

Etat de l'art des traitements des résidus d'épuration des fumées d'incinération d'ordures ménagères (REFIOM)

Aurore De Boom, bioingénieur, Marc Degrez, professeur

Université libre de Bruxelles (ULB), Service matières et matériaux, Equipe CREA-SURF, rue de l'Industrie 24, 1400 Nivelles - Belgique

Pour toute correspondance : Tél. : + 32 67 88 94 36 – adeboom@ulb.ac.be

Résumé

Les REFIOM correspondent aux cendres volantes et aux résidus d'épuration des fumées que génère l'incinération des ordures ménagères. Ces résidus sont considérés comme déchets dangereux en raison des concentrations trop élevées en différents sels, métaux et composés organiques. Aujourd'hui, la principale démarche en matière de traitement des REFIOM est de réduire au maximum leur impact sur l'environnement lors de leur mise en décharge. Certains traitements envisagent cependant la possibilité de valoriser une partie des REFIOM (les métaux ou sels extraits). Les procédés de traitement de REFIOM sont ici regroupés en trois catégories : les techniques physico-chimiques, biologiques et thermiques. Pour chaque technique, sont exposés le principe, les avantages et inconvénients ainsi que quelques exemples précis. Dans le contexte actuel de développement durable incluant la protection des ressources, il serait préférable d'utiliser les REFIOM plutôt que de les traiter en vue de leur seule mise en décharge. Cela nécessite des études approfondies sur les traitements possibles ainsi que sur les matériaux finaux, mais également une adaptation des législations.

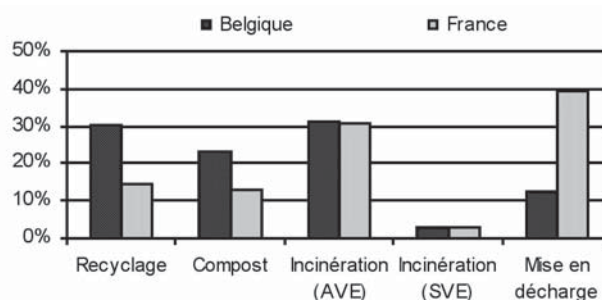
Mots clés : REFIOM, incinération, traitement

Introduction

En 2004, la production moyenne de déchets municipaux collectés en Europe des 15 s'élevait à 580 kg par habitant ; la France se situait dans cette moyenne (567 kg par habitant) alors que la Belgique présentait une production inférieure (469 kg par habitant) [21]. Ces déchets sont traités selon différents procédés : le recyclage, le compostage, l'incinération avec ou sans valorisation énergétique (AVE ou SVE) et, enfin, la mise en décharge. Comme le montre le Graphique 1, un peu plus de 30 % des déchets municipaux étaient incinérés (avec récupération énergétique) en France comme en Belgique en 2004.

L'incinération d'ordures ménagères (IOM) a souvent mauvaise presse : le panache blanchâtre s'échappant des longues cheminées inspire généralement la méfiance. Cependant, ces émissions atmosphériques sont extrêmement contrôlées et réglementées. De plus, l'incinération présente un avantage important : ce traitement réduit considérablement le volume des déchets que nous produisons chaque jour. Après combustion des déchets, il reste des résidus solides. Pour une tonne d'ordures ménagères incinérée, environ 250 kg de mâchefers sont produits au niveau du four et quelque 40 kg de résidus sont générés dans le système de traitement des fumées.

Aujourd'hui, ce sont ces solides qui retiennent l'attention. Dans plusieurs pays tels que l'Allemagne, la Belgique, la France, les Pays-Bas [70], les mâchefers (MIOM en abrégé) peuvent être valorisés, généralement après maturation, comme matériau de sous-fondation en voirie. Les résidus d'épuration des fumées (REFIOM) constituent le dernier résidu problématique des incinérateurs. En raison de leur composition en sels solubles, métaux et organiques, les REFIOM sont considérés comme déchets dangereux et doivent subir des traitements afin d'être placés en décharge pour déchets dangereux (classe 1) ou déchets inertes (classe 2) si le traitement le permet.



Graphique 1 : Traitement des déchets municipaux pour l'année 2004 [21]

Traitement de fumées d'incinération d'ordures ménagères et REFIOM

Afin de mieux comprendre ce qu'est un REFIOM, il convient de situer plus précisément les endroits de production de ces solides et dès lors, de présenter les différents appareillages que rencontrent les fumées sortant du four (voir Figure 1).

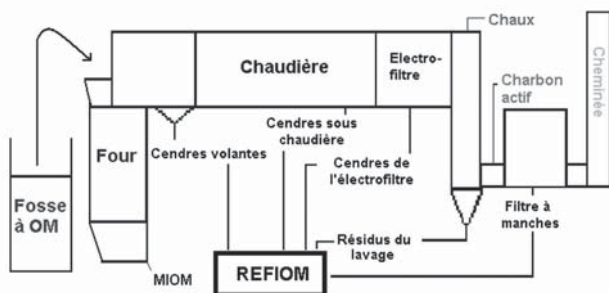


Figure 1 : Traitement des fumées et production de REFIOM dans un incinérateur d'ordures ménagères

La plupart des incinérateurs possèdent aujourd'hui une chaudière située en sortie du four, leur permettant de valoriser la chaleur produite lors de la combustion des déchets. Au niveau de cette chaudière, des particules sont arrêtées ; il s'agit des cendres sous chaudière. Ensuite, les fumées rencontrent l'installation de traitement proprement dite. Plusieurs appareillages peuvent constituer ce traitement. Tout d'abord, les fumées peuvent rencontrer un dépoussiéreur (l'électrofiltre). Vient alors un système de lavage, qui peut se présenter sous différentes formes (sec, semi-sec, semi-humide, humide). En fin de traitement, un filtre à manches est généralement placé afin de retenir les particules les plus fines (de l'ordre du μm). Un système de déNO_x (élimination des NO_x) peut être incorporé à la ligne de traitement. Du charbon actif peut également être injecté, en amont d'un système de dépoussiérage. Les différents résidus formant les REFIOM sont soit mélangés (Figure 1), soit collectés séparément comme en Allemagne [30].

