



Valorisation des sédiments de dragage dans des matrices polymères

Ilyas Ennahal

► To cite this version:

Ilyas Ennahal. Valorisation des sédiments de dragage dans des matrices polymères. Génie civil. Ecole nationale supérieure Mines-Télécom Lille Douai, 2019. Français. NNT : 2019MTLD0015 . tel-02890657

HAL Id: tel-02890657

<https://theses.hal.science/tel-02890657>

Submitted on 6 Jul 2020

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THÈSE

Présentée en vue
d'obtenir le grade de
DOCTEUR

en

Discipline : Génie Civil
Par

Ilyas ENNAHAL

**DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE LILLE 1
DELIVRE PAR IMT LILLE DOUAI**

Titre de la thèse:

**Valorisation des sédiments de dragage dans des matrices
polymères**

Soutenue le 14/06/2019 devant le jury d'examen

Président	<i>(le nom du président ne peut être arrêté que le jour de la soutenance)</i>
Rapporteur	<i>Christophe, Baley, Professeur, Université de Bretagne Sud</i>
Rapporteur	<i>Michèle, Quéneudec T'Kint, Professeur, Université de Picardie</i>
Membre	<i>Catherine, Gonzalez, Professeur, IMT Mines Alès</i>
Membre	<i>Nor-Edine, Abriak, Professeur, IMT Lille Douai</i>
Invité	<i>Walid, Maherzi, Maître-Assistant, IMT Lille Douai</i>
Directeur de thèse	<i>Mahfoud, Benzerzour, Professeur, IMT Lille Douai</i>
Encadrant de thèse	<i>Yannick, Mamindy-Pajany, Maître-Assistant-HDR, IMT Lille Douai</i>

Laboratoire d'accueil : Département : Génie Civil et Environnemental de IMT Lille Douai

Ecole Doctorale SPI 072

SOMMAIRE

INTRODUCTION GÉNÉRALE	9
CHAPITRE I : ETAT DES CONNAISSANCES	15
I.1 Caractéristiques des sédiments	16
I.1.1 Définition	16
I.1.2 Granulométrie	16
I.1.3 Composition	17
I.2 Les filières de gestion	21
I.3 Acceptabilité environnementale des matériaux alternatifs dans le domaine du génie civil	27
I.3.1 L'approche «substances»	31
I.3.2 La méthodologie de l'ÉRE	32
I.3.3 Principes de la méthode d'éco-compatibilité	34
I.3.4 La norme européenne NF EN 12920+A1	37
I.4 La méthodologie SEDIMATERIAUX	39
I.4.1 Contexte et objectifs de la démarche SEDIMATERIAUX	39
I.4.2 Approche déclinée pour la définition des filières	40
I.4.3 Méthodologie d'élaboration des cahiers des charges environnementaux	42
I.4.4 Méthodologie d'élaboration des cahiers des charges techniques	44
I.5 Réglementation applicable aux produits de construction	44
I.5.1 Méthodologie d'évaluation environnementale des produits de construction	45
I.6 Les matériaux composites	57

I.6.1 éfinition.....	57
I.6.2 Structure d'un matériau composite.....	58
I.6.3 Mortier polymère ou la composites à matrice organique	59
I.6.4 les facteurs influent sur les propriétés des mortiers/bétons polymères.....	67
I.7 Liste des Tableaux.....	71
I.8 Liste des Figures.....	72
I.9 Références	74
CHAPITRE II : FORMULATION DE MORTIERS À MATRICE THERMODURCISSABLE À BASE DE SÉDIMENTS.....	81
II.1 Introduction.....	82
II.2 Démarche expérimentale	82
II.3 Résultats de caractérisation des mortiers de polymères à base de sédiments	84
II.4 Conclusion	84
II.5 “Study the polymer mortar based on dredged sediments and epoxy resin: Effect of the sediments on the behavior of the polymer mortar”.Article soumis le 03-04-19 dans le journal “ Powder Technology “	87
II.6 “Eco-friendly polymers mortar for floor covering based on dredged sediments of the north of France”.Article publié le 15 February 2019 dans “journal of material cycles and waste management“	130
CHAPITRE III : FORMULATION DE COMPOSITES THERMOPLASTIQUES À BASE DE SÉDIMENTS	155
III.1 Introduction	156
III.2 Démarche expérimentale	156
III.3 Résultats de caractérisation des mortiers de polymères à base de sédiments.....	158
III.4 Conclusion	159

III.5 “Production and performance of lightweight aggregates based on blended of sediments and recycled thermoplastic waste. Article soumis le 29 octobre journal dans “Construction and Building MATERIALS“	160
CHAPITRE IV : ÉVALUATION DE L’ACCEPTABILITE ENVIRONNEMENTALE DES MONOLITHES DE MORTIERS POLYMERES.....	191
IV.1 Introduction	192
IV.2 Démarche expérimentale	192
IV.3 Principaux résultats	193
IV.3.1 Comportement à la lixiviation des mortiers.....	193
IV.3.2 Vérification de la conformité environnementale des mortiers.....	194
IV.4 “Assessment of dynamic surface leaching of inorganic chemical substances from monolithic polymer mortars including dredged sediments”.Article soumis le 04-04-19 dans le journal “Environmental Science and Pollution Research”	196
CONCLUSION GÉNÉRALE	219
RESUME.....	223
ABSTRACT	224

Remerciements

J'adresse en premier lieu mes plus vifs remerciements au Professeur Mahfoud Benzerzour, mon directeur de thèse, pour ses conseils bienveillants et constructifs, mais également pour sa disponibilité et sa réactivité qui m'ont permis de mener à bien cette thèse dans une ambiance de travail extrêmement sereine. Je mesure la chance que j'ai d'avoir eu un tel suivi, adapté à ma façon de travailler, et je lui en suis particulièrement reconnaissante.

Je tiens ensuite à remercier mes encadrants, Dr Yannick MAMINDY-PAJANY et Dr Walid MAHERZI, qui m'ont permis de développer les travaux. Je les remerciais pour leur patience, pour la qualité scientifique apportée dans ses travaux de recherche et par conséquent dans mon projet.

Monsieur le Professeur Abriak Nor-Edine, je vous remercie d'avoir accepté de présider cette soutenance de thèse. Je vous adresse ma reconnaissance pour vos conseils pour la sélection de revues scientifiques pertinentes et pour la relecture de ce travail. Un grand merci pour l'honneur que vous m'avez accordé en acceptant de faire partie des examinateurs de mon travail.

Je voudrais remercier Messieurs le Professeur Baley Christophe, Madame Quéneudec T'kint Michéle et Madame Gonzalez Catherine à qui j'exprime ma reconnaissance pour l'honneur que vous m'avez accordé en acceptant d'être membre de mon jury de thèse.

C'est avec une sincère et profonde reconnaissance que j'ai le plaisir de remercier toutes les personnes qui m'ont accompagné au cours de ces années de recherches initiées au

Département Génie Civil et Environnemental de l'Institut Mines-télécom Lille Douai (IMT Lille Douai).

Je tiens à remercier de tout cœur mes sœurs, mes très chers parents pour leur soutien généreux et inconditionnel, leurs judicieux conseils et leurs profondes affections. Merci pour tout ce que vous m'avez apporté tout au long de ma vie et en particulier tout au long de cette recherche.

.

INTRODUCTION GÉNÉRALE

L'accumulation de sédiments dans les ports, les canaux, les rivières et les plans d'eaux empêche la circulation des bateaux et perturbe les équilibres physico-chimiques des milieux aquatiques. Pour assurer le transport fluvial et portuaire mais également participer à l'entretien et la restauration des milieux naturels aquatiques, les gestionnaires doivent entreprendre des opérations de dragage. Les sédiments de dragage sont considérés comme des déchets dès lors que leur gestion à terre doit être envisagée (en particulier pour les sédiments marins non-immérgeables et les sédiments fluviaux).

Sur le domaine maritime, l'entretien annuel de l'ensemble des ports français (commerce, pêche, plaisance) représente environ 50 millions de m³ de sédiments dragués. Pour la région des Hauts-de-France le volume de sédiments marins à draguer annuellement s'élève à près de 5 millions de m³, principalement produit par le Grand Port Maritime de Dunkerque

(GPMD). La quasi-totalité des sédiments marins qui sont dragués sont ensuite immergés. Toutefois, depuis 2009, le GPMD gère à terre environ 50 000 m³/an de sédiments marins dont les seuils de contamination rendent les autorisations d'immersion plus complexe à obtenir (volume représentant actuellement 1 % du volume total de sédiments marins dragués en région). Sur les 10 prochaines années, les volumes de dragage nécessaires à l'entretien des installations Portuaires sont estimés à près de 7 millions de m³/an dont 5 à 10 % devront être gérés à terre. Il faut souligner que cette estimation ne tient pas compte des besoins de dragage supplémentaire liés à des travaux spécifiques, ni à l'évolution (renforcement) des seuils réglementaires d'autorisation d'immersion des sédiments marins (ou de mise en place par l'Etat d'un seuil d'interdiction d'immersion).

Sur le domaine fluvial, 6 millions de m³ sont extraits tous les ans en France alors que les besoins, pour assurer la navigabilité et l'écoulement naturel des eaux, sont estimés à 9 millions de m³/an (cette valeur n'incluant pas les besoins en matière de reconquête écologique du milieu naturel). Pour les Hauts-de-France le volume de sédiments fluviaux curés représente, sur les trois dernières années, entre 140 000 et 230 000 m³/an. Ces volumes sont en baisse constante depuis plusieurs années du fait des contraintes budgétaires imposées aux Voies Navigables de France (VNF) pour les opérations de curage, alors que les besoins ont été estimés en 2008 à 10 millions de m³ sur 20 ans pour répondre aux besoins de navigabilité des seuls départements des Hauts de France. A ces aspects budgétaires, qui obligent désormais les VNF à prioriser les opérations de curage sur le réseau principal de navigation, viennent s'ajouter de nombreuses autres contraintes de gestion des sédiments non inertes

comme : (i) la baisse très importante des capacités actuelles autorisées de stockage interne de VNF ; (ii) le renforcement des conditions d'autorisation et d'exploitation pour la création de nouveaux centres de stockage interne et difficultés d'acceptabilité par les populations locales (syndrome NIMBY) ; (iii) les coûts très élevés du stockage en centres collectifs externes (ISDND - Installation de Stockage de Déchets Non Dangereux).

L'article 2, de la directive 2008/98/CE du Parlement européen et du Conseil du 19 novembre 2008 relative aux déchets et abrogeant certaines directives a clarifié le statut des sédiments, en ne les excluant de son champ d'application que lorsqu'ils sont simplement déplacés au sein des eaux de surface, et non dangereux. A contrario, dès lors que les sédiments sont dangereux ou qu'ils sont gérés à terre, ils deviennent des déchets. En France, l'encadrement réglementaire des sédiments de dragage et de curage reste aujourd'hui à préciser concernant les conditions générales de leur gestion à terre, en particulier vers des filières de valorisation alternatives au stockage (définition de seuils réglementaires par filières de valorisation, responsabilités juridiques des acteurs impliqués, conditions de sortie du statut déchets, etc.).

De fait, l'absence de solutions industrielles de valorisation des sédiments génère, depuis plusieurs années, des situations de blocage problématiques et parfois préjudiciables pour de nombreuses collectivités territoriales ainsi que les gestionnaires portuaires et fluviaux confrontés à la gestion de sédiments non inertes.

De plus, les conditions de valorisation à terre des sédiments de curage étant plus structurées dans d'autres pays européens limitrophes, les entreprises belges remportent actuellement la grande majorité des marchés d'appels d'offres pour les opérations de curage et gestion des sédiments non inertes (pour un montant d'opérations d'environ 5M€/an selon les données de VNF).

Au regard de la problématique régionale et des enjeux identifiés, le Grand Port Maritime de Dunkerque et l'Ecole des Mines de Douai ont lancé des premiers programmes de R&D pour la valorisation des sédiments marins dès le début des années 2000.

La dynamique initiée en région Hauts-de-France a pris une nouvelle dimension avec le lancement officiel, en juin 2009, de la démarche SEDIMATERIAUX en associant autour de la signature d'une Charte de préfiguration, l'Etat (Ministère de l'Environnement, Préfecture de Région), le Conseil régional Nord - Pas de Calais, l'association Cd2e et l'Ecole des Mines de Douai.

Par la réalisation d'ouvrages expérimentaux à échelle 1 intégrant des sédiments, la démarche SEDIMATERIAUX vise le développement, à terme, de filières opérationnelles de

valorisation des sédiments de dragage (routes, pistes cyclables, bétons et coulis, étanchéité, aménagements paysagers, composites, etc.). Ces ouvrages, instrumentés et suivis pendant un an, permettent de démontrer la faisabilité environnementale, technique et économique des filières de valorisation auxquelles ils se réfèrent et permettent de capitaliser les données utiles à de futures évolutions et précisions du cadre réglementaire.

C'est dans ce contexte que ce travail de thèse se propose d'étudier la faisabilité de la valorisation des sédiments de dragage et de curage (fluviaux et marins) traités par des liants polymères thermoplastiques et thermodurcissables. Ce type de traitement est classiquement utilisé pour la formulation de bétons ou mortiers polymères présentant de très bonnes résistances à l'humidité et à la corrosion. L'utilisation de liants polymères plutôt que des liants hydrauliques améliore significativement le comportement mécanique général des matériaux et permet d'avoir de meilleures performances en termes de durabilité : résistance élevée à l'abrasion, carbonatation limitée, et une bonne imperméabilité aux ions chlorures et sulfates. Toutefois, malgré ces nombreux avantages, l'utilisation de ce type de traitement à l'échelle industrielle reste marginale dans le domaine de la valorisation des matières premières secondaires. L'exploration de cette nouvelle voie de traitement des sédiments vise à identifier de nouveaux usages à valeur ajoutée de type dallages pour revêtements de sols et granulats légers pour l'élaboration de bétons légers en vue de futurs développements à l'échelle industrielle. L'approche méthodologique utilisée dans ce travail de thèse consiste, d'une part à mettre en place une méthode optimale de formulation des mortiers polymères à base de matières premières secondaires, en tenant compte des principaux paramètres d'influence (nature du liant, taux de liants, caractéristiques physico-chimiques des sédiments, taux de matières organiques), et d'autre part, en réalisant des essais multi-physiques et environnementaux, à valider les usages au regard des cahiers de charges techniques et environnementaux. Ce travail de thèse s'articule autour de 4 grandes parties :

Le chapitre I est une synthèse bibliographique consacrée à l'état des connaissances sur les propriétés physico-chimico-géotechniques des sédiments de dragage et de curage. Les principales études portant sur la formulation des bétons et mortiers polymères y sont également décrites. Un intérêt particulier est porté sur les grandes familles de liants polymères (thermoplastiques et thermodurcissables) et les propriétés des charges minérales. Une partie de cette synthèse bibliographique est consacrée aux travaux traitant de l'utilisation des déchets et/ou sous-produits industriels dans les matrices polymères. Enfin, la problématique de l'acceptabilité environnementale des matières premières secondaires dans les filières de

valorisation sera également abordée avec la présentation des principales méthodologies développées à l'échelle locale, nationale et européenne pour juger de la conformité des matériaux fabriqués.

