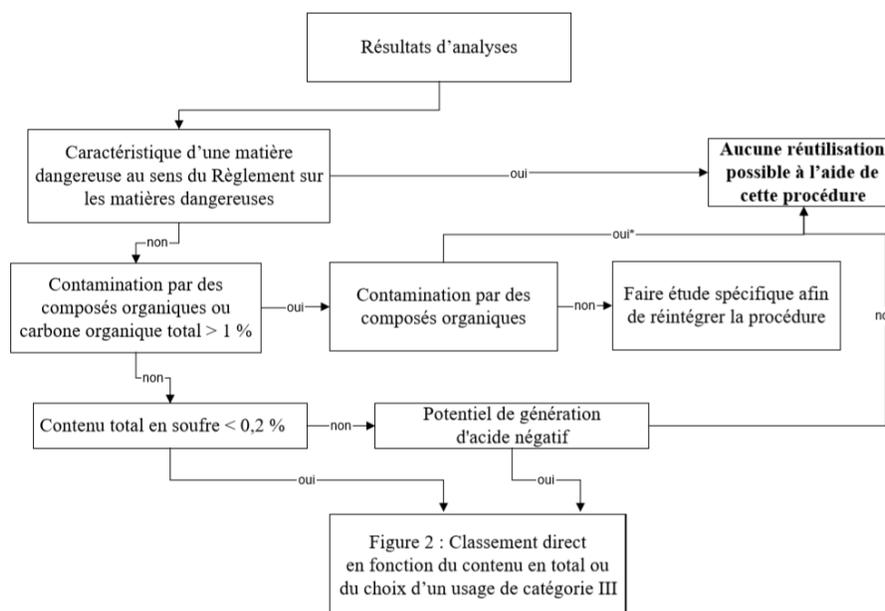
<b>Contaminants</b>	<b>Normes (mg/L) *</b>
Arsenic	5,0
Baryum	100
Bore	500
Cadmium	0,5
Cyanures totaux**	20
Chrome	5,0
Fluorures totaux	150
Mercure	0,1
Nitrate + nitrites	1 000
Nitrites	100
Plomb	5,0
Sélénium	1,0
Uranium	2,0

Les normes sont exprimées en milligrammes (mg) de contaminant par litre (L) de matière liquide ou de lixiviat de matière solide.

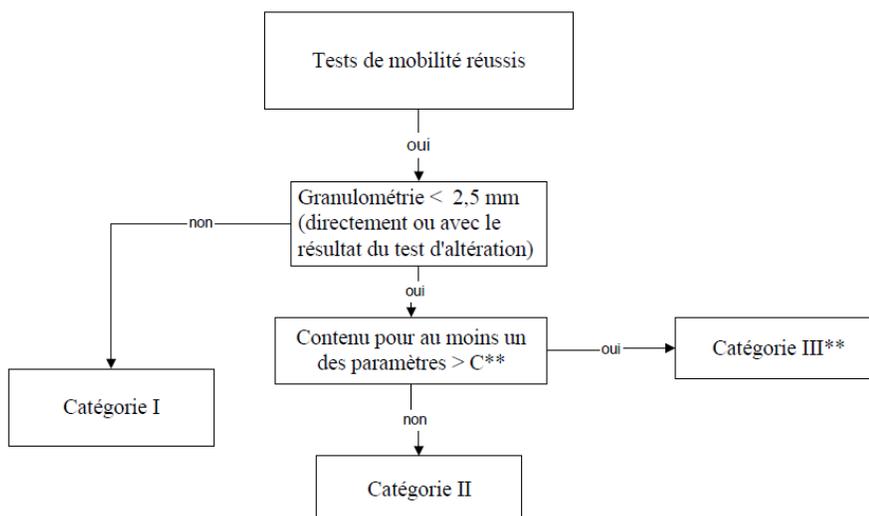
\*\* La norme pour les cyanures totaux ne s'applique qu'à une matière liquide.

## Annexe VII Extraits du guide de valorisation des matières résiduelles inorganiques non dangereuses de source industrielle comme matériau de construction

### A. Schéma décisionnel d'utilisation des matières résiduelles



### B. Classification selon les catégorie d'analyse I, II et III



**Annexe VII Extraits du guide de valorisation des matières résiduelles inorganiques non dangereuses de source industrielle comme matériau de construction**

C. Classification des utilisations selon les catégories de matériaux

UTILISATION	CATÉGORIES DE MATÉRIAUX		
	I	II	III
<b>1. Construction ou réparation de routes et de rues (y compris celles des secteurs résidentiels)</b>			
Sous-fondation	oui	oui	
Fondation – routes asphaltées	oui	oui	
Fondation – routes non asphaltées	oui		
Accotement asphalté	oui	oui	
Accotement non asphalté	oui		
Emprunt pour remblai et coussin	oui	oui	
Couche filtrante	oui	oui	
Couche anticontaminante	oui	oui	
Criblure	oui	oui	
Filler minéral	oui	oui	oui
Traitement de surface	oui	oui	oui
Enrobés à chaud	oui	oui	oui
Enrobés à froid	oui	oui	oui
Granulats pour coulis de scellement	oui	oui	oui
Béton maigre	oui	oui	oui
<b>2. Granulats pour abrasifs d'hiver</b>	oui		
<b>3. Construction sur des terrains résidentiels</b>			
Allée pour automobile (restriction supplémentaire : granulométrie > 5 mm)	oui		
<b>4. Construction sur des terrains commerciaux et industriels</b>	oui		
<b>5. Construction d'un dépôt à neige*</b>	oui	oui	
<b>6. Fabrication de béton</b>	oui	oui	oui
<b>7. Matière première dans la fabrication du clinker</b>	oui	oui	oui
<b>8. Matériel de recouvrement journalier de LES ou mensuel de DMS**</b>	oui	oui	oui
<b>9. Matériel d'infrastructure (routes) pour les LES</b>	oui	oui	
<b>10. Matériel de nettoyage (sablage) du béton et de l'acier</b>	oui	oui	oui
<b>11. Ballast de chemin de fer</b>	oui		