En fonction du type de système choisi et de la succession des éléments le composant, les REFIOM présentent des caractéristiques différentes. Ceci constitue un élément important à prendre en compte lorsque l'on considère les REFIOM. D'une part, les REFIOM au sein d'un même incinérateur diffèrent selon le type d'installation dont ils proviennent ; d'autre part, des REFIOM issus d'un même élément de traitement de fumées peuvent présenter des différences d'un incinérateur à l'autre, du fait de l'agencement de l'ensemble du système de traitement de fumées, mais également des caractéristiques des ordures incinérées. Ceci rend l'étude de ces solides particulièrement délicate, puisqu'une conclusion tirée à partir d'expériences réalisées

sur un type de REFIOM ne s'avèrera pas forcément exacte pour un autre type de résidus.

Traitements actuels et futurs des REFIOM

Actuellement, les regards se tournent vers les résidus solides issus de l'incinération des ordures ménagères, et les esprits s'inquiètent de leur devenir, comme en témoignent des «reviews» ([62], [67], [68]) et les travaux de l'« International Solid Waste Association » ([33]) ou ceux du groupe PHOENIX ([4], [63]). La préoccupation principale en matière de REFIOM est directement liée à leur devenir final actuel, la mise en décharge [33] : les traitements visent avant tout à éviter la lixiviation des métaux. Cependant, dans les prochaines années et déjà à l'heure actuelle, il faudra compter sur la limitation de mise en décharge de certains déchets. Par exemple, suite à la transposition de la directive européenne 1999/31/CE [16] concernant la mise en décharge des déchets, les déchets d'incinération (non traités) sont interdits en centre d'enfouissement technique à partir du 1^{er} janvier 2006 en Région wallonne [47].

La classification des traitements des REFIOM est envisagée de différentes façons ([17], [30], [62], [67]). Globalement, les traitements peuvent se classer selon leur but ou selon leur nature. Ainsi, nous identifions quatre buts principaux : la stabilisation, l'extraction des contaminants ou leur destruction et la solidification des résidus. Sous l'appellation stabilisation, sont reprises les techniques qui réduisent la dangerosité d'un déchet en changeant la forme des contaminants afin de les rendre moins solubles, moins mobiles ou moins toxiques [30]. Les composés visés restent donc dans la matrice, mais se retrouvent sous une autre forme ; les changements de mobilité sont principalement dus à un passage d'une phase dissoute à une phase solide [8]. Les contaminants peuvent encore être détruits ou décomposés ; il s'agit dans ce cas-ci exclusivement des composés organiques.

Parallèlement à ces trois objectifs, le traitement des REFIOM peut également consister en leur solidification sous forme compacte et solide. La solidification agit au niveau des propriétés physiques en diminuant le rapport surface/volume, la porosité, la perméabilité et en augmentant la tortuosité des déchets. Elle diminue donc la lixivabilité des résidus en les encapsulant dans un solide les contaminants sans qu'il y ait nécessairement interaction chimique ([8], [30]). Il est courant de combiner des techniques de stabilisation et de solidification de manière à obtenir un résidu final solide, compact et ne libérant pas (ou très peu) de contaminants ; cette combinaison est connue sous l'appellation inertage ou S/S (stabilisation/solidification).

En ce qui concerne la nature des traitements, deux grandes catégories se distinguent : les techniques physico-chimiques et les techniques thermiques. A côté de ces deux catégories, nous retrouvons également des techniques biologiques,

moins répandues. Les différentes techniques utilisées ou étudiées pour le traitement des REFIOM sont décrites plus précisément ci-après, en les développant sous ces différentes catégories. Le Tableau 1 reprend les techniques étudiées ainsi que leurs buts principaux et leur coût. Le coût indiqué correspond, d'après [33], uniquement au traitement ; à cette valeur doit donc être ajouté le coût de la mise en décharge (de 50 à 100 €/t pour des déchets non dangereux). Notons que les caractéristiques du résidu final (traité) ainsi que l'efficacité du traitement varient en fonction des propriétés du REFIOM initial et du type de système d'épuration des fumées [33].

| | Stabilisation | Enlèvement des contaminants | Destruction des contaminants organiques | Solidification | Coût (€/tonne de REFIOM) |
|-------------------------------------|---------------|-----------------------------|---|----------------|--------------------------|
| Techniques physico-chimiques | | | | | |
| Lavage | X | X | | X | / |
| Lixiviation | | X | | | / |
| Stabilisation aux phosphates | X | | | | 25* |
| Stabilisation au FeSO ₄ | X | | | | 65* |
| Ajout d'agents chélatants | X | | | | / |
| Inertage au ciment | X | | | X | 25-50* |
| Extraction électrochimique | | X | | | 1** |
| Techniques biologiques | | | | | |
| Biolixiviation | | X | X | | / |
| Traitements thermiques | | | | | |
| Vitrification | | | X | X | 100-500* |
| Fonte (melting) | | | X | X | 100-500* |
| Frittage (sintering) | | | X | X | / |

* : [33] ; ** : [9] ; / : pas de données

Tableau 1 : Techniques de traitements des REFIOM, leurs buts principaux et leur coût

Les techniques physico-chimiques

Ces techniques consistent à mettre les REFIOM en présence d'un agent réactif qui va permettre de modifier les propriétés des résidus (solubilité, pH, structure...).

Le lavage constitue la méthode de séparation des sels dissous contenus dans les REFIOM la plus simple [30] : lorsque les résidus sont mis en présence d'eau, les sels solubles et disponibles passent en solution. La mise en solution des chlorures et des sulfates est particulièrement intéressante [45]. En effet, les chlorures ne sont pas stabilisés par d'autres procédés ; seul le lavage permet de s'en débarrasser efficacement [67]. Le lavage entraîne également un effet de stabilisation ([1], [38], [48]) en réduisant la lixivibilité de métaux tels que Cd et Pb [38]. Mangialardi [45] explique cet effet par la formation de phases d'hydrates qui incorporent ou convertissent les métaux lourds en des formes moins réactives. Le lavage permet aussi de diminuer le poids des résidus finaux [67].

Différents paramètres peuvent influencer un lavage ([1], [11], [61]) : le rapport liquide/solide, le temps, le nombre d'étages, la température. Abbas et al. [1] ont obtenu les plus grandes quantités extraites en Ca, Na, K, Cl et sulfates en utilisant trois extractions de chacune 5 minutes, un rapport L/S de 2 et une température ambiante (25 °C).

Néanmoins, l'efficacité de la stabilisation varie en fonction du type du REFIOM ; la stabilisation semble effective pour les résidus de cyclone et non pour ceux du filtre à manches. D'après [11], les conditions optimales pour minimiser la sortie de chlorures et de métaux lourds hors des résidus traités sont deux étapes de lavage de 1 h avec un rapport L/S de 3, suivies d'un rinçage (la température n'est apparemment pas contrôlée). Les eaux circulent en contre-courant : l'eau de rinçage sert d'eau pour le deuxième lavage et l'eau du deuxième lavage sert d'eau de lavage pour la première étape. De l'eau fraîche est ajoutée afin de garantir le rapport L/S de 3.