Le chapitre II, présente l'étude de formulation des sédiments liés par des polymères thermodurcissables, les résultats y sont présentés sous forme d'articles en anglais. Le premier article traite de la formulation de mortiers polymères à partir de sédiments et de résines thermodurcissables en s'appuyant sur la méthode de compacité. Le second article porte sur la vérification de la conformité des matériaux polymères pour un usage en revêtement de sols selon le référentiel UPEC.

La chapitre III, porte sur l'étude de la formulation de matériaux polymères thermoplastiques, les résultats y sont décrits à travers deux articles. Le premier article est une étude sur la formulation de granulats légers par extrusion. Les performances mécaniques et environnementales de ces granulats ont été évaluées afin de statuer leur conformité en vue d'une intégration dans les mortiers hydrauliques. Le deuxième article présente une étude d'optimisation des formulations de mortiers polymères à matrice thermoplastiques à base de sédiment pour une application en revêtement des sols dont les exigences sont encadrées par l'UPEC.

Dans le chapitre IV, la question de l'acceptabilité environnementale des matériaux fabriqués au regard de la réglementation en vigueur sur les produits de construction est abordée. Deux séries de formulation contenant 30 et 50% de sédiments sont étudiées dans l'essai de lixiviation dynamique sur monolithes selon les recommandations de la norme NF EN 15863. Cette étude, vise à étudier le comportement des substances inorganiques dans les matériaux fabriqués et de statuer sur leur conformité environnementale.

Les conclusions générales et les perspectives clôturent ce mémoire en synthétisant les principaux résultats obtenus sur la faisabilité de la réutilisation des sédiments de dragage et des plastiques recyclés dans des matériaux composites.

CHAPITRE I : ETAT DES CONNAISSANCES

Sommaire

I.1 Caractéristiques des sédiments

I.2 Les filières de gestion

I.3 Acceptabilité environnementale des matériaux alternatifs dans le domaine du génie civil

I.4 La méthodologie SEDIMATERIAUX

I.5 Réglementation applicable aux produits de construction

I.6 Les matériaux composites

I.7 Liste des Tableaux

I.8 Liste des Figures

I.9 Références

I.1 Caractéristiques des sédiments

I.1.1 Définition

Un sédiment est un dépôt de matériaux détritiques minéraux et organiques. Les sédiments peuvent être d'origine allochtone quand ils sont issus de l'érosion du bassin versant par des agents dynamiques externes comme le vent ou l'eau, ou d'origine autochtone lorsqu'ils se forment par précipitation de composés minéraux (carbonates, phosphates, évaporites) et sédimentation de matières organiques (organismes planctoniques morts) [1]. Leur granulométrie ainsi que leur composition physico-chimique sont des paramètres essentiels pour la caractérisation de ces matériaux.

I.1.2 Granulométrie

Les particules sédimentaires se propagent dans l'environnement avec les mouvements des masses d'eaux marines et continentales et se déposent par gravité sur le fond, en fonction de leur granulométrie (Tableau 1) et de la vitesse d'écoulement du courant. Les sédiments se caractérisent essentiellement par une fraction minérale grossière (fraction sableuse) et une fraction plus fine (la vase) [2]:

- Les sédiments grossiers contiennent essentiellement des particules d'un diamètre supérieur à 63 μm et sont principalement constitués de sable et de matériaux inorganiques silicatés. Les sédiments sableux présentent : une faible cohésion, une petite surface de contact entre les différentes particules du sédiment et peu d'affinité pour les contaminants [3].
- Les sédiments fins, aussi appelés vases, sont composés de particules d'une taille inférieure à 63 μm et sont constitués d'argiles ayant un diamètre compris entre 0,2 et 2 μm et de silt ayant un diamètre compris entre 2 μm et 63 μm . Cette fraction fine contient généralement des minéraux argileux et de la matière organique [4]. Les particules fines présentent une forte cohésion entre elles, la surface de contact est importante entre les particules. La prédominance des minéraux argileux, chargés négativement, donne un grand pouvoir adsorbant à la fraction fine des sédiments vis-à-vis des contaminants métalliques [5] [6]. Quant à la matière organique sédimentaire elle est constituée de macromolécules hétérogènes présentant des sites hydrophiles qui facilitent sa fixation à la surface des particules minérales réactives (minéraux argileux) et la formation de nombreux complexes avec les contaminants métalliques et organiques [7].

Tableau 1 Granulométrie typique des sédiments marins et fluviaux français (pour la fraction < 2mm)

Origine des sédiments	Marine [6]			Fluviale [7]		
Statistiques sur sédiment sec	Argile (%) ($0 < \phi < 2 \mu\text{m}$)	Limon (%) ($2 < \phi < 63 \mu\text{m}$)	Sable (%) ($63 < \phi < 2000 \mu\text{m}$)	Argile (%) ($0 < \phi < 2 \mu\text{m}$)	Limon (%) ($2 < \phi < 50/63 \mu\text{m}$)	Sable (%) ($50/63 < \phi < 2000 \mu\text{m}$)
Nombre de données	710			1138		
Moyenne	8,1	60,0	31,9	14,4	47,4	38,2
Médiane	5,7	63,0	27,3	11,9	52,3	29,5
Minimum	0	0,1	0	0	0	0,01
Maximum	52,3	90,8	99,9	55,7	93,7	100

I.1.3 Composition

Les sédiments constituent une matrice très hétérogène et sont principalement constitués de particules minérales (Tableau 2) et de matières organiques végétales et animales (Tableau 3). Leur porosité est susceptible d'être occupée par de l'eau interstitielle et une phase gazeuse dont les compositions sont variables suivant la provenance des matériaux. La figure 2 reporte les constituants fréquemment rencontrés dans les matrices sédimentaires [8],[9] :

Tableau 2 Principales phases cristallines présentes dans les sédiments marins et fluviaux français [8]

Groupe de minéraux	Minéraux	Formule chimique
SILICATES	Quartz Mica Feldspath Muscovite Albite Orthose	SiO_2 $\text{K}(\text{Mg, Fe, Al})_3\text{AlSi}_3\text{O}_{10}(\text{OH})_2$ $(\text{Na, Ca, K})\text{AlSi}_3\text{O}_8$ $\text{KAl}_2(\text{AlSi}_3\text{O}_{10})(\text{OH,F})_2$ $\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$ KAlSi_3O_8
ARGILES	Illite Montmorillonite Chlorite Kaolinite Vermiculites	$\text{KMgAl}_2\text{Si}_3\text{O}_{10}(\text{OH})_2$ $\text{XMgAlSiO}_{10}(\text{OH})_2$ $\text{Mg}_5\text{Al}_2\text{Si}_3\text{O}_{10}(\text{OH})_8$ $\text{Al}_3\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4$ $(\text{Mg,Ca})_{0,7}(\text{Mg,Fe,Al})_6(\text{Al,Si})_8\text{O}_{22}(\text{OH})_4 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$

CARBONATES	Ankérite Aragonite, Calcite Dolomite	Ca (Fe, Mg, Mn) (CO ₃) ₂ CaCO ₃ CaMg(CO ₃) ₂
CHLORURES SULFATES	Halite Gypse	NaCl CaSO ₄ .2H ₂ O
(HYDR)OXYDE DE FER	Goethite Hématite Magnétite	FeOOH Fe ₂ O ₃ Fe ₃ O ₄
SULFURES	Pyrite	FeS ₂

Tableau 3 Teneur en carbone organique total dans les sédiments marins et fluviaux français

Statistiques sur sédiment sec	Carbone organique total mg/kg	
Origine des sédiments	Marine [6]	Fluviale [7]
Nombre de données	772	3 141
Moyenne	26 013	42 085
Médiane	25 000	34 000
Minimum	41	16
Maximum	252 500	758 000

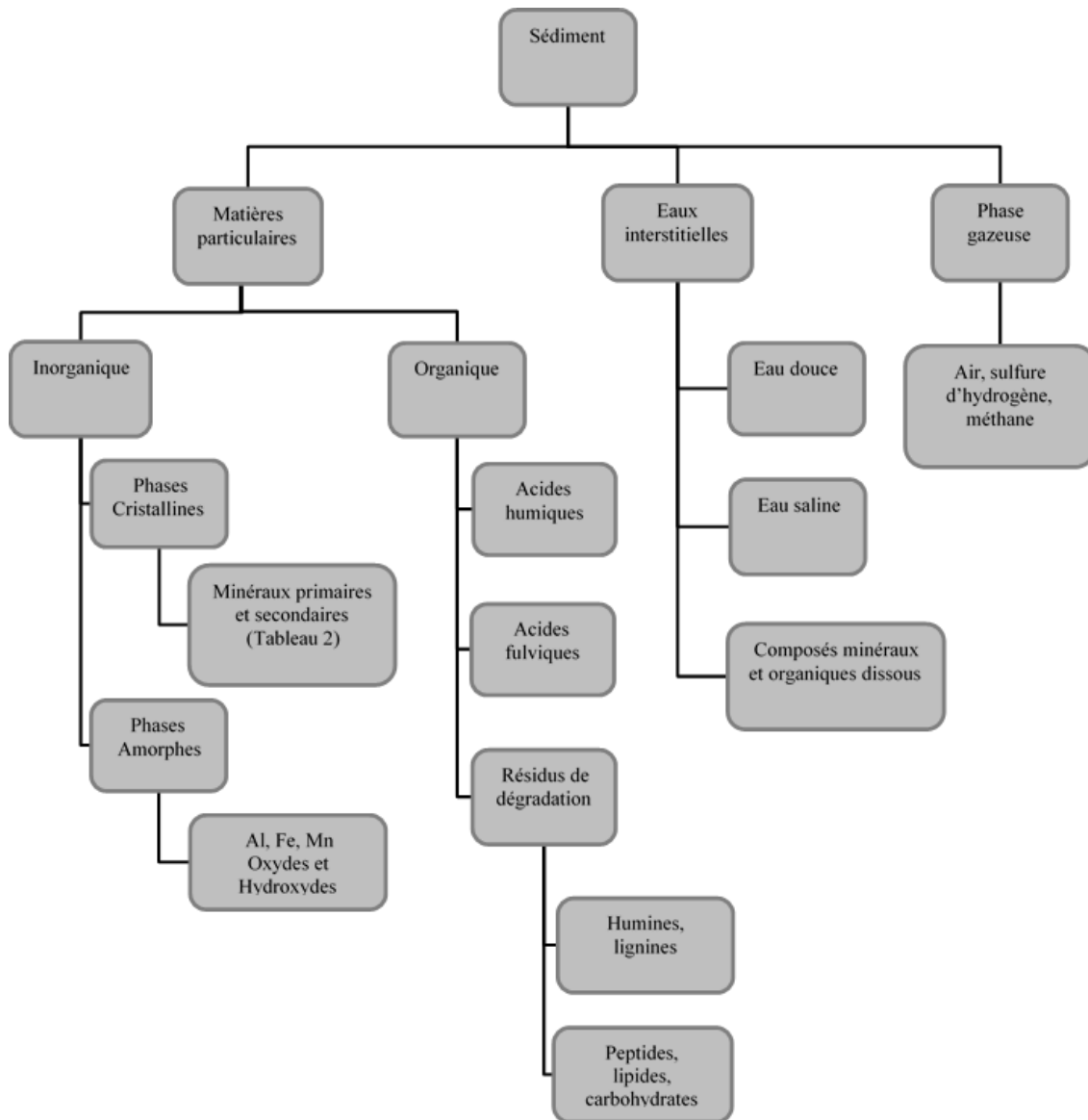


Figure 1 Les principaux constituants des matrices sédimentaires

L'eau interstitielle :

Elle correspond à l'eau qui occupe l'espace entre les particules sédimentaires et représente une fraction importante du sédiment avec généralement de 70 à 80 % de son volume (Fig. 2).

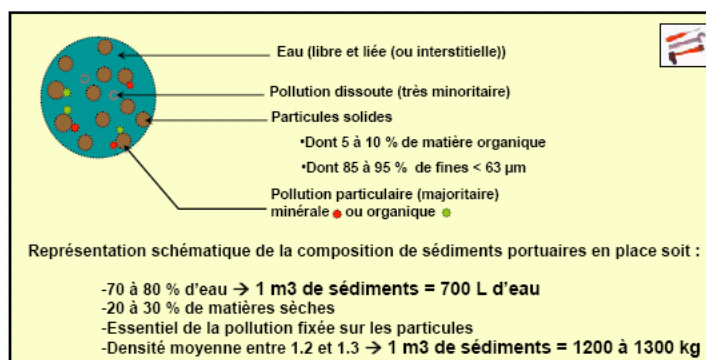


Figure 2 Schéma de la composition simplifiée d'un sédiment portuaire [9]

Les matériaux inorganiques :

Ils sont formés de minéraux provenant de l'écorce terrestre et de débris coquilliers. Ces composés sont principalement des argiles, des carbonates et des silicates. La taille des particules minérales est variable allant de la fraction colloïdale à la fraction sableuse. Les particules inorganiques sont généralement enrobées d'hydroxyde de fer et de manganèse et de substances organiques qui leur confèrent une grande capacité d'adsorption vis-à-vis des contaminants minéraux et organiques.

La matière organique :

Elle n'occupe qu'un faible volume du sédiment Figure 1 et se compose de débris organiques d'origine végétale et animale provenant du milieu continental et/ou du milieu marin. Le compartiment organique du sédiment joue un rôle primordial sur la régulation de la mobilité et de la biodisponibilité d'un grand nombre de contaminants, en particulier les composés organiques non ioniques. La matière organique est constituée de nombreuses molécules différentes telles que des protéines, des polysaccharides, des lipides, des acides humiques et fulviques. Parmi ces molécules, les acides humiques jouent un rôle important dans les écosystèmes naturels car ils ont tendance à former des complexes organométalliques en phase aqueuse et à la surface des particules minérales et par conséquent à modifier la disponibilité des contaminants inorganiques. La présence de sites hydrophiles et hydrophobes favorise l'adsorption de la matière organique à la surface des particules minérales ainsi que la complexation des contaminants chargés et des molécules non chargées [7].