Alors que certains ne constatent pas d'influence de la température (l'efficacité d'extraction de sels semble indépendante de la température dans l'intervalle de 25 à 60 °C [1], [49]), Portier et Bolle [61] remarquent pour leur part qu'une augmentation de température (lavage entre 50 et 90 °C), associée à la diminution de pH subséquente et à un prolongement du temps de réaction (> 15 min), permet de réduire les teneurs en métaux lourds dans les eaux issues du procédé (les REFIOM visés par ce brevet contiennent de l'acide chlorhydrique et ont été traités par un composé de calcium basique). Ce procédé opère avec un rapport L/S compris entre 1 et 3, en une étape de lavage suivie par un rinçage.

Lorsque les REFIOM sont mis en solution, le pH de cette solution est basique (11-13). Le lavage des REFIOM dans ces conditions basiques engendre des effluents fortement chargés en sels pouvant contenir des métaux lourds, tels que Pb et Zn, nécessitant des traitements adéquats. Quelques solutions ont été apportées à ce problème. Dans une de ses versions, le procédé AES [37] prévoit de mélanger les cendres volantes et les effluents aqueux du traitement des fumées afin de prévenir la lixiviation des métaux lourds. Après filtration, l'eau est traitée par une station d'épuration interne à l'usine et recyclée comme eau de refroidissement. Mangialardi [45] propose lui de réduire le pH des effluents à des valeurs comprises entre 6,5 et 7,5, de manière à précipiter Al(OH)₃ et à adsorber les ions (Cd, Pb, Zn) sur les floccs formés. Comme nous l'avons vu, travailler à 50 et 90 °C lors du lavage permet également de diminuer la dissolution des métaux [61].

D'autres problèmes peuvent également surgir lors du lavage des REFIOM : la précipitation de sels [11], la floculation des cendres, la solidification des résidus lavés [37].

En résumé, un lavage optimal doit garantir une lixivibilité minimale du résidu traité, utiliser une quantité minimale d'eau et produire un minimum d'effluents aqueux non contaminés. Le lavage est également envisagé comme prétraitement avant solidification par du ciment ou avant traitement thermique ([38], [45], [72]).

L'ajout d'un réactif à l'eau de lavage afin d'améliorer les performances du traitement a été envisagé. Chimenos et al. [11] ont étudié l'effet du MgSO₄ ; l'addition de ce composé a comme conséquence de diminuer le pH final de la solution (du pH naturel à un pH tampon d'environ 10,5), cette diminution de pH entraînant une réduction des

quantités de métaux lourds en solution.

Dans de nombreux cas, un acide est ajouté à la solution de lavage ; il est alors plus approprié de parler de lixiviation acide. Mulder [48] effectue un « lavage » à pH 4 en ajoutant de l'acide nitrique comme prétraitement en vue d'une utilisation des résidus comme matériau de remblais. Les résidus obtenus, une fois solidifiés, respectent les normes de lixiviation néerlandaises. Nagib et Inoue [49] ont investigué la lixiviation de cendres volantes d'électrofiltre (après un pré-lavage, à l'eau donc) par différents acides (sulfurique, chlorhydrique et acétique) en vue de la récupération sélective de Pb et Zn. L'emploi d'acide sulfurique permet d'éviter la mise en solution du Pb, qui peut être solubilisé dans une étape ultérieure.

Des traitements aux phosphates ont également été proposés (procédé WES-Phix : [1], [18]). Derie ([13], [14]) a décrit un traitement, repris et adapté ([6], [43], [51], [60]). Ce procédé comporte 3 étapes : tout d'abord une mise en solution par ajout d'eau ($L/S = 8$), ensuite une addition d'acide phosphorique permettant la formation de phosphates insolubles [60] et, finalement, un passage (1 h) à 800 °C afin de détruire les organiques. Ce principe a été développé pour accompagner le procédé Neutrec de la société Solvay ([50], [60]), appliqué au recyclage des produits sodiques résiduels et REFIOM (plate-forme RESOLEST, installée à Rosières-aux-Salines, France).

Nagib et Inoue [49] se sont également intéressés à une lixiviation en milieu alcalin, en utilisant du NaOH (3N) ; une telle lixiviation suivie par un rinçage des résidus à l'acide chlorhydrique (5 % pds) dissout 98 % pds du Pb et 69 % pds du Zn.

En matière de stabilisation des REFIOM, nous retrouvons également un traitement basé sur l'addition de sulfate de fer, le procédé « FerroX » (brevet Christensen [12] ; études complémentaires : [41], [36], [42]). Celui-ci se base sur la stabilité notable des oxydes de fer dans des environnements terrestres ou aqueux. Le procédé consiste tout d'abord à mettre les REFIOM en contact avec une solution de sulfate de fer, ce qui engendre la formation d'hydroxydes. Après oxydation par aération de la solution, les particules d'oxydes de fer se forment sur les résidus. Le procédé permet de réduire la lixiviation des sels et des métaux contenus dans les REFIOM ; les quantités de métaux passant en solution lors de test de lixiviation [19] sont réduites d'un facteur allant de 10 à 1000. Seul le chrome pose encore problème dans certaines solutions qui nécessitent alors un traitement supplémentaire.

La stabilisation des REFIOM au CO₂ ou carbonatation est également envisagée ([20], procédé VKI [33]). Cette technique est généralement utilisée pour la maturation des mâchefers [69]. Les avis sont cependant partagés : Svensson et al. [65] ne voient pas d'intérêt à prétraiter des cendres volantes par du CO₂ avant un lavage, alors que Kim et al. [38], travaillant sur un mélange de MIOM et de REFIOM (5 : 1), estiment que la combinaison d'un lavage et d'une étape de carbonatation est une technique prometteuse

en matière de stabilisation.

Outre les procédés présentés ci-dessus, d'autres techniques de stabilisation des REFIOM ont également été proposées dans la littérature : extraction acide et stabilisation au NaHS (procédé AES : [37]), utilisation de polymères pouvant être des déchets [46], stabilisation à l'aide de NaOH, EDTA, Na₂S ou thiourée [76], utilisation d'agents chélatants [35]. Comme nous l'avons vu, la stabilisation est souvent combinée à la solidification. De nombreuses techniques sont proposées en matière d'inertage : le mélange de différents types de déchets, l'ajout d'agent liant hydraulique avec ou sans lavage préliminaire, l'addition de liants organiques [30] ou encore la solidification à l'eau [66]. La plupart des procédés d'inertage sont basés sur l'utilisation de ciment, employant du ciment Portland comme liant primaire ([8], [67]). On retrouve également plusieurs études menées sur des sujets spécifiques liés à l'inertage des cendres volantes (parfois des REFIOM) par ciment : étude de la lixiviation de REFIOM stabilisés dans du ciment Portland en fonction du temps [3], utilisation de cendres volantes comme activateur pouzzolanique ([15], [27]), immobilisation à l'aide de ciment ou de silice [25], influence du contenu en aluminium des REFIOM sur des produits à base de ciment [5], utilisation dans des ciments mélangés [7], effet de la nature du déchet sur différentes propriétés du ciment ou du liant [44].

Cette technique présente, évidemment, des avantages et des inconvénients ([17], [30]). L'inertage par ciment améliore les caractéristiques de manutention, au niveau du transport et de la mise en décharge. De plus, la matière première utilisée est relativement bon marché. En revanche, la technique augmente fortement la masse du solide final (augmentation de 40 % [17]). Alba et al. [2] remarquent que la carbonatation (fixation du CO₂) altère l'immobilisation des métaux et de sels (les quantités lixiviées de sulfates, Zn et Cr s'en trouvent augmentées) et que les chlorures ne sont que partiellement retenus. Ces chlorures, présents en quantités importantes dans les REFIOM, peuvent engendrer une diminution de la solidité et de la durabilité du mélange ciment-cendres volantes ainsi qu'une augmentation de la corrosivité de l'eau des pores, corrosivité accrue également par la présence de sulfates [67]. Comme expliqué plus avant, un lavage préalable des REFIOM permet de diminuer les quantités de chlorures ([24], [48]).

Un autre problème rencontré lors de l'inertage des REFIOM concerne l'oxydation de Al métallique [26], provoquant la formation de H₂ qui reste dans le matériau et contribue également à diminuer la solidité du matériau ainsi qu'à augmenter le gonflement et la perméabilité de celui-ci ; ce problème peut être contourné en initiant la réaction d'oxydation au préalable par l'ajout de NaOH [67]. La stabilité à long terme du solide final, « inerté », reste sujette à discussion [17]. Malgré ses inconvénients, ce type de traitement, moyennant quelques adaptations (ajout de réactifs stabilisants par exemple) est actuellement fort répandu en Europe [69] et au Japon [17].

De nombreuses techniques visent l'extraction (parfois, la récupération) des contaminants. Cette extraction peut s'effectuer de différentes façons. Le lavage, dont nous avons déjà parlé, peut être considéré comme un procédé d'extraction de sels solubles (chlorures entre autres) [11]. Différents réactifs ont été proposés pour favoriser l'extraction de certains composés : des saponines [28], des agents chélatants [29], des acides organiques et inorganiques [73]. Van Herck et Vandecasteele [71] présentent une extraction séquentielle des REFIOM afin d'obtenir successivement les composés solubles dans l'eau, « Ca échangeables », solubles dans l'acide, oxydables, facilement réductibles, difficilement réductibles et, enfin, la fraction résiduaire.

Des essais d'électrodialyse, avec ou sans agent, ont également été réalisés afin d'extraire des métaux (Cd, Cr, Cu, Pb, Zn) et des sels (chlorures) de solutions de REFIOM (sans agent : [57], [54] ; citrate d'ammonium et de sodium, ammoniacale : [56] ; avec et sans gluconate de sodium : [23] ; avec et sans citrate d'ammonium : [58]). En ce qui concerne l'extraction des chlorures, il serait intéressant d'estimer l'efficacité d'un tel traitement par rapport à un lavage (Wang et al. [72] indiquent un taux d'extraction à l'eau de 95 % de chlorures). Il apparaît que le citrate d'ammonium donne des taux d'extraction (en Cd, Cu et Zn) plus élevés que le gluconate de sodium. Le plomb est mieux extrait lors de l'électrodialyse avec du gluconate de sodium (61 % extrait, [23]) ; en revanche, lors des expériences d'électrodialyse en milieu aqueux [54], il s'est avéré que le plomb était présent sous forme insoluble, ce qui a engendré une augmentation de la concentration en plomb dans le résidu final. Le meilleur compromis pour l'extraction de Cd, Cr, Cu, Pb et Zn consiste, d'après [56], en un mélange de citrate d'ammonium (0,25 M) et d'une solution d'ammoniacale (1,25 %). Néanmoins, certains problèmes tels que la formation de précipités ou l'assèchement des échantillons en cours d'expérience sont apparus lors des essais d'électrodialyse [23]. De plus, ces essais d'extraction de métaux se déroulent sur de longues durées (de 12 à 70 jours) qui semblent peu praticables à un niveau industriel.

D'autres procédés électrochimiques ([75] ; brevets japonais : [9], [31], [32]) ont également été investigués en vue de récupérer des métaux contenus dans des lixiviats produits à partir de REFIOM. Beauchesne et al. [9] ont récupéré près de 99 % du Pb dans les conditions utilisées (pH compris entre 7,5 et 8,5, électrode d'acier doux, intensité de courant de 1,5 A pendant 5 min).

Dans les techniques d'extraction, on trouve aussi l'échange ionique, souvent utilisé pour enlever les métaux lors du traitement d'effluents aqueux et qui peut s'appliquer aux effluents provenant d'un incinérateur, en adaptant le type de résine à ces solutions présentant une haute teneur en Ca [30].

Les techniques biologiques

L'extraction de métaux par l'activité biologique d'un microorganisme est également appelée biohydrométallurgie ou biolixiviation. Elle constituerait aujourd'hui la technique présentant le moins d'impacts environnementaux [62]. La capacité microbiologique de dissoudre ou de lixivier les métaux est basée sur trois principes : les réactions d'oxydo-réduction, la formation d'acides organiques et inorganiques ainsi que l'excrétion d'agents complexants. Les résultats de [40] indiquent qu'un mélange de diverses souches de microorganismes, dont des bactéries sulfo-oxydantes, permet de lixivier des quantités substantielles de métaux lourds : 80 % de Cd, Cu et Zn ; 60 % d'Al ; 30 % de Fe et Ni. Les sulfures de métaux (insolubles et immobiles) risquent cependant d'être convertis en sulfates (mobiles) par une réaction d'oxydation [62]. Bosshard et al. [10] se sont intéressés à une autre souche dans l'optique d'une biolixiviation des métaux contenus dans les REFIOM : *Aspergillus niger*. Après une période d'incubation de la souche dans un milieu de saccharose, les cendres sont ajoutées à la culture (5 % poids/volume). Les auteurs observent, après un jour, une extraction de 81 % de Cd, 66 % de Zn, 57 % de Cu, 52 % de Pb, 32 % de Mn, 27 % d'Al, et moins de 10 % de Cr, Fe et Ni.