I.2 Les filières de gestion

Le devenir des sédiments de dragage est soumis au même principe de hiérarchisation de la filière «déchets» : il faut, dans l'ordre, examiner les possibilités de réutilisation, recyclage, destruction ou traitement des constituants dangereux, d'évacuation à terre ou en mer. L'immersion en mer doit être évitée si d'autres solutions sont préférables pour l'environnement. Dans le cas où les techniques d'immersion ne sont ni possibles, ni souhaitables, compte tenu d'impératifs environnementaux (absence de zones d'immersion ou colmatage des fonds par exemple) ou sanitaires qui doivent être pris en compte (protection de zones désignées pour la protection des espèces aquatiques importantes du point de vue économique), une gestion à terre devient alors inévitable (Circulaire du 4 juillet 2008¹) (figure 3).

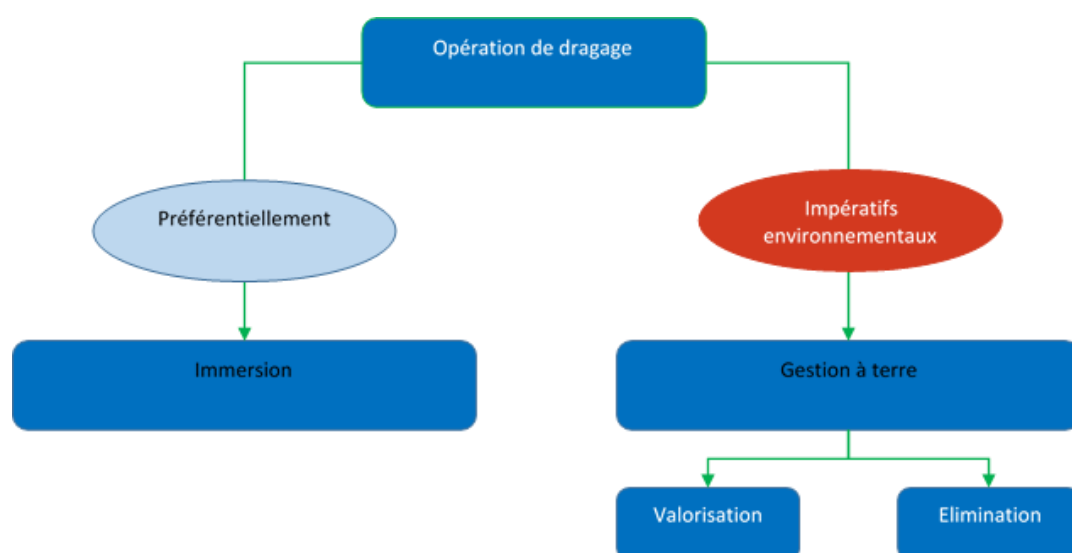


Figure 3 Gestion des sédiments extraits lors de travaux ou d'opérations impliquant des dragages maritimes - Circulaire du 4 juillet 2008

La circulaire «dragage» du 04/07/2008 propose en premier lieu la commercialisation ou la valorisation à terre des sédiments. Quelle que soit la référence réglementaire prise en compte (déchet ou matériaux de dragage), l'objectif est de réduire au minimum le déchet dit

¹ Circulaire du 04/07/2008 relative à la procédure concernant la gestion des sédiments lors de travaux ou d'opérations impliquant des dragages ou curages maritimes et fluviaux.

«ultime» (destiné au stockage) donc de valoriser au maximum. Selon le décret du 18/04/2002² et au titre de la nomenclature européenne ICPE3, complétée par le décret 2013-369 du 13/04/2010⁴, les sédiments de dragage figurent comme «déchets» aux rubriques 17 05 05* (si le sédiment contient des substances dangereuses) ou 17 05 06 (dans le cas contraire). Cette caractéristique de disposer de deux options possibles de classement selon leurs propriétés de danger est commune à un certain nombre de déchets dénommés «entrées miroirs». Ce qui implique l'analyse de la dangerosité des sédiments au regard des propriétés de danger.

La directive cadre «déchets» constitue le cadre réglementaire communautaire de l'évaluation de la dangerosité des déchets. Avant le 1er juin 2015, ces propriétés de danger étaient appelées H1 à H15. La décision de la Commission européenne du 18 décembre 2014 les a renommées HP1 à HP15 afin d'éviter toute confusion avec les mentions de danger HXXX du règlement CLP (mentions de danger s'appliquant à des substances ou mélanges, et désignées par un code à trois chiffres : H200, H330, H411, etc.).

La dangerosité d'un déchet se juge à partir des 15 propriétés définies dans le tableau 4, qu'il est nécessaire de renseigner. Si le déchet ne satisfait pas un seul de ces critères, il doit être considéré comme dangereux et géré comme tel (traitement en vue de supprimer son caractère dangereux, élimination par incinération ou stockage dans les installations de déchets dangereux).

Les données et le retour d'expérience s'accumulant progressivement, il est à présent possible d'écarter les propriétés de danger HP1, HP2, HP3 et HP15 lors de la caractérisation de la dangerosité des sédiments de dragage.

² Décret n°2002-540 du 18 avril 2002 relatif à la classification des déchets. NOR : ATEP0190045D

³ ICPE : Installations Classées pour la Protection de l'Environnement

⁴ Décret n°2010-369 du 13 avril 2010 modifiant la nomenclature des installations classées. NOR: DEVP0927400D

Tableau 4 Propriétés de danger présentées dans le Règlement 1357/2014/UE⁵, remplaçant l'annexe III de la directive 2008/98/CE⁶.

Propriétés	Caractéristiques
HP1	«Explosif»
HP2	«Comburant»
HP3	«Inflammable»
HP4	«Irritant- irritation cutanée et lésions oculaires»
HP5	«Toxicité spécifique pour un organe cible (STOT)/ Toxicité par aspiration»
HP6	«Toxicité aiguë»
HP7	«Cancérogène»
HP 8	«Corrosif»
HP 9	«Infectieux»
HP10	«Toxique pour la reproduction»
HP11	«Mutagène»
HP12	«Dégagement d'un gaz à toxicité aiguë»
HP13	«Sensibilisant»
HP14	«Ecotoxique»
HP15	«Déchet capable de présenter une des propriétés dangereuses susmentionnées que ne présente pas directement le déchet d'origine»

⁵ Règlement UE N°1357/2014 de la Commission du 18 décembre 2014 remplaçant l'annexe III de la directive 2008/98/CE du Parlement européen et du Conseil relative aux déchets et abrogeant certaines directives.

⁶ Directive n°2008/98/CE du 19/11/08 relative aux déchets et abrogeant certaines directives.

Parmi ces propriétés, cinq peuvent être évaluées grâce à des essais de laboratoire, huit font l'objet d'une démarche calculatoire sur la base d'analyses chimiques et l'application de règles de classement, et deux n'ont pas encore de méthodes d'évaluation officielles.

La propriété HP9 peut être écartée éventuellement, si aucun rejet de station de traitement des eaux usées ne se situe à proximité de la zone de dragage. En cas de suspicion d'impact, il est proposé d'adopter la procédure relevant de la réglementation sur la valorisation des boues issues du traitement des eaux usées.

La propriété HP12 dispose à présent d'un protocole de caractérisation bien que ce dernier soit encore à l'état de test. Cependant, il paraît possible d'écarter cette propriété dans le cadre de la classification de la dangerosité des sédiments compte tenu des résultats, tous négatifs, obtenus sur les sédiments au cours de ces premiers tests.

Les propriétés HP4 à HP8, HP10, HP11 et HP13 s'évaluent, en première approche grâce à des valeurs de concentrations indicatives élaborées par le CEREMA et l'INERIS (tableaux 5 et 6) [10].

Pour rappel, les tableaux de valeurs proposés s'exploitent de la manière suivante:

- Si, après analyse du sédiment, aucune valeur n'est supérieure à celle des tableaux 5 et 6, alors, le sédiment peut être classé non dangereux au titre des propriétés de danger HP4, HP5, HP6, HP7, HP8, HP10, HP11 et HP13,
- Si l'une des valeurs mesurées est supérieure à celle du tableau 5 pour les métaux, alors, les investigations supplémentaires (calcul « pire cas avec information » ou/et détermination de la spéciation vraie) peuvent être entreprises mais en se référant à la méthode complète de caractérisation de la dangerosité vis-à-vis de ces propriétés, déterminée par calcul à partir de la connaissance en substances du déchet.
- Si l'une des valeurs mesurées est supérieure à celle du tableau 6 pour les substances organiques ou le tributylétain, alors le sédiment doit être classé comme dangereux.

Avant de se lancer éventuellement dans la caractérisation de la spéciation vraie, il est recommandé de déterminer la propriété HP14 qui, au final, est la seule propriété de danger demandant systématiquement la réalisation de mesures expérimentales.

On notera également que le champ couvert permettant d'apprécier par comparaison de valeurs les propriétés HP4 à HP8, HP10, HP11 et HP13, est celui des polluants suivis dans le cadre de la réglementation applicable aux opérations de dragage, à savoir :

- Huit éléments minéraux : As, Cd, Cr, Cu, Hg, Ni, Pb, Zn;

- 7 congénères des PCB: 28, 52, 101, 118, 138, 153, 180;
- 16 congénères des HAP: naphthalène, acénaphène, acénaphylène, fluorène, anthracène, phénanthrène, fluoranthène, pyrène, benzo[a]anthracène, chrysène, benzo[b]fluoranthène, benzo[k]fluoranthène, benzo[a]pyrène, dibenzo[a,h]anthracène, benzo[g,h,i]pérylène, indéno[1,2,3-cd]pyrène;
- Pour les sédiments marins: le tributylétain.

Si la présence d'autres polluants est avérée, la méthode de caractérisation de la dangerosité doit être réalisée en se référant à la méthode complète de caractérisation de la dangerosité vis-à-vis de ces propriétés, déterminée par calcul à partir de la connaissance en substances du déchet.

Au final, pour être en mesure d'écarter certaines des propriétés de danger (dont HP9 et HP12) et discuter des propriétés HP4, HP5, HP6, HP7, HP8, HP10, HP11, HP13, il convient de réaliser une étude contextuelle et historique des rejets qui auraient pu conduire à une contamination spécifique des sédiments afin de s'assurer que ce dernier ne constitue pas une particularité. Le retour d'expérience sur la qualité du gisement de sédiment en France tend à montrer que dans la très grande majorité des cas, les opérations de dragage ne devraient pas générer de déchets dangereux.

Tableau 5 Valeurs indicatives en éléments traces permettant, de par leur construction, de garantir le caractère non dangereux des sédiments au titre des propriétés HP 4 à 8, HP10, HP11, et HP13.

Propriété	Propositions de seuils individuels (mg/Kg)
Arsenic	330
Cadmium	530
Chrome VI	250
Cuivre	4000
Mercuré	500
Nickel	130
Plomb	1000*
Zinc	7230

* Si le sédiment ne respecte pas la valeur de 1000 ppm fixée pour le plomb, il peut être encore jugé non dangereux si sa teneur en plomb n'excède pas 3000 ppm et celle en chrome VI reste inférieure à 50 ppm.

Il convient également de noter que seuls les sédiments non dangereux ou les fractions non dangereuses générées à partir d'un sédiment dangereux et relevant de la rubrique 17 05 06 peuvent faire l'objet d'une opération de valorisation. Les fractions dangereuses générées à l'issue d'une opération de traitement, relèvent de la rubrique 17 05 05* et doivent être éliminées en installations de stockage des déchets dangereux ou dans les installations de stockage de déchets de sédiments (dans le cas où les sédiments présentent une certaine stabilité bio-physico-chimique).

La valorisation des sédiments dans des filières industrielles peut constituer une véritable opportunité économique pour les territoires, dans les secteurs des travaux publics et de l'aménagement des infrastructures littorales. Elle constituerait aussi un concours concret et vertueux des entreprises au développement durable du territoire, grâce à la mise en place de boucles d'économie circulaire et à l'amélioration des performances du transport maritime.

Tableau 6 Valeurs indicatives en composés organiques et en tributylétain permettant, de par leur construction, de garantir le caractère non dangereux des sédiments au titre des propriétés HP4 à 8, HP10, HP11, et HP13.

Propriétés	Propositions de seuils individuels (mg/kg)	Proposition de seuils groupés (mg/kg)
PCB 28	50 pour la somme des 7 congénères	50 pour la somme des 7 congénères
PCB 52		
PCB 101		
PCB 118		
PCB 138		
PCB 153		
PCB 180		
Naphtalène	10000	500 pour la somme des congénères
Acénaphthylène	500	
Phénanthrène	50000	
Fluoranthène	50000	
Benzo(a)anthracène	1000	
Chrysène	1000	
Benzo(b) fluoranthène	1000	
Benzo(k) fluoranthène	1000	
Benzo(a)pyrène	1000	
Dibenzo (a,h)anthracène	1000	
Indéno (1,2,3-cd)pyrène	10000	
Tributylétain	3000	3000