Xu et Ting [74] ont ciblé leur recherche sur la détermination des conditions optimales de biolixiviation par *A. niger* en termes de concentration en saccharose (source de carbone), de densité de spores, de la densité de la « pulpe » de cendres et du moment de l'addition des cendres aux cultures. Kimura et Urushigawa [39] signalent l'existence d'une lignée de bactéries capables d'utiliser comme source de carbone des composés aromatiques monocycliques (toluène, phénol, chlorobenzène) ainsi que des aromatiques bicycliques (biphényl, naphtalène, dibenzo-thiophène) ; ces bactéries pourraient donc décomposer des contaminants organiques contenus dans les REFIOM.

Les techniques thermiques

Afin de traiter les REFIOM, les techniques à (très) hautes températures permettent non seulement de réduire la lixiviation des REFIOM, mais également de détruire les organiques. Parmi ces traitements, il est possible de distinguer différentes classes ; l'ISWA [33] propose de parler de vitrification, de fonte (« melting ») et de frittage (« sintering »), ces techniques se différenciant par les propriétés du produit final et par le procédé de refroidissement. La vitrification se distingue encore par l'utilisation d'additifs « vitrifiants ».

Différents procédés, pour la plupart opérationnels au Japon, sont présentés au Tableau 2 [17]. Toutes ces techniques exigent cependant une quantité importante d'énergie et sont, par conséquent, assez onéreuses. De plus, il est nécessaire de traiter les fumées produites, ce qui engendre des produits secondaires. Néanmoins, les traitements thermiques présentent l'avantage de réduire le volume

des produits traités. Dans des zones fortement peuplées où la capacité de mise en décharge est fortement réduite (au Japon notamment), ces traitements sont essentiels [17].

Dans certains procédés, la récupération de métaux s'avère réalisable [34]. De nouvelles techniques ou variantes sont toujours proposées : co-traitement avec les mâchefers après stabilisation [64], utilisation de gaz de Brown [55].

Discussion

Il existe de nombreuses possibilités pour le traitement des REFIOM. Les techniques les plus industrialisées semblent être les traitements thermiques et l'inertage par ciment. Alors qu'ils détruisent les organiques et réduisent le volume final de résidus, les traitements thermiques consomment énormément d'énergie et produisent des cendres secondaires qui doivent, à leur tour, être traitées. L'inertage au ciment, technique peu coûteuse et facilement mise en œuvre, présente le désavantage d'augmenter le volume des résidus et, par conséquent, du volume placé en décharge. Parmi les autres procédés, le lavage permet de se débarrasser des chlorures, principaux sels problématiques. Les résidus lavés satisfont, dans certains cas, aux normes de lixiviation, sans qu'un autre traitement ne doive être mis en œuvre. D'un autre côté, le lavage permet d'améliorer l'efficacité d'autres techniques de traitement des REFIOM. Néanmoins, la mise en solution de métaux, le plomb notamment, reste un problème. L'ajout d'un réactif stabilisant permet de pallier cet inconvénient. Cependant, le risque que le contaminant soit relâché dans l'environnement n'est pas nul ; la détérioration du solide ou un changement des conditions d'enfouissement pourrait affecter l'effet de stabilisation obtenu. La lixiviation à long terme des résidus traités reste d'ailleurs un sujet actuel de recherche.

Le risque de contamination est fortement réduit lorsque les composés problématiques sont extraits des résidus. L'extraction pourrait également mener au recyclage des métaux. Les procédés électrochimiques semblent donner de bons résultats, tout en devant encore être améliorés. L'utilisation d'un agent en vue de l'extraction d'un composé pose la question du devenir de cet agent une fois chargé du contaminant. Comme dans le cas du lavage, il faut veiller à ne pas déplacer le problème de pollution. La même question peut également surgir dans le cas de l'extraction de métaux par la biolixiviation. Cette technique biologique semble par ailleurs efficace. Néanmoins, la croissance de micro-organismes nécessite des conditions particulières et délicates. De plus, les quantités de REFIOM à traiter (2 800 tonnes par an en région wallonne [52]) semblent trop importantes pour ce type de traitement. Notons cependant que la biolixiviation, avec des souches de bactéries bien spécifiques, permet de décomposer des contaminants organiques que seuls les traitements thermiques détruisent.

| Système de fonte | Type de four | Alimentation matière | Alimentation énergétique | Consommation énergétique (kWh/t) | Récupération des métaux |
|------------------|------------------------|----------------------------------|---|----------------------------------|---|
| Fonte électrique | Arc plasma | MIOM et REFIOM, REFIOM | Courant plasma direct | 850-1250 | Scories et métaux séparés |
| | Résistance | MIOM et REFIOM | Electrodes de graphite dans un bain | 650 | Scories et métaux séparés |
| | Induction | En cours d'étude | Courants de Foucault | 1000 | Scories et métaux séparés |
| Brûleurs | Surface réfléchissante | MIOM et REFIOM, REFIOM | Kérosène | 8200-8900 | / |
| | Surface tournante | MIOM, REFIOM et H ₂ O | Kérosène, gaz de ville en cours d'étude | 250-500 | Métaux évaporés, se retrouvent dans les cendres |
| | Flux tourbillonnant | REFIOM, en cours d'étude | Butane | 2900-3300 | / |
| Explosion | Lit de coke | MIOM, REFIOM, chaux | Coke | 2700 | / |

Tableau 2 : Exemples de procédés de traitement thermique des REFIOM, d'après [17]