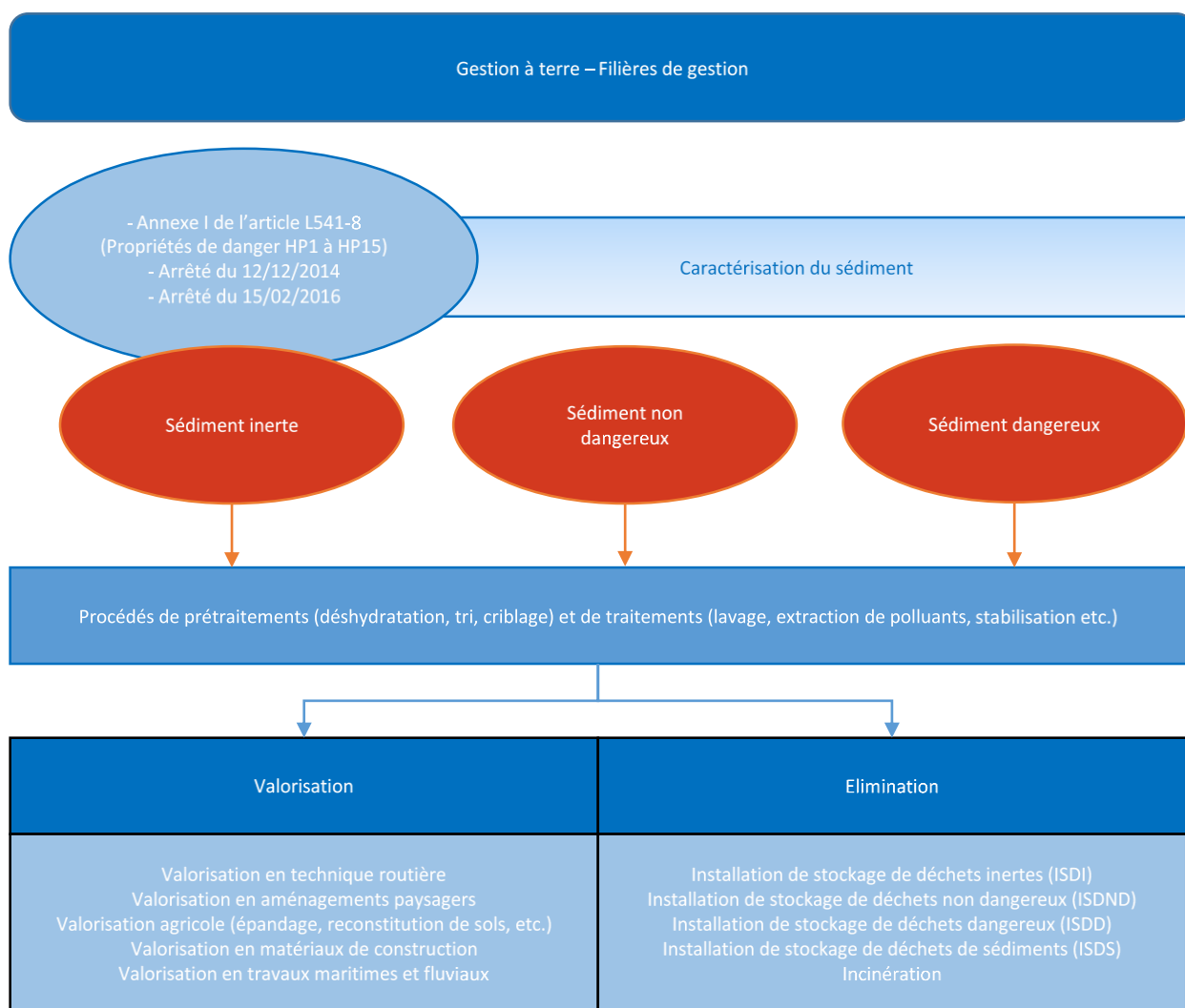


Figure 4 Voies possibles de valorisation ou d'élimination des sédiments en cas de gestion à terre[11]
Acceptabilité environnementale des déchets

I.3 Acceptabilité environnementale des matériaux alternatifs dans le domaine du génie civil

Chaque année en France, le secteur des travaux publics consomme environ 200 millions de tonnes de granulats. Le granulat correspond à un ensemble de grains minéraux qui selon sa dimension (comprise entre 0 et 125 mm) se situe dans l'une des 7 familles suivantes : fillers, sables, graviers, gravillons, ballast, enrochements. Il peut être :

- Naturel : d'origine minérale, issus de roches meubles (alluvions) ou de roches massives, n'ayant subi aucune transformation autre que mécanique (tels que le concassage, broyage, criblage, lavage) ;

- Artificiel : d'origine minérale résultant d'un procédé industriel comprenant des transformations thermiques ou autres. Les plus employés sont le laitier cristallisé concassé et le laitier granulé de haut fourneau ;
- Recyclé : obtenu par traitement d'une matière inorganique utilisée précédemment dans la construction, tels que des bétons de démolition de bâtiments.

Un déchet peut être valorisé comme matière première secondaire, soit comme un granulats recyclé (béton concassé), soit comme un granulats artificiel (laitiers, schistes) sous condition de répondre a minima, comme tout granulats, aux spécifications des normes européennes sur les granulats. Les sédiments de dragage appartiennent à la famille des granulats naturels tout en étant assimilés à des déchets dès lors qu'ils sont déposés à terre après l'opération de dragage. Depuis trois décennies de nombreux projets R&D menés sur le territoire national et à l'international ont permis de démontrer que la valorisation des sédiments dans le secteur des travaux publics ne présentait pas de limites majeures sur le plan technique. Cependant, même si les produits fabriqués en laboratoire ou à échelle pilote ont les qualités techniques requises, le passage à l'échelle industrielle se heurte très généralement au coût financier mais également aux contraintes induites par la fabrication de produits à partir d'un gisement de déchets hétérogènes parfois contaminés. Ainsi, les gisements de sédiments destinés aux filières de valorisation doivent aussi vérifier des conditions d'acceptabilité d'un point de vue environnemental (notamment en termes d'émissions de polluants).

Dans le contexte de la gestion des déchets, l'évaluation environnementale consiste à (i) estimer les impacts potentiels qu'un scénario de gestion engendrera sur l'environnement lors de sa mise en œuvre dans des conditions normales ou exceptionnelles; (ii) comparer ses impacts à des seuils réglementaires ou à d'autres systèmes témoins, et (iii) sélectionner l'usage le plus adapté aux caractéristiques des gisements concernés.

Pour prévoir les impacts potentiels de l'usage d'un déchet sur l'environnement, le scénario étudié peut être conceptualisé par une approche d'évaluation détaillée des risques. La figure 5 regroupe les méthodologies appliquées à l'échelle nationale pour l'évaluation environnementale des déchets. L'ensemble de ces méthodologies ont été appliquées aux sédiments de dragage dans le cadre de projets R&D, le plus souvent dans la perspective de leur valorisation [12] [13] [14]

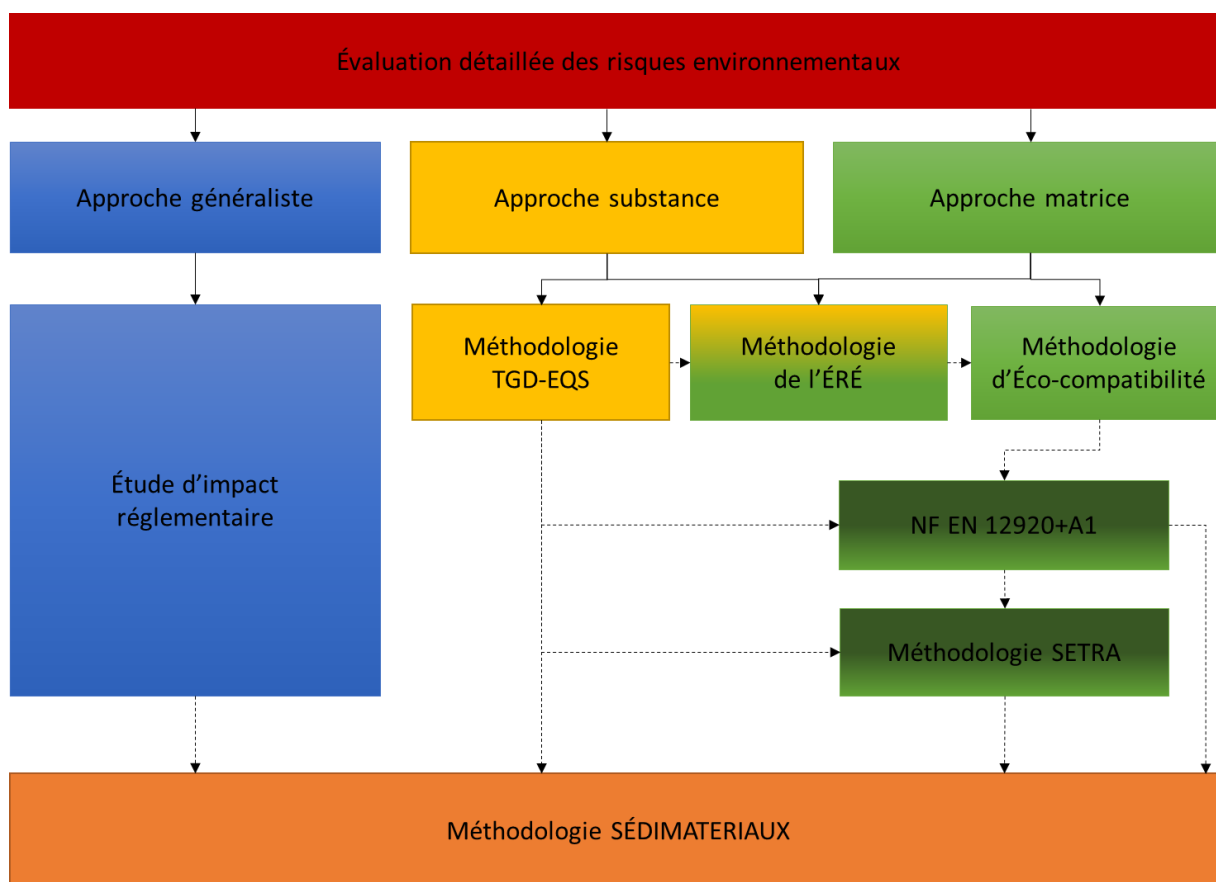


Figure 5 Classification des méthodologies nationales d'évaluation environnementale utilisées dans le domaine de la gestion des déchets [11]

Dans l'évaluation détaillée des risques, le scénario est formalisé tel que le déchet constitue une source de stressors (polluants, nuisances...) sur un horizon de temps et d'espace fixé. La mobilisation et la propagation des stressors dans le milieu aboutissent à une configuration interactive d'exposition des cibles (organismes, écosystèmes, etc.). L'évaluation des impacts se base sur la caractérisation spatio-temporelle de l'exposition des cibles et des effets associés à cette exposition. L'évaluation des risques encourus par les écosystèmes estime la possibilité d'apparition d'effets négatifs (altération de la capacité fonctionnelle, morbidité, mortalité) tant pour l'individu isolé que pour l'écosystème global suite à leur exposition à des agents stressors (polluant, modification climatique, etc.).

Parmi l'ensemble des méthodologies listées dans la figure 5, trois grandes typologies de démarche se dégagent :

- 1) **Les méthodologies généralistes** se veulent exhaustives et évaluent les risques environnementaux engendrés par tout type de stressors (de nature physique, chimique, ou biologique) et tout type d'écosystèmes. Elles se traduisent par la réalisation d'une étude d'impact traduisant la démarche d'évaluation

environnementale mise en place par un maître d'ouvrage, dans un objectif d'intégrer les préoccupations environnementales dans la conception de son projet. Cette démarche est une réflexion approfondie sur l'impact d'un projet sur l'environnement, conduite par le maître d'ouvrage au même titre qu'il étudie la faisabilité technique et économique de son projet. Le dossier expose, notamment la façon dont le maître d'ouvrage a pris en compte l'environnement tout au long de la conception de son projet et les dispositions sur lesquelles il s'engage pour en atténuer les impacts et les suivis qu'il met en place pour mesurer ces effets. La démarche doit répondre à trois objectifs : (i) Aider le maître d'ouvrage à concevoir un projet respectueux de l'environnement, en lui fournissant des indications de nature à améliorer la qualité de son projet et à favoriser son insertion dans l'environnement; (ii) Eclairer l'autorité administrative compétente à prendre une décision sur sa nature et son contenu; et (iii) Informer le public concerné. Le guide intitulé « Evaluation environnementale - Guide de lecture de la nomenclature des études d'impact (R. 122-2) » vise à faciliter la mise en œuvre de la réforme opérée par l'ordonnance du 3 août 2016 et le décret du 11 août 2016 relatifs à la modification des règles applicables à l'évaluation environnementale des projets, plans et programmes.

- 2) **Des méthodologies substances** se focalisent sur les impacts associés à une substance chimique particulière. Un exemple est la méthodologie du TGD-EQS (guide technique européen pour la construction des normes de qualité environnementales) : l'écotoxicité de chaque substance est considérée pour un écosystème et une cible donnés et indépendamment des autres substances, sans intégrer les effets de synergie ou d'antagonisme que leur mélange peut occasionner.
- 3) **Des méthodologies matrices** ont été développées pour l'évaluation des risques associés à une matrice solide particulière : sites et sols pollués, et les matériaux alternatifs dont les sédiments de dragage et de curage. Cette approche est illustrée dans la figure 5 par les méthodologies : «Eco-compatibilité de l'ADEME (2002)», de la norme européenne «NF EN 12920+A1», et du «SETRA (2011)» pour la valorisation des matériaux alternatifs.

L'approche globale déclinée dans la méthodologie «SEDIMATERIAUX» est spécifique aux sédiments de dragage et de curage et vise leur valorisation dans un contexte opérationnel. Par conséquent, cette approche scientifique holistique combine les outils développés dans les méthodologies dites «généralistes», «substances» et «matrices» pour garantir l'innocuité

environnementale de scénarii de valorisation sur un site géographique donné. Cette approche constitue une donc une véritable évaluation détaillée des risques environnementaux combinant à la fois des outils réglementaires et scientifiques permettant de pallier à l'absence de textes réglementaires spécifiques sur la vérification de l'innocuité environnementale des sédiments de dragage et de curage.

Les approches «substances», «matrices», et la méthodologie scientifique de la «démarche SEDIMATERIAUX» sont précisées dans les sections suivantes.

I.3.1 L'approche «substances»

L'évaluation du risque chimique est définie par l'OECD⁷ (2003) [15] comme «le processus permettant de calculer ou d'estimer le risque pour un organisme cible, un système ou une population, suivant l'exposition d'un agent particulier en prenant en compte les caractéristiques inhérentes aux substances et à l'objet». Le processus d'évaluation du risque se décompose en 2 parties principales : 1/ l'analyse du risque, qui fait essentiellement référence au côté scientifique et 2/ la gestion du risque, qui est plus orientée vers une politique de gestion et des mesures législatives.

Dans le cadre de l'évaluation du risque des substances chimiques pour l'environnement, diverses méthodes sont proposées selon une approche en étage (dite « tier ») qui les classe selon leur niveau de représentativité environnementale et de complexité [16], [17] (figure 6). En bas de l'échelle, la méthode de tier 1 (méthode des facteurs de sécurité), est réalisée en premier : elle est plus facile à mettre en œuvre (réalisée à partir d'un faible jeu de données) que les autres approches du système en étage et plus conservative [18] puisqu'elle est utilisée dans une optique de « pire cas ». Si la méthode de tier 1 détecte un risque, les méthodes de tier supérieur sont mises en œuvre afin d'estimer un risque plus spécifique au cas étudié. Les méthodes au milieu et en haut de l'échelle (« higher tier ») font appel à des méthodes de modélisation (qui requièrent des données supplémentaires) ou à des expérimentations réalisées à des niveaux d'organisations biologiques complexes de types

⁷ Organisation de Coopération et de Développement Economiques

microcosmes et mésocosmes [19] [88], [20] L'approche en étape permet également de calibrer le «lower tier» en fonction des résultats obtenus en «higher tier».