Conclusion

Les REFIOM correspondent aux cendres volantes et aux résidus d'épuration des fumées que génère l'incinération des ordures ménagères. Ces résidus sont considérés comme déchets dangereux en raison des concentrations trop élevées en différents sels, métaux et composés organiques qu'ils contiennent. Aujourd'hui, la principale démarche en matière de traitement des REFIOM est de réduire au maximum leur impact sur l'environnement lors de leur mise en décharge. Cela revient principalement à éviter la lixiviation des métaux. Certains traitements envisagent cependant la possibilité de valoriser une partie des REFIOM (les métaux ou sels extraits). Les procédés de traitement de REFIOM peuvent être regroupés en trois catégories : les techniques physico-chimiques, biologiques et thermiques. Les traitements biologiques utilisent des bactéries particulières, capables de se développer dans un milieu contenant des REFIOM. Ce type de traitement, bien qu'il semble efficace et propre, est fort peu développé. Les procédés physico-chimiques s'opèrent en solution. Cette solution peut être simplement de l'eau, on parle alors de lavage, ou peut contenir des réactifs tels que des acides, des phosphates, du sulfate de fer. Le lavage des REFIOM permet de les débarrasser de leurs sels solubles (chlorures principalement). L'ajout d'un réactif stabilisant évite la mise en solution de métaux. Dans cette catégorie de procédés, nous avons également incorporé l'inertage, combinant la stabilisation et la solidification. Le mélange des REFIOM à un liant hydraulique, principalement du ciment Portland, permet d'obtenir un solide compact et présentant des quantités fort réduites de métaux lixiviés. Les techniques d'extraction envisagent de débarrasser les REFIOM de certains contaminants par l'ajout d'un réactif ou par des procédés électrochimiques. Ces techniques permettent d'envisager la récupération de composés tels que les métaux (Pb, Zn). Les traitements thermiques utilisent les hautes températures ; les REFIOM sont solidifiés, les organiques détruits et les métaux volatilisés ou stabilisés. Dans le contexte actuel de développement durable

incluant la protection des ressources, il serait préférable d'utiliser les REFIOM plutôt que de les traiter en vue de leur seule mise en décharge. Ce point de vue commence à se répandre. Le procédé Neutrec [50] rentre dans cette optique en réutilisant les résidus sodiques. L'ISWA [33] incite également au « recyclage » des résidus, sous forme de sels, gypse ou encore matériaux de remblais. Feirrer et al. [22] proposent d'utiliser les REFIOM dans des matériaux de construction, des applications géologiques ou agricoles, ou encore dans le conditionnement des boues. Les possibilités de valorisation des REFIOM semblent donc exister et il paraît intéressant de poursuivre le développement de techniques permettant cette valorisation. Évidemment, l'utilisation des REFIOM doit s'effectuer de façon extrêmement contrôlée afin d'éviter toute contamination de l'environnement. Il ne s'agit pas d'utiliser les REFIOM « à tout prix » mais dans un cadre légal et contrôlé comme dans certains pays (Pays-Bas, Danemark) où des législations se mettent en place afin d'autoriser, sous certaines conditions, la valorisation des REFIOM.

Remerciements

Nous remercions la Région wallonne et le Fonds social européen pour le financement de ce projet First Europe.

Références

[1] Abbas Z.; A. P. Moghaddam, B.-M. Steenari; 2003; Release of salts from municipal solid waste combustion residues; *Waste Management*; 23; 291-305.

[2] Alba N.; E. Vázquez, S. Gassó, J. M. Baldasano; 2001; Stabilization/solidification of MSW incineration residues from facilities with different air pollution control systems. Durability of matrices versus carbonation; *Waste Management*; 21(4); 313-323.

[3] Andac M.; F.P. Glasser; 1998; The effect of test conditions on the leaching of stabilised MSWI-fly ash in Portland cement; *Waste Management*; 18 (5); 309-319.

[4] Astrup T.; G. Cappai, O. Hjelmar, A. Kihl, P. Lechner, P. Mostbauer, M. Nyholm, A. Polletini, R. Pomi, H. A. van der Sloot, A. van Zomeren; 2004; Towards an improved understanding of the leaching behavior of MSWI residues- Report on the 2nd meeting of the IWWG pHOENIX working group on "Management of Municipal Solid Waste Incineration Residues"; *Waste Management*; 24 (5); 529-530.

[5] Aubert J.E.; B. Husson, A. Vaquier; 2004a; Metallic aluminium in MSWI fly ash: quantification and influence on the properties of cement-based products; *Waste Management*; 24(6); 589-596.

[6] Aubert J.E.; B. Husson, A. Vaquier; 2004b; Use of municipal solid waste incineration fly ash in concrete; *Cement and concrete research*; 34; 957-963.

[7] Aubert J.E.; B. Husson, N. Sarramone; 2006; Utilization of municipal solid waste incineration (MSWI) fly ash in blended cement Part I: Processing and characterization of MSWI fly ash; *Journal of Hazardous Materials*; 136 (3); 624-631.

[8] Batchelor B.; 2006; Overview of waste stabilization with cement; *Waste Management*; 26; 689-698.

[9] Beauchesne I. ; N. Meunier, P. Drogui, R. Hausler, G. Mercier, J.-F. Blais; 2005; Electrolytic recovery of lead in used lime leachate from municipal waste incinerator ; *Journal of Hazardous Materials*; 120 (1-3); 201-211.

[10] Bosshard P.; R. Bachofen, H. Brandl; 1996; Metal Leaching of Fly Ash from Municipal Waste Incineration by *Aspergillus niger* ; *Environmental Sciences and Technologies*; 30; 3066-3070.

[11] Chimenos J.M.; A.I. Fernández, A. Cervantes, L. Miralles, M.A. Fernández, F. Espiell; 2005; Optimizing the APC residue washing process to minimize the release of chloride and heavy metals; *Waste Management*; 25 (7); 686-693.

[12] Christensen T.H.; 1999/07/14; A method for the treatment, in particular stabilization, of materials containing environmentally noxious constituents, especially from the incineration of waste, as well as a plant for carrying out the said method; Ansaldo Volund AS ; brevet EP0928227.

[13] Derie R.; 1996; A new way to stabilize fly ash from municipal incinerators; *Waste Management*; 16(8); 711-716.

[14] Derie R.; 1998/12/16; Ash inerting method; Solvay; brevet EP0883585.

[15] Dhir R.K.; 2000; Thomas Telford Publishing; Sustainable construction: Use of incinerator ash.

[16] Directive européenne 1999/31/CE du Conseil du 26 avril 1999 concernant la mise en décharge des déchets ; *Journal officiel des Communautés européennes* L 182/11-19.

[17] Ecke H.; H. Sakanakura; T. Matsuto; N. Tanaka; A. Lagerkvist; 2000; State-of-the-art treatment processes for municipal solidwaste incineration residues in Japan; *Waste Management and Research*; 18; 41-51.