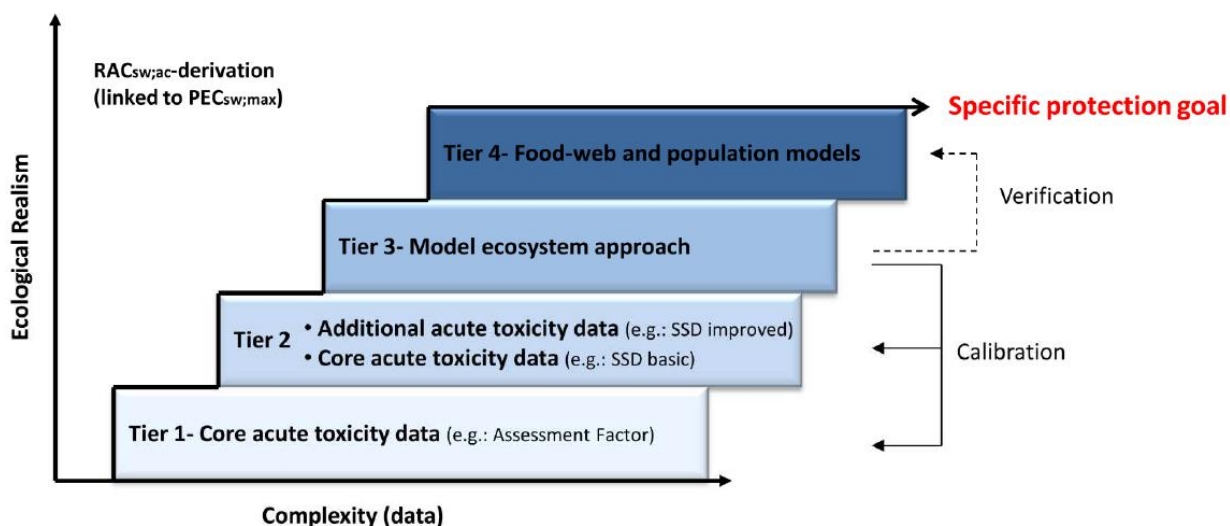


Figure 6 Approche graduée pour l'évaluation du risque des substances chimiques pour l'environnement

I.3.2 La méthodologie de l'ÉRE

L'évaluation des risques environnementaux (ÉRE) est une méthodologie apparue au début des années 90 [21] qui fait référence pour l'analyse des impacts sur les écosystèmes des activités humaines [22],[23],[24]. À l'origine, conçue pour l'analyse des risques liées aux sites pollués, des méthodologies spécifiques ont permis son adaptation à diverses situations, l'analyse des substances chimiques présentes sur le marché [25], le dépôt à terre de sédiments de dragage [13], éco-compatibilité des scénarii de valorisation de déchets [26] et l'analyse des risques liés aux effluents hospitaliers [27].

La déclinaison de l'ÉRE est possible selon deux approches : l'approche substance et l'approche matrice. Pour l'approche substance, on fait l'analyse des substances polluantes présentes et on étudie leurs transferts et leurs impacts séparément ou en mélange. La principale limite de cette approche étant que l'on néglige complètement la matrice et l'influence qu'elle peut avoir sur le transfert des substances et leur toxicité, on ignore aussi si la matrice ne contient pas d'autres substances polluantes que celles étudiées. L'approche matrice quant à elle étudie le matériau brut et la toxicité est alors étudiée en fonction de l'exposition à différents pourcentages de matrice. Cette approche est plus globale et présente pour inconvénient d'être trop spécifique. En effet, chaque matrice étant unique, l'ÉRE est à refaire à chaque nouveau projet. De plus, la mise en place de tests sur matrice demande

d'avantage de moyens logistiques que les tests sur des substances et sont plus coûteux. La méthodologie de l'ÉRE, présentée en figure 7, suit 4 étapes :

- une étape de formulation du problème, description du scénario. C'est-à-dire qu'il faut répondre aux questions suivantes : quelles sont les sources de contamination ? Quel est le danger qu'elles représentent ? Quelles sont leurs cibles potentielles, leur voies de transferts possibles ?
- une étape d'analyse de l'exposition des cibles aux dangers. C'est-à-dire une analyse de la source et de ses transferts vers les cibles afin de déterminer quelles sont les doses en contact avec les cibles. Pour l'approche substance, cette étape permet de calculer les PEC (Predicted Environmental Concentration) des substances présentes, c'est-à-dire pour chaque substance, sa concentration d'exposition aux organismes. Pour l'approche matrice, la «PEC» s'exprime en pourcentage de matrice dans l'environnement des organismes. Cette phase peut être complexe selon les scénarii, notamment lorsque les voies de transferts de polluants sont multiples [24].
- une étape d'analyse des effets sur les cibles, c'est-à-dire caractériser la sensibilité de l'écosystème touché par un polluant. Cette phase est basée sur les résultats de bioessais. Ces bioessais sont choisis en fonction des polluants testés (en approche substance) et des écosystèmes cibles. L'effet écotoxique est donné en NOEC (No Observable Effect Concentration) ou en EC20 (Effect Concentration sur 20% de la population). A l'aide de facteurs d'extrapolation ou de sécurité, on peut alors calculer la PNEC (Predicted No Effect Concentration), la concentration pour laquelle il n'y aura pas d'effet sur l'écosystème cible dans son ensemble. La PNEC calculée en approche substance suppose dans le cas de mélanges de polluants que les effets sont additifs, ce qui sans être toujours vrai, est fréquent [28] [29] [30]
- une étape de synthèse entre l'exposition des cibles et le danger des sources permettant de caractériser le risque. Il existe plusieurs méthodes de synthèse : les méthodes qualitatives (présence ou absence de risques), semi-quantitative (risque faible, moyen ou élevé), ou probabiliste (exprimé en pourcentages, [24]). La méthode la plus employée est semi-quantitative, elle consiste à déterminer le quotient PEC/PNEC, si le résultat est supérieur à 1 le risque est significatif, si le

résultat est inférieur, on le néglige. Les résultats proches de 1 sont considérés comme moyens et peuvent faire l'objet d'une réévaluation avec des paramètres plus proches de la réalité quand c'est possible.

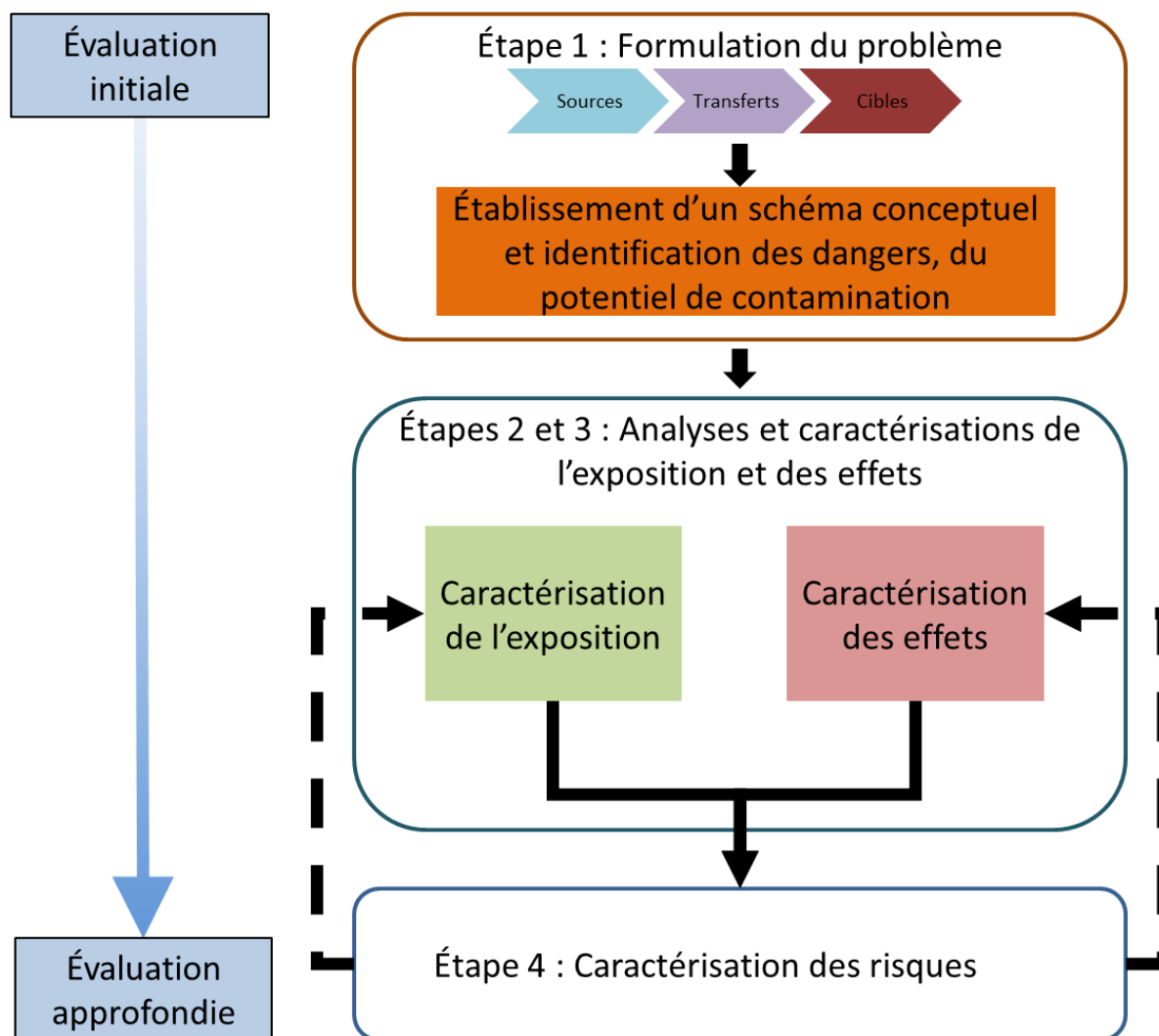


Figure 7 Schéma général de l'ÉRE d'après [13] sur la base de la méthodologie de l'US EPA [22]

I.3.3 Principes de la méthode d'éco-compatibilité

Il existe en France une démarche intitulée «Évaluation de l'éco-compatibilité de scénarii de stockage et de valorisation des déchets» qui a fait l'objet d'un guide édité par l'ADEME en 2002 [31]. Son principe général consiste à comparer pour un scénario donné «les flux de polluants émis par les déchets avec les flux de polluants acceptables par les milieux récepteurs». Pour ce faire elle comprend l'étude successive de trois termes :

- Le terme «source» permet de déterminer le flux de polluants émis par le matériau,
- Le terme «transfert» permet de déterminer le flux de polluants atteignant les milieux récepteurs après transfert,
- Le terme «impact» permet de confronter ces flux avec les flux acceptables par les milieux aquatiques et sol.

La méthode d'évaluation de l'éco-comptabilité prolonge le principe de l'approche en scénario, jusque-là appliqué au seul terme source (cf. méthodologie de la norme NF EN 12920+A1 [32]), en le transférant et en l'adaptant aux termes transfert et impact.

L'estimation du terme transfert comporte des aspects hydrodynamiques, géotechniques, mécaniques, et bio-géochimiques. En ce qui concerne le terme «impact», le niveau d'acceptation des flux de polluants par les milieux récepteurs dépend essentiellement des types de milieux concernés et des conditions dans lesquelles ils sont sollicités.

Le guide de l'ADEME propose une démarche de caractérisation multi-échelle avec des batteries spécifiques en fonction des milieux récepteurs [31]. L'interprétation des résultats se fait conformément à l'organigramme décisionnel présenté dans la figure 8. Il s'agit tout d'abord de valider le modèle d'évaluation du comportement à long terme des termes source et transport. L'interprétation des résultats concerne ensuite l'évaluation de l'impact des flux de polluants sur les milieux récepteurs en vue de conclure sur l'éco-comptabilité du scénario envisagé.

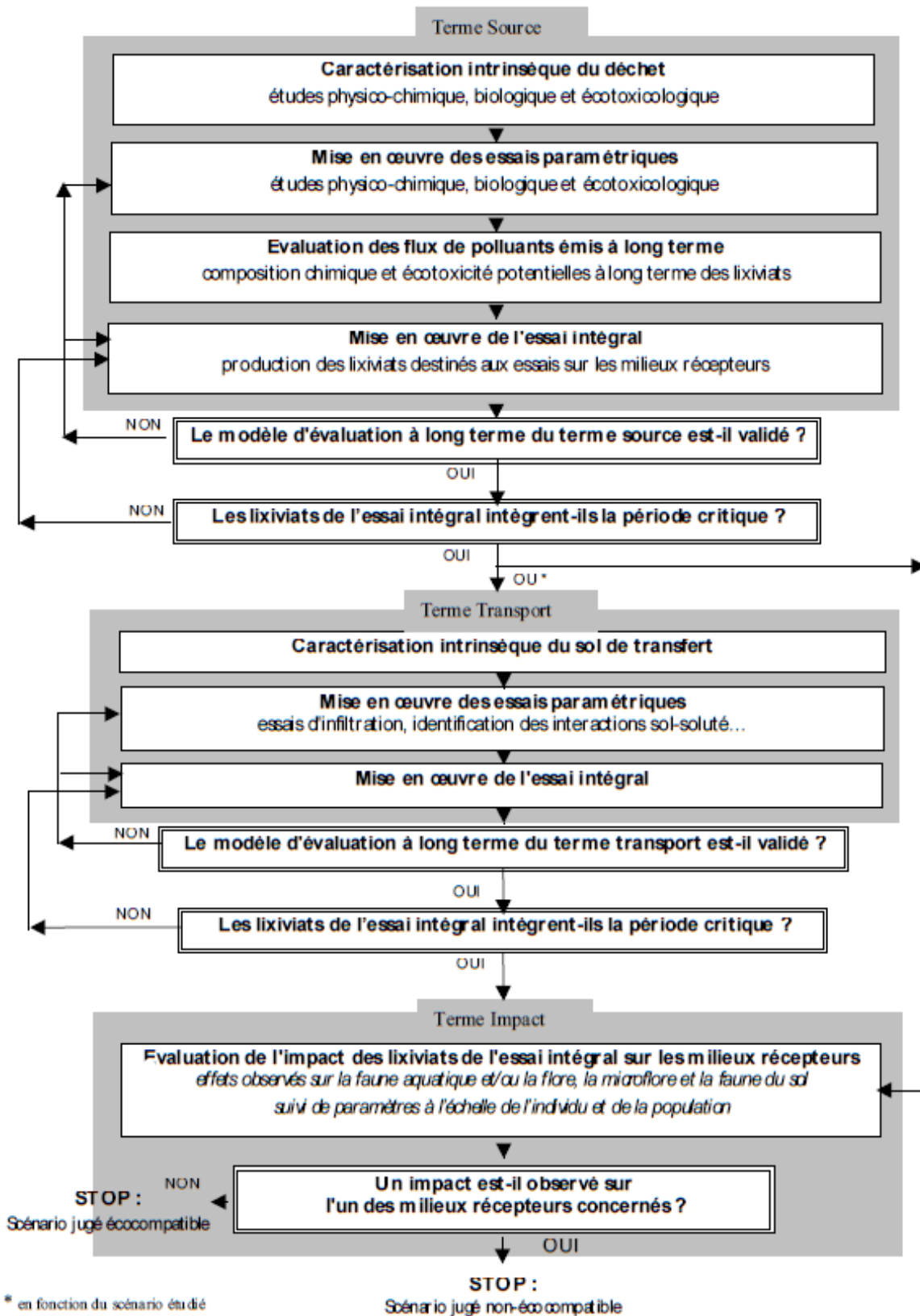


Figure 8 Organigramme décisionnel d'évaluation de l'éco-compatibilité de déchets en scénario (d'après [31])

I.3.4 La norme européenne NF EN 12920+A1

Il s'agit d'une méthodologie développée par le comité technique CEN/TC 292 «Caractérisation des déchets» [32]. Elle permet d'étudier le comportement à la lixiviation d'un déchet dans des conditions d'élimination ou de valorisation spécifiées. Elle se déroule en 7 étapes présentées dans le paragraphe et dans la figure 9 :

Étape 1. Définition du problème et de la solution recherchée :

Cette étape pose le problème et la solution envisagée. Dans notre cas, il s'agira de préciser à ce stade quel sédiment est choisi pour quelle filière de valorisation envisagée. Il s'agira de s'assurer que le sédiment choisi possède les caractéristiques techniques nécessaires à sa valorisation. L'étude concernera le sédiment et le surtout le produit de sa valorisation.