[18] Eighmy T.T.; B. Crannell, L. G. Butler; F. Cartledge, E. Emery, D. Oblas, J. Krzanowski, J. Dykstra Eusden, E. L. Shaw, C. A. Francis; 1997; Heavy Metal Stabilization in Municipal Solid Waste Combustion Dry Scrubber Residue Using Soluble Phosphate; *Environmental Sciences and Technologies*; 31; 3330-3338.

[19] EN 12457, 2002 ; Caractérisation des déchets – Lixiviation – Essai de conformité pour la lixiviation des déchets fragmentés et des boues ; Institut Belge de Normalisation.

[20] European Commission ; 2006 ; Integrated Pollution Prevention and Control, Reference document on the Best Available Techniques for Waste Incineration; I-602.

[21] Eurostat, 2006 ; <http://epp/eurostat.cec.eu.int>.

[22] Feirrer C.; A. Ribeiro, L. Ottosen; 2003; Possible applications for municipal solid waste fly ash; *Journal of Hazardous Materials* ; B96 ; 201-216.

[23] Feirrer C.; P. Jensen, L. Ottosen, A. Ribeiro; 2005; Removal of selected heavy metals from MSW fly ash by the electrolytic process ; *Engineering Geology*; 77 (3-4); 339-347.

[24] Geysen D. ; 2004; Immobilisation of heavy metals in municipal solid waste incinerator flue gas cleaning residues; *Katholieke Universiteit van Leuven*; Thesis; I-142.

[25] Geysen D. ; C. Vandecasteele, M. Jaspers, G. Wauters; 2004; Comparison of immobilisation of air pollution control residues with cement and with silica; *Journal of Hazardous Materials*; 107 (3); 121-143.

[26] Guyonnet D.; F. Bodéan, G. Brons-Laot, A. Burnol, L. Chateau, M. Crest, J. Méhu, P. Moszkowicz, P. Piantone; 2006; Lixiviation multi-échelles de cendres d'incinération d'ordures ménagères; *Déchets* ; 43; 10-20.

[27] Halliday J.E.; T.D. Dyer; 2000; Use of incinerator fly ash as a pozzolanic activator; *Sustainable construction: Use of Incinerator ash* ; 447-456.

[28] Hong K.-J.; S. Tokunaga, Y. Ishigami, T. Kajuchi; 2000; Extraction of heavy metals from MSW incinerator fly ash using saponins ; *Journal of Hazardous Materials*; 41 (3); 345-352.

[29] Hong K.-J.; S. Tokunaga, T. Kajuchi; 2001; Extraction of heavy metals from MSW incinerator fly ashes by chelating agents; *Journal of Hazardous Materials*; 75 (1); 57-73.

[30] IAWG (International Ash Working Group); 1997; A.J. Chandler; T.T. Eighmy, J. Hartlén, O. Hjelmar, D.S. Kosson, S.E. Sawell, H.A. van der Sloot, J. Vehlou ; « Municipal Solid Waste Incineration Residues » ; *Studies in Environmental Science* 67 ; Elsevier.

[31] Inazumi C., A. Yano, M. Kondo, H. Tatsumi; 2002/08/27; Electrochemical recovery of heavy metals from fly ash; Hitachi Shipbuilding and Engineering Co; brevet JP 2002239553 (écrit en japonais).

[32] Inazumi C., A. Yano, M. Kondo, H. Tatsumi; 2003/03/19; Electrochemical process for recovery of heavy metals from fly ash.; Hitachi Shipbuilding and Engineering Co; brevet JP 2003082489 (écrit en japonais).

[33] ISWA (International Solid Waste Association); 2003; ISWA Position paper on handling of APC residues; disponible sur le site de l'ISWA (<http://iswa.org>).

[34] Izumikawa C.; 1996; Metal recovery from fly ash generated from vitrification process for MSW ash; *Waste Management*; 16 (5-6); 501-507.

[35] Jianguo J.; Wang Jun, Xu Xin, Wang Wei, Deng Zhou, Zhang Yan; 2004; Heavy metal stabilization in municipal solid waste incineration flyash using heavy metal chelating agents; *Journal of Hazardous Materials*; B113; 141-146.

- [36] Jensen D.L.; T.H. Christensen, K. Lundtorp; 2002; Treatment of waste incinerator air-pollution-control residues with FeSO₄: Laboratory investigation of design parameters; Waste Management and Research; 20; 80-89.
- [37] Katsuura H.; T. Inoue, M. Hiraoka, S. Sakai; 1996; Full-scale plant study on fly ash treatment by the acid extraction process; Waste Management; 16; 491-499.
- [38] Kim S.-Y.; Toshihiko Matsuto, Nobutoshi Tanaka; 2003; Evaluation of pre-treatment methods for landfill disposal of residues from municipal solid waste incineration; Waste Management and Research; 21; 416-423.
- [39] Kimura N.; Y. Urushigawa; 2001; Metabolism of Dibenzo-p-Dioxin and Chlorinated Dibenzo-p-Dioxin by a Gram-Positive Bacterium, *Rhodococcus opacus* SAO 101; Journal of Bioscience and Bioengineering; 92(2); 138-143.
- [40] Krebs W.; R. Bachofen, H. Brandl; 2001; Growth stimulation of sulfur oxidizing bacteria for optimization of metal leaching efficiency of fly ash from municipal solid waste incineration; Hydrometallurgy; 59 (2-3); 283-290.
- [41] Lundtorp K.; 2001; The Ferrox-process in an industrial scale: - Developing a stabilisation process for air pollution control residues from municipal solid waste incineration; PhD Thesis; Environment & Resources DTU; Technical University of Denmark; 1-122.
- [42] Lundtorp K.; D.L. Jensen, T.H. Christensen; 2002; Stabilization of APC Residues from Waste Incineration with Ferrous Sulfate on a Semi-Industrial Scale; Journal of the Air & Waste Management Association; 52(6); 722-731.
- [43] Lyons M.R.; 2000; The use of soluble phosphates to stabilize heavy metals in fly ash; Sustainable construction: Use of Incinerator ash; 87-96.
- [44] Malviya R.; R. Chaudhary; 2006; Factors affecting hazardous waste solidification/stabilization: A review; Journal of Hazardous Materials; B137; 267-276.
- [45] Mangialardi T.; 2003; Disposal of MSWI fly ash through a combined washing immobilisation process; Journal of Hazardous Materials; 98 (1-3); 225-240.
- [46] Massardier V.; Moskowitz P., M. Taha; 1997; Fly ash stabilisation-solidification using polymer-concrete double matrices; European Polymer Journal; 33 (7); 1081-1086.
- [47] Moniteur Belge; 04/05/2004; 18 mars 2004 - Arrêté du Gouvernement wallon interdisant la mise en centre d'enfouissement technique de certains déchets, err. 30.06.2004.
- [48] Mulder E.; 1996; Pre-Treatment of MSWI fly ash for useful application; Waste Management; 16 (1-3); 181-184.
- [49] Nagib S.; K. Inoue; 2000; Recovery of lead and zinc from fly ash generated from municipal incineration plants by means of acid and/or alkaline leaching; Hydrometallurgy; 56 (3); 269-292.
- [50] Neutrec; 2006; www.neutrec.com.
- [51] Nzihou A.; P. Sharrock; 2002; Calcium phosphate stabilization of fly ash with chloride extraction; Waste Management; 22 (2); 235-239.
- [52] Office wallon des déchets; 2001; Analyse des Plans Stratégiques des Intercommunales et de la Gestion des Déchets Ménagers et Assimilés et des DIB en Région Wallonne, Rapport de phase 2; Ministère de la Région wallonne, Direction Générale des Ressources Naturelles et de l'Environnement; 1-224.
- [53] O'hara M.J.; M. R. Surgi; 1988/04/12; Immobilization of lead and cadmium in solid residues from the combustion of refuse using lime and phosphate; Wheelabrator environment syst.; brevet US4737356.
- [54] Ottosen M.L.; A. T. Lima, A. J. Pedersen, A.B. Ribeiro; 2006; Electrolytic extraction of Cu, Pb and Cl from municipal solid waste incineration fly ash suspended in water; Journal of Chemical Technology and Biotechnology; 81; 553-559.
- [55] Park K.; J. Hyun, S. Maken, S. Jang, J.-W. Park; 2005; Vitrification of Municipal Solid Waste Incinerator Fly Ash Using Brown's Gas; Energy & Fuels; 19(1); 258-262.
- [56] Pedersen A. J.; 2002; Evaluation of assisting agents for electrolytic removal of Cd, Pb, Zn, Cu and Cr from MSWI fly ash; Journal of Hazardous Materials; 95 (1-2); 185-198.
- [57] Pedersen A. J.; L.M. Ottosen, A. Villumsen; 2003; Electrolytic removal of heavy metals from different fly ashes Influence of heavy metal speciation in the ashes; Journal of Hazardous Materials; 100 (1-3); 65-78.
- [58] Pedersen A. J.; L.M. Ottosen, A. Villumsen; 2005; Electrolytic removal of heavy metals from municipal solid waste incineration fly ash using ammonium citrate as assisting agent; Journal of Hazardous Materials; 122(1-2); 103-109.
- [59] Perry R.H.; D. W. Green; 1999; Perry's Chemical Engineers' Handbook; McGraw-Hill Handbook.
- [60] Piantone P.; F. Bodéan, R. Derie, G. Depelseñaire; 2003; Monitoring the stabilization of municipal solid waste incineration fly ash by phosphatation: mineralogical and balance approach; Waste Management; 23 (3); 225-243.
- [61] Portier P.; R. Bolle; 2005/10/04; Incinerator smoke solid residue treatment comprises washing with hot water to dissolve soluble residues and precipitate heavy metals; Group Portier Ind En Abrugu G; brevet BE1015866.
- [62] Reijnders L.; 2005; Disposal, uses and treatments of combustion ashes: a review; Resources, Conservation and Recycling; 43; 313-336.
- [63] Sabbas T.; A. Poletini, R. Pomi, T. Astrup, O. Hjelm, P. Mostbauer, G. Cappai, G. Magel, S. Salhofer, C. Speiser, S. Heuss-Assbichler, R. Klein, P. Lechner; 2003; Management of municipal solid waste incineration residues; Waste Management; 23; 61-88.
- [64] Sørensen M.A.; E.P.B. Morensen, K. Lundtorp, D.L. Jensen, T.H. Christensen; 2001; High temperature co-treatment of bottom ash and stabilized fly ashes from waste incineration; Waste Management; 21 (6); 555-562.
- [65] Svensson M.; I. Herrmann, H. Ecke; 2005; Selective mobilization of critical elements in incineration ashes; Värmeforsk Service AB; Report number Q4-140; 1-102.
- [66] Todorovic J.; H. Ecke, A. Lagerkvist; 2003; Solidification with water as a treatment method for air pollution control residues; Waste Management; 23 (7); 621-629.
- [67] Todorovic J.; H. Ecke; 2006; Treatment of MSWI Residues for Utilization as Secondary Construction Minerals: A Review of Methods; Minerals & Energy; 3-4; 45-59.
- [68] van der Sloot H.A.; D.S. Kosson, O. Hjelm; 2001; Characteristics, treatment and utilization of residues from municipal waste incineration; Waste Management; 21; 753-765.
- [69] Van Gerven T.; 2005; Leaching of heavy metals from carbonated waste-containing construction material; Katholieke Universiteit van Leuven; Thesis; 1-154.
- [70] Van Gerven T.; D. Geysen, L. Stoffels, M. Jaspers, G. Wauters, C. Vandecasteele; 2005; Management of incinerator residues in Flanders (Belgium) and in neighbouring countries. A comparison; Waste Management; 25; 75-87.
- [71] Van Herck P.; C. Vandecasteele; 2001; Evaluation of the use of a sequential extraction procedure for the characterization and treatment of metal containing solid waste; Waste Management; 21 (8); 685-694.
- [72] Wang K.-S.; K.-Y. Chiang, K.-L. Lin, C.-J. Sun; 2001; Effects of a water-extraction process on heavy metal behavior in municipal solid waste incinerator fly ash; Hydrometallurgy; 62 (2); 73-81.
- [73] Wu H.-Y.; Y.-P. Ting; 2006; Metal extraction from municipal solid waste (MSW) incinerator fly ash—Chemical leaching and fungal bioleaching; Enzyme and Microbial Technology; 38 (6); 839-847.
- [74] Xu T.J.; Y.-P. Ting; 2004; Optimisation on bioleaching of incinerator fly ash by *Aspergillus niger* – use of central composite design; Enzyme and Microbial Technology; 35; 444-454.
- [75] Yang G. C. C.; Tsai C.-M.; 1998; A study on heavy metal extractability and subsequent recovery by electrolysis for a municipal incinerator fly ash; Journal of Hazardous Materials; 58 (1-3); 103-120.
- [76] Youcai Z.; S. Lijie, L. Guojian; 2002; Chemical stabilization of MSW incineration fly ashes; Journal of Hazardous Materials; B95 (1-2); 47-63.