Étape 2. Description du scénario :

Il s'agit de décrire les conditions normales et exceptionnelles susceptibles d'influer sur les propriétés du sédiment et notamment sur le relargage de substances toxiques (description des paramètres mécaniques et géotechniques, hydrogéologiques et climatiques, biologiques et contexte minéral, et définition des conditions d'utilisation du site de valorisation dans le temps). Il conviendra de prendre en compte aussi bien les paramètres propres aux filières de valorisation que les paramètres plus génériques. L'importance de ces paramètres étant différente en fonction de la filière de valorisation, il s'agira de les hiérarchiser dans chaque cas.

Étape 3. Description du sédiment et du produit valorisé :

Il s'agit de décrire les propriétés et caractéristiques intrinsèques du sédiment et du produit de sa valorisation. La description du sédiment pourra s'appuyer sur les analyses déjà réalisées pour l'étude de sa conformité au regard de la réglementation. Des analyses complémentaires peuvent être menées si besoin. Par exemple, dans le cas où le sédiment a vieilli ou si l'on juge pertinent, à la lumière du scénario envisagé, de réaliser des tests complémentaires. Lorsque les caractéristiques techniques du sédiment sont en décalage avec les caractéristiques nécessaires à la valorisation dans la filière choisie, on peut revenir à l'étape 1 pour choisir une autre filière de valorisation.

Étape 4. Détermination de l'influence de paramètres sur le comportement à la lixiviation pendant la période spécifiée :

Il s'agit d'étudier l'influence des paramètres physiques, chimiques, géotechniques, mécaniques et biologiques sur le relargage du déchet dans le scénario choisi. Pour ce faire, les paramètres définis et hiérarchisés lors de la description du scénario, sont étudiés indépendamment les uns des autres. L'étude de ces paramètres fait intervenir plusieurs tests et essais dit paramétriques dans le but d'établir une caractérisation de base du sédiment et du produit de sa valorisation.

Étape 5. Modélisation du comportement à la lixiviation pendant la période spécifiée :

Il s'agit d'utiliser des outils de modélisation pour élaborer un modèle comportemental du produit de valorisation du sédiment à la lixiviation. Ce modèle comportemental s'appuie sur les relations entre les principaux paramètres influant sur le comportement à la lixiviation et le produit valorisé. Il s'appuie donc sur la hiérarchisation de ces paramètres établie lors de la description du scénario. Bien que comprenant une simplification du fait de l'élimination des paramètres les moins hauts dans la hiérarchie, il est nécessaire de faire en sorte, que le modèle soit suffisamment précis, pour que l'on puisse comparer ses résultats aux valeurs réelles.

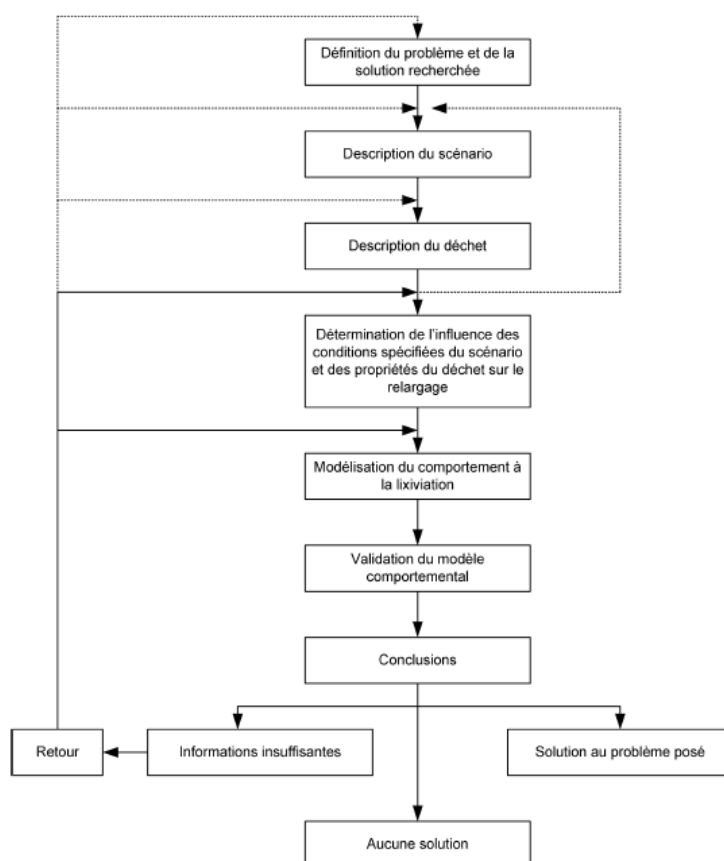


Figure 9 Méthodologie de la norme NF EN 12920+A1

Étape 6. Validation du modèle comportemental :

Il s'agit de vérifier la validité du modèle comportemental. Pour ce faire, il est nécessaire dans un premier temps de vérifier la cohérence entre le modèle basé sur les résultats des essais paramétriques de l'étape 4 et les résultats d'essais de simulation. Dans un second temps, les prévisions du modèle sont comparées aux résultats d'un test in situ. Le test in situ est effectué sur un échantillon grandeur nature instrumenté de façon à bien collecter toutes les informations durant le test sans contamination possible de l'environnement. Une

comparaison pourra enfin être effectuée avec les résultats obtenus sur l'équivalent naturel ou standard du sédiment dans la filière de valorisation.

Étape 7. Conclusion :

Il s'agit d'apporter une réponse au problème posé en étape 1, à savoir la possibilité de valoriser le sédiment dans une filière donnée au regard du relargage possible des polluants en lixiviation. Lorsque les résultats ne permettent pas de conclure, on retourne aux étapes précédentes. Il est possible que les résultats indiquent qu'il ne soit pas possible de répondre au problème posé en étape 1 dans l'état actuel des connaissances scientifiques et techniques.

I.4 La méthodologie SEDIMATERIAUX

I.4.1 Contexte et objectifs de la démarche SEDIMATERIAUX

La situation de la valorisation des déchets a ceci de paradoxal que tous les textes cadres européens et français stipulent qu'on ne peut mettre en décharge que des déchets ultimes et qu'on doit tout faire pour valoriser les déchets en tant que nouvelles sources de matière et d'énergie alors qu'on ne dispose aujourd'hui de pratiquement d'aucun texte réglementaire pour encadrer cette démarche. De très nombreux acteurs économiques tant producteurs de déchets candidats qu'utilisateurs potentiels (industriels, collectivités) souffrent de cet état de fait. De nombreux chantiers réglementaires et normatifs ont été lancés tant en Europe qu'en France sans encore de concrétisation vraiment lisible pour ces acteurs et l'attente est forte.

La principale raison que l'on peut trouver pour expliquer cette situation est le manque de lisibilité et de confiance des pouvoirs publics ainsi que dans certains cas de maîtres d'ouvrages quant aux risques géotechniques et surtout environnementaux qu'ils pourraient avoir à assumer en cas d'utilisation incontrôlée de déchets.

Dans le cas des sédiments marins, leur valorisation en substitut des granulats traditionnels pourrait contribuer à diminuer le nombre de carrières et de gravières, préservant ainsi les ressources naturelles du pays, soient traités et utilisés de manière à limiter leur potentiel polluant à un débit de fuite éco-compatible, y compris à long terme.

En 1998, le Grand Port Maritime de Dunkerque en collaboration avec les Mines de Douai et l'appui de la Région Nord-Pas-de-Calais, en réponse à l'évolution du contexte environnemental et économique au niveau dragage et stockage des sédiments, a mis en place une démarche environnementale qui a abouti au guide PREDIS [33].

La poursuite de l'évolution du contexte réglementaire, économique et social durant la décennie 1999-2009 a confirmé la nécessité de cette démarche et amené les différents acteurs régionaux et notamment le Conseil Régional du Nord-Pas-de-Calais avec l'appui du CD2E et des Mines de Douai, au lancement en 2009 du projet SEDIMATERIAUX.

Dans cette perspective, le programme SEDIMATERIAUX s'inscrit dans un projet structurant dont l'objectif est d'établir et d'analyser différents scénarii de gestion à terre des sédiments de dragage ou de curage pour permettre le choix d'un schéma régional optimum. Selon la filière considérée, le matériau fabriqué doit remplir des exigences techniques, environnementales, réglementaires ou normatives. Dans son contenu, la méthodologie SEDIMATERIAUX comprend la construction de cahier de charges techniques et environnementales adaptées aux nouvelles filières de valorisation tout en validant à la fois la faisabilité technico-économique et l'innocuité environnementale des usages étudiés. L'approche expérimentale s'inscrit dans une logique de graduation de l'effort de caractérisation dans le but d'écarter tout risque technique et environnemental majeur lors de la réalisation des ouvrages de terrain à échelle 1. En ce sens, la démarche intègre dans sa méthodologie une étude détaillée des risques environnementaux s'appuyant sur une étude multi-échelle combinant des essais normalisés, des planches expérimentales de laboratoire, des pilotes et/ou plots expérimentaux en complément des procédures réglementaires (réalisation d'une étude d'impact) nécessaires à l'encadrement des opérations de terrain.

La finalité de la démarche SEDIMATERIAUX est donc de proposer pour chacune des filières étudiées dans le cadre de projets spécifiques une suite logique d'étapes de caractérisations techniques et environnementales (en termes d'impact et d'adéquation avec le scénario de valorisation). Cette suite logique revient à réaliser pour chacune des filières un cahier des charges techniques et un cahier des charges environnementales qui prennent en considération les éventuels impératifs ou recommandations réglementaires et normatives en vigueur ainsi que l'état de l'art scientifique dans le domaine permettant d'anticiper les évolutions techniques ou encore d'ordre réglementaire.

I.4.2 Approche déclinée pour la définition des filières

Deux catégories de filières peuvent être distinguées :

- Les filières auxquelles s'appliquent des textes réglementaires bien précis (stockage, épandage, etc.) qui définissent des critères techniques et environnementaux spécifiques.

- Les autres filières (produits de construction, produits agronomiques, etc.) pour lesquelles des vides juridiques existent et aucun texte réglementaire ne propose des méthodologies adaptées.

Dans le premier cas, les cahiers des charges proposés se basent sur les textes en vigueur qui sont alors mentionnés, en s'attachant à expliciter les critères techniques et environnementaux, ainsi que les procédures associées pour la vérification desdits critères. Dans le deuxième cas, l'établissement d'un cahier des charges spécifique à chaque filière nécessite la mise en place d'une méthodologie scientifique spécifique selon les recommandations de la norme européenne NF EN 12920+A1 [32].

Pour le cahier des charges environnemental de certaines filières, on pourrait se contenter de faire référence à certains textes réglementaires imposant des essais de conformité et des seuils (exemple : le remblayage des carrières s'effectue avec des déchets à caractère inerte auquel correspondent des valeurs seuils réglementaires). Or ces seuils ont été établis pour une certaine catégorie de déchets inertes (essentiellement les déchets de démolition), dans un scénario précis (décharge dans le cas de cet exemple) en utilisant une méthodologie qui prend en considération les conditions du scénario spécifique, et les propriétés d'un déchet moyen, etc.

Dans le cadre de la démarche SEDIMATERIAUX, nous avons donc choisi de ne pas nous satisfaire de cette approche purement réglementaire qui ne permet pas de garantir l'innocuité environnementale pour des filières où l'utilisation des sédiments est nouvelle.

Nous avons en effet choisi de nous placer en amont des réglementations, en préconisant une étude où la méthodologie ayant permis de déterminer ces seuils seraient appliqués. Par ailleurs, certaines filières, telles que le rechargement des plages, les substrats de végétalisation, ou les blocs de béton de construction, sont susceptibles d'exposer des populations humaines à d'éventuels impacts sanitaires. Pour ces filières, une évaluation des risques sanitaires est intégrée à la démarche SEDIMATERIAUX sous forme d'une étude d'impact réglementaire. Dans le cadre de la construction de la méthodologie scientifique de SEDIMATERIAUX mes missions se sont focalisées sur les aspects techniques et environnementaux, les aspects sanitaires n'ont pas fait l'objet de développements scientifiques particuliers.

I.4.3 Méthodologie d'élaboration des cahiers des charges environnementaux

Comme mentionné plus haut, le domaine de la valorisation des déchets et en particulier des sédiments souffre beaucoup de l'absence de référentiels soit, directement réglementaires soit, en terme de performances de qualité.

Pour définir les critères et référentiels, deux approches ont été mises en œuvre en fonction de la nature des projets et de la filière de valorisation envisagée :

- La comparaison avec des matériaux de référence soit naturels ou traditionnellement utilisés et dont l'usage est admis et accepté (voire fait l'objet d'une norme d'usage). Cette approche présente l'intérêt d'être pragmatique et de satisfaire les opérateurs (de TP par exemple). Les limites sont que ces matériaux traditionnels ne sont pas forcément exempts de pollution (traditionnels ne signifie pas toujours naturels et a fortiori propres) ni d'impact sur l'environnement. Enfin, ces matériaux peuvent varier sensiblement d'un gisement à l'autre et d'une région à l'autre, ce qui permet une approche acceptable que dans le cadre d'une démarche régionale.
- Le rapprochement des valeurs d'émissions de polluants (en flux et en concentrations) avec les référentiels de qualité des milieux naturels. Ces référentiels sont intéressants car légitimes en terme de garantie de non impact sanitaire et en terme de protection des ressources. Par contre le rapprochement des valeurs d'émissions (en pied d'ouvrage) de ces valeurs de référence pour les milieux en aval n'est pertinent que si on dispose d'une évaluation crédible des facteurs de dispersion et d'atténuation des substances dans l'environnement. La comparaison directe n'est pas a priori pertinente. La connaissance de ces facteurs passe notamment par la définition d'un scénario conceptuel validé à l'échelle nationale tel que celui utilisé dans la méthodologie nationale du SETRA pour la filière technique routière [34], [35]. A noter que le scénario conceptuel utilisé pour la définition des seuils de mise en décharge des déchets inertes peut également constituer une base en l'absence de consensus sur un scénario conceptuel national pour une filière donnée.

Les référentiels sur lesquels sont basés les critères dans le cas du rapprochement des émissions de polluants sont les référentiels de qualité des milieux naturels en particulier avec les normes de qualité environnementale (NQE) portant sur la définition du bon état écologique des eaux ou les valeurs de potabilisation des eaux souterraines. Par exemple, dans le cas d'un scénario de valorisation en technique routière, lorsque des substances identifiées

ne sont pas prises en compte par le référentiel national du SETRA le référentiel SEDIMATERIAUX est mis en place de la façon suivante :

- pour les polluants disposant d'une limite de qualité des eaux brutes utilisées pour la production d'eau destinée à la consommation humaine dans l'arrêté du 11 janvier 2007 : cette limite de qualité (exprimée en mg/L) est multipliée par un taux d'infiltration de référence.
- pour les autres polluants : lorsqu'elle existe, la valeur de référence spécifique («QS») eau potable, telle que définie ou proposée dans les valeurs de NQE/VGE8 disponibles sur le site du portail des substances chimiques de l'INERIS, exprimée en mg/L, est elle aussi multipliée par un taux d'infiltration de référence.

Dans ces deux cas, l'absence de prise en compte de facteur d'atténuation entre la concentration émise par l'ouvrage et celle atteignant l'objectif de protection (nappe souterraine utilisée pour la production d'eau potable) garantit une approche majorante en termes de sécurité.

La méthodologie générale d'évaluation environnementale de la démarche SEDIMATERIAUX s'appuie donc sur la définition et la détermination, pour chacune des filières considérées, de plusieurs niveaux d'information :

1) Les critères environnementaux et/ou conditions d'exposition associées :

Nous avons choisi d'établir des critères relatifs à l'émission de polluants exprimée en concentration et/ou en flux émis par le terme source, c'est-à-dire le matériau dans les conditions spécifiées par le scénario considéré.

2) Les méthodologies pour la vérification de ces critères :

Les méthodologies proposées pour vérifier ces critères intègrent les évolutions réglementaires et normatives récentes ou en projet aux niveaux français et européens, à savoir la norme NF EN 12920+A1 définissant une méthodologie pour la détermination du comportement à la lixiviation d'un déchet dans des conditions spécifiées et les cahiers des charges pour l'utilisation des matériaux alternatifs en technique routière ou hors ouvrages routiers (depuis la parution de la note DGPR de mars 2016).

⁸ Valeurs Guides Environnementales

- 3) **La réalisation de batteries d'essais** (normalisés ou en cours de normalisation aux niveaux français et/ou européen ou issus de procédures internes à l'IMT Lille Douai) est proposée pour caractériser le terme source (caractérisation physico-chimique) et donc la mise en évidence d'un éventuel impact du matériau sur l'environnement à court, moyen et long terme.

I.4.4 Méthodologie d'élaboration des cahiers des charges techniques

Les différents devenir possibles des sédiments font l'objet d'une revue des conditions techniques requises pour les différentes filières de valorisation. Nous nous sommes assuré que la démarche proposée soit cohérente avec les aspects techniques des procédures analogues existantes ou en cours d'élaboration dans le domaine de la valorisation des déchets. Par exemple, les matériaux et produits de construction doivent répondre aux exigences essentielles du règlement produits de construction. Ces exigences portent aussi bien sur les performances techniques (résistances mécaniques et stabilité, résistance au feu, durabilité) que sur les risques environnementaux et sanitaires (émissions de substances volatiles, contamination des eaux et des sols, émissions de radiations, etc.)

L'ensemble des prescriptions techniques est défini dans les normes produits ou documents de spécifications techniques permettant de s'assurer de l'aptitude à l'emploi d'un matériau ou produit de construction. Le règlement produit de construction prévoit deux types de spécifications techniques : les normes harmonisées établies par le comité européen de normalisation pour les produits traditionnels et les agréments techniques pour les produits innovants, les produits à base de sédiments rentrent le plus souvent dans cette deuxième catégorie en particulier lorsqu'il s'agit de vases portuaires contenant peu de sables.

I.5 Réglementation applicable aux produits de construction

Au sens du Règlement Produits de Construction (RPC) du 9 mars 2011 (abrogeant la Directive Produits de Construction), un produit de construction est défini comme «tout produit ou kit fabriqué et mis sur le marché» en vue d'être incorporé de façon durable dans des ouvrages de construction et dont les performances influent sur celles des ouvrages de construction en ce qui concerne les exigences fondamentales applicables auxdits ouvrages (article 2 - Définitions).

Le RPC considère 7 exigences fondamentales relatives aux ouvrages (annexe 1 du RPC) :

- Résistance mécanique et stabilité,

- Sécurité en cas d'incendie,
- Hygiène, santé et environnement,
- Sécurité d'utilisation et accessibilité,
- Protection contre le bruit,
- Economie d'énergie et isolation thermique,
- Utilisation durable des ressources naturelles.

La traduction des exigences fondamentales définies par le RPC pour les ouvrages en spécifications pour les produits est établie dans les spécifications techniques harmonisées, regroupant les normes harmonisées.

Le RPC stipule également, compte tenu de possibles dérogations dont le cadre est clairement défini et limité (article 5), l'obligation pour les fabricants d'établir une déclaration des performances pour les produits couverts par une norme harmonisée ou conformes à une évaluation technique européenne. De plus, pour tous les produits pour lesquels une déclaration des performances a été établie, l'apposition du marquage (CE) est obligatoire.

En affichant le marquage CE, les fabricants indiquent qu'ils assument la responsabilité de la conformité du produit de construction avec les performances déclarées ainsi que la conformité avec toutes les exigences applicables prévues par le RPC et par d'autres législations d'harmonisation de l'Union prévoyant un marquage CE.

I.5.1 Méthodologie d'évaluation environnementale des produits de construction

L'approche ACV

Les impacts environnementaux des produits de construction sont évalués par l'approche Analyse du Cycle de Vie (ACV). L'ACV est basée sur l'inventaire des impacts imputables à chaque flux de matière et d'énergie généré par un produit de l'extraction des matières premières jusqu'à son élimination en fin de vie. L'ACV se voulant exhaustive, l'ensemble des impacts (locaux, régionaux et globaux) générés par un système sur l'ensemble de son cycle de vie doit être inventorié. Néanmoins, pour faciliter l'intégration de cette exhaustivité, les impacts sont calculés pour des conditions standardisées et donc, indépendantes des conditions locales.

L'Analyse du Cycle de Vie des produits fabriqués est généralement réalisée à partir de données propres aux fabricants et de données génériques existantes regroupées dans des bases de données. Pour permettre l'application de l'exigence «hygiène, santé et environnement» du Règlement Produits de Construction, la Commission Européenne a initié des travaux visant à

intégrer la problématique des émissions de substances dangereuses des produits de construction pendant leur vie en œuvre. Ce travail de normalisation a pour objectif de définir les conditions harmonisées de détermination des performances des produits de construction en matière d'émission de substances dangereuses réglementées dans l'air intérieur, le sol, les eaux souterraines et les eaux de surface dans des conditions normales d'utilisation.

Pour les produits relevant du domaine des travaux publics, c'est l'émission des substances vers l'eau qui doit être privilégiée. Or, les émissions de polluants pendant la vie en œuvre des produits de construction sont actuellement mal prises en compte dans les bases de données et dans les méthodes utilisées pour l'évaluation des performances environnementales de produits de construction. Dans ce domaine, les travaux récents de la commission européenne de normalisation a permis d'aboutir à la norme CEN/TS 16637-1. Ainsi, en fonction des caractéristiques intrinsèques des matériaux formulés, cette norme permet désormais d'identifier les tests de lixiviation adaptés pour caractériser le relargage de substances dangereuses réglementées (figure 10).

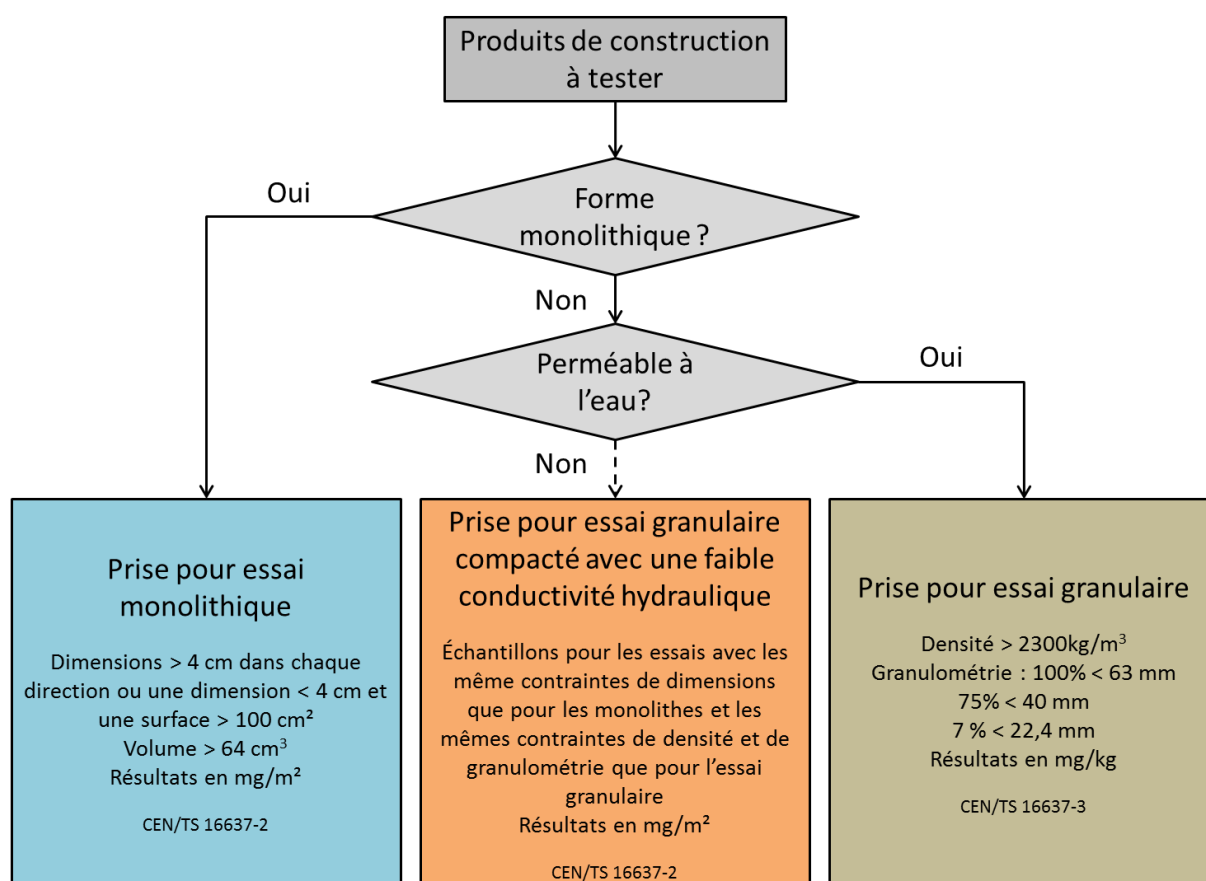


Figure 10 Logigramme d'identification des essais de lixiviations à mettre en œuvre en fonction du produit à tester selon la norme CEN/TS 16637-1

Méthodologie pour l'évaluation du potentiel de relargage des matériaux monolithiques

Dans la continuité de ce qui a pu se faire par ailleurs [36] pour l'étude de l'acceptabilité environnementale des produits de construction dans le cadre de l'application du RPC et en suivant la norme CEN/TS 16637-1 [37], des essais de lixiviation sur monolithes ont été menés dans le cadre des travaux de l'action 1 de la chaire industrielle ECOSED selon la procédure équivalente proposée retranscrite dans la norme française NF EN 15863 [38]. Ces essais se déroulent sur 64 jours et suivent les prescriptions de la norme NF EN 15863, le dispositif est détaillé dans la figure 11. Les essais sont menés sur des éprouvettes coupées en cubes réguliers de 4 centimètres de côté. Le milieu est renouvelé suivant les intervalles de temps décrits dans le tableau 7 et chaque éluat est analysé pour pouvoir étudier le relargage cumulé sur l'ensemble de la période d'essai.

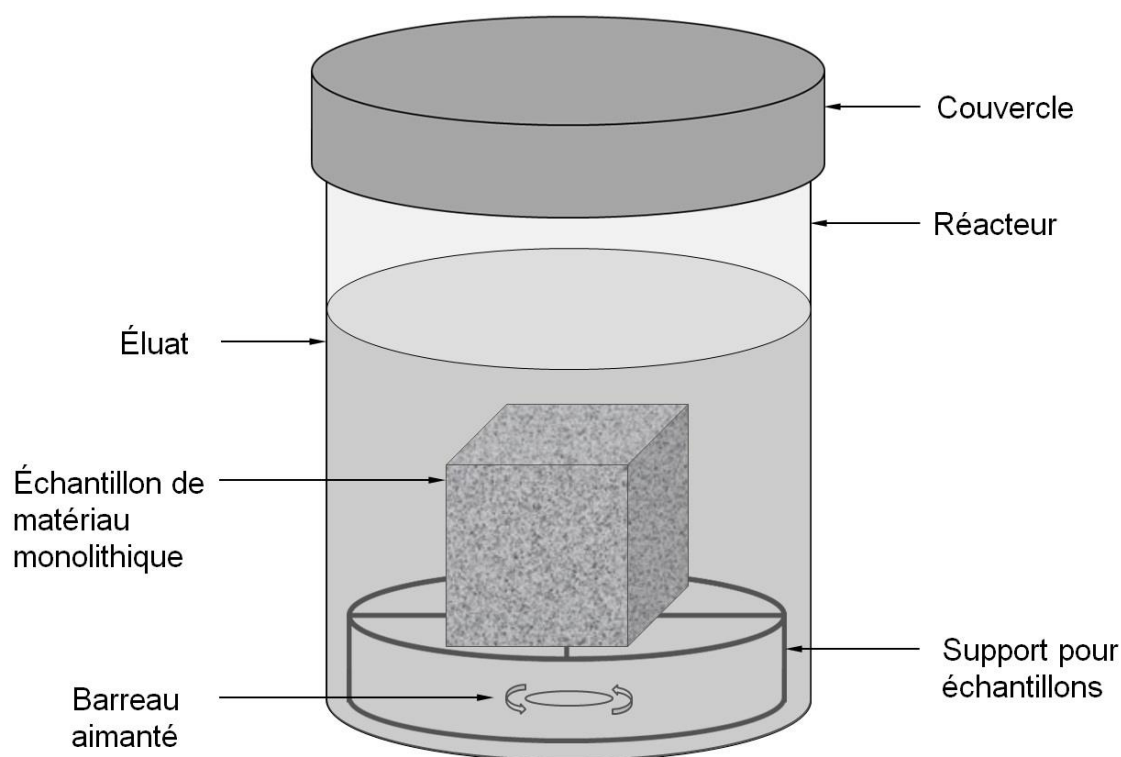


Figure 11 Dispositif expérimental pour la lixiviation sur monolithes NF EN 15863 [38]

Tableau 7 Intervalles de temps appliqué au prélèvement et au renouvellement des éluats pour l'essai normalisé de lixiviation dynamique sur monolithes NF EN 15863 [38]

Étape / Fraction	Durée de l'intervalle de temps	Durée à partir du début de l'essai
1	6 h $\pm$ 15 min	6 h $\pm$ 15 min
2	18 h $\pm$ 45 min	1 jour $\pm$ 45 min
3	1 jour et 6 h $\pm$ 1 h	2 jours et 6 h $\pm$ 2 h
4	1 jour et 18 h $\pm$ 2 h	4 jours $\pm$ 4 h
5	5 jours $\pm$ 6 h	9 jours $\pm$ 10 h

6	7 jours $\pm$ 8 h	16 jours $\pm$ 18 h
7	20 jours $\pm$ 24 h	36 jours $\pm$ 42 h
8	28 jours $\pm$ 24 h	64 jours $\pm$ 66 h

Contrairement à l'essai sur matériaux fragmentés, on s'intéresse ici aux substances relarguées par le matériau en fonction de la surface exposée plutôt que la masse, en conséquence, le volume de lixiviat par fraction est choisi en fonction de la surface du monolithe avec un ratio L/A (liquide/ surface) de 8 ml/cm². Les mécanismes de transfert de matière qui pourraient avoir lieu pendant les processus de lixiviation et susceptibles d'être modélisés sont présentés dans la figure 12. Ce modèle conceptuel unidimensionnel, représente les interactions et le transport de nombreuses espèces chimiques i en fonction de la distance x et du temps t . Les réactions chimiques de transformation entre la forme immobile S_i et la forme mobile C_i sont des réactions réversibles de type précipitation/dissolution, adsorption/désorption et échange d'ions. D'après la figure 12, les mécanismes de transfert des constituants de la matrice poreuse vers la solution de lixiviation comprennent les phénomènes de dissolution, diffusion, et lessivage.

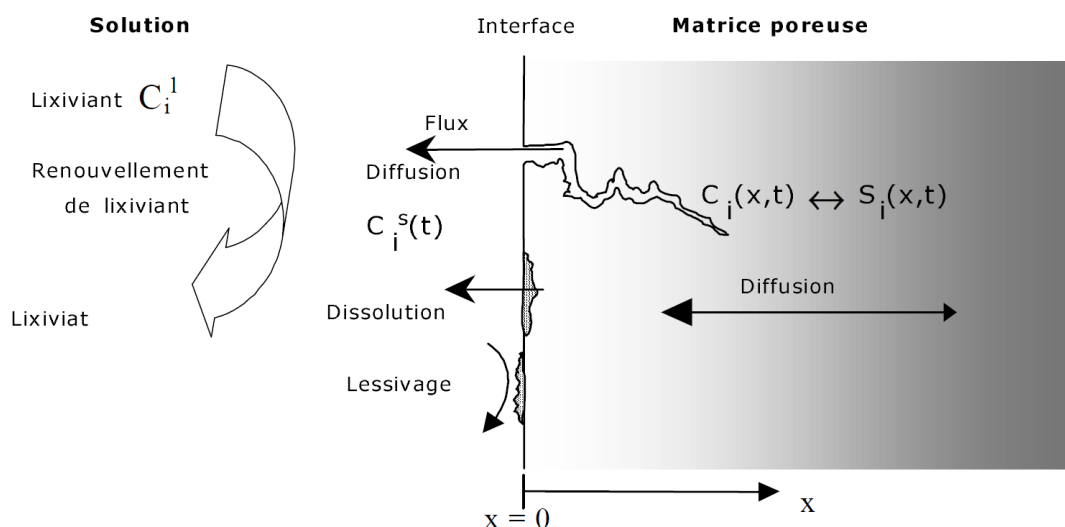


Figure 12 Présentation schématique des mécanismes de transfert de matière de la matrice cimentaire vers la solution aqueuse[39]

Plusieurs modèles de comportement ont été proposés pour décrire le relargage des espèces contenues dans des matériaux à matrice cimentaire, tous étant basés sur le modèle diffusionnel. Le modèle diffusionnel pur suppose que le transfert de matière à travers le système poreux saturé en eau est contrôlé exclusivement par diffusion. Ce phénomène est décrit par la seconde loi de Fick :

$$\varepsilon \frac{\partial C}{\partial t} = D_e \left(\frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} \right)$$

Où : $C = C(x, y, z, t)$, concentration de l'espèce dans les pores (kg/m³),

D_e = coefficient de diffusion effectif (m²/s),

ε = porosité ouverte à l'eau (%),

x, y, z = coordonnées (m),

t = temps (s).

Le coefficient de diffusion effectif (D_e) d'une espèce dans un milieu poreux est proportionnel au coefficient de diffusion de l'espèce dans l'eau (D_{aq}) et la constante de proportionnalité, appelée « diffusivité », prend en compte les paramètres physiques du milieu poreux [40]:

$$D_e = \frac{\varepsilon \delta}{\tau^2} D_{aq} \quad \text{Avec} \quad \frac{\varepsilon \delta}{\tau^2} < 1$$

Où : ε = porosité ouverte à l'eau (%), δ = constrictivité, τ = tortuosité.

La constrictivité δ prend en compte le fait que la section des pores varie sur leur parcours. Sa valeur dépend du rapport entre le diamètre de la molécule en solution et le diamètre des pores ($\delta < 1$).

La tortuosité (τ) traduit la longueur du chemin réel que doit parcourir l'espèce à travers la structure des pores par rapport au chemin apparent rectiligne ($\tau \geq 1$).

Pour un solide semi-infini, tant que l'hypothèse de concentration nulle à l'interface est respectée, la masse totale relarguée peut être calculée à partir de l'équation de la diffusion avec la formule[41]:

$$M(t) = 2 \cdot C_0 \cdot \sqrt{\frac{D_e \cdot t}{\pi}}$$

Si $\log(2 \cdot C_0 \cdot \sqrt{\frac{D_e}{\pi}}) = \text{constant } (A)$ alors $\log M(t) = A + \frac{1}{2} \log(t)$

$M(t)$ = masse cumulée relarguée (kg) ;

C_0 = concentration initiale relargable (kg/m³) ;

D_e = coefficient de diffusion effectif (m²/s) ;

t = temps (s)

Pour les espèces dont la solubilité est sensible au contexte chimique, le relargage dépend des phénomènes physico-chimiques dans la matrice. Un modèle diffusionnel avec réaction chimique doit être considéré. Deux approches de modélisation sont rencontrées :

- Modèle à front de solubilisation utilisé dans le cas du relargage d'une espèce peu soluble sans prendre en compte le couplage avec les autres espèces. Le modèle est utilisé dans le cas du relargage d'une espèce partiellement soluble. Deux zones peuvent être distinguées dans la matrice (figure 13) : une zone où le solide est en équilibre avec l'eau des pores (zone non-dégradée) et une zone de dissolution totale (zone dégradée). Ces deux zones sont séparées par un front de dissolution [42].

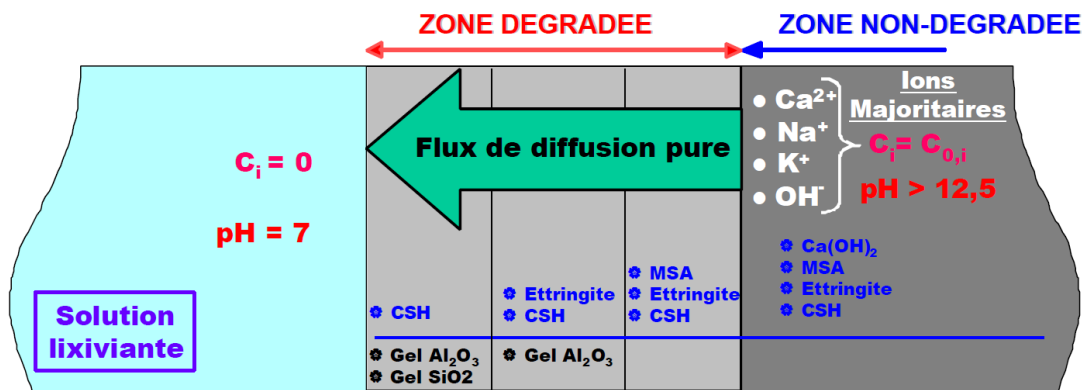


Figure 13 Modèle de dégradation des matrices cimentaires lixiviées par l'eau, d'après [42] et cité dans [43].

- Modèle couplé diffusion/réaction chimique prenant en compte plusieurs espèces. C'est un modèle qui comprend à la fois les phénomènes de transport par diffusion et ceux de dissolution/précipitation, adsorption, complexation etc. Le modèle repose sur le principe de la conservation de la masse. Dans le cas où une espèce est initialement présente à l'équilibre sous deux formes, l'une immobile (S) et l'autre mobile (C), un terme de production/disparition est ajouté à l'équation de diffusion (la seconde loi de Fick).

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - \frac{\partial S}{\partial t}$$

C : Concentration de l'espèce sous forme mobile (M/L³),

S : Concentration de l'espèce sous forme immobile (M/L³),

D : Coefficient de diffusion (L²/T).

Selon la cinétique des réactions chimiques mises en jeu (instantanées ou lentes), un facteur retard ou une cinétique réactionnelle sera affectée au terme production/disparition.

L'exploitation des données de l'essai de lixiviation dynamique des monolithes tel que proposée dans la norme NF EN 15863 [38] permet d'utiliser un modèle cinétique de relargage semi-empirique en trois étapes pour l'identification de la diffusion. Le niveau de concentration de la deuxième étape et de la troisième étape du modèle est deux fois plus élevé que le niveau de l'étape précédente (figure 14). Pour le relargage contrôlé par dissolution, le modèle est uniforme et indépendant des temps de renouvellement (figure 14).

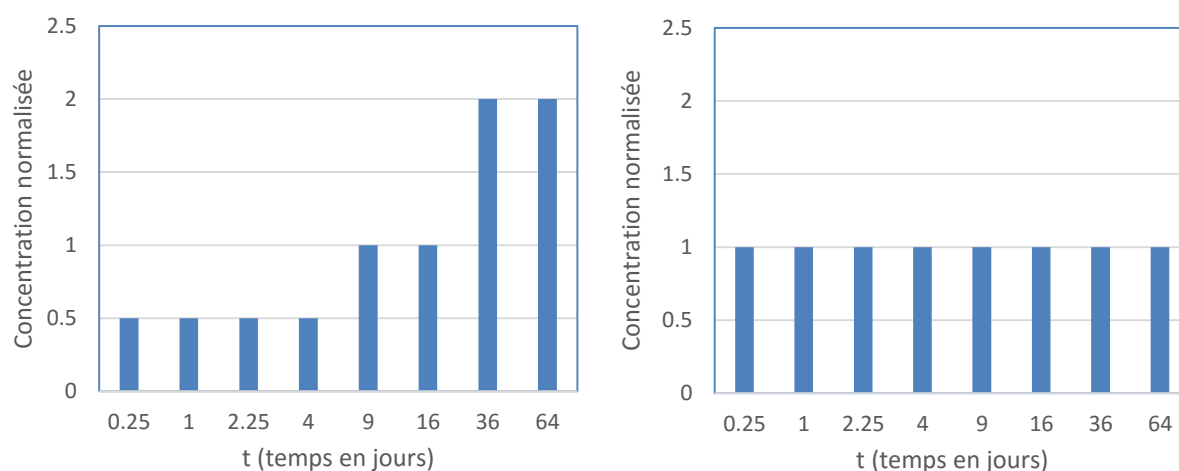


Figure 14 *Modèle de relargage de diffusion (gauche) et de dissolution (droite).*

En pratique le mécanisme de relargage d'un produit de construction est généralement contrôlé par l'un de ces mécanismes ou par une combinaison. Cependant, le modèle de dissolution peut être affecté par les modifications du pH durant l'essai ce qui peut entraver l'identification de ce mécanisme. L'analyse de l'objectif premier du résultat de l'essai de lixiviation dynamique sur monolithes est donc de savoir si le relargage est contrôlé ou pas par diffusion. S'il s'avère que la diffusion est le mécanisme principal, il est possible d'identifier un lessivage de la surface et/ou un appauvrissement comme mécanismes secondaires ayant une incidence sur le relargage à long terme. La déclinaison de ce modèle semi-empirique est traduite dans le logigramme de la figure 15 dont l'objectif est d'identifier pas à pas les mécanismes de relargage présentés ci-dessus, en s'appuyant sur les concentrations en substances mesurées dans les différentes fractions de l'essai de lixiviation.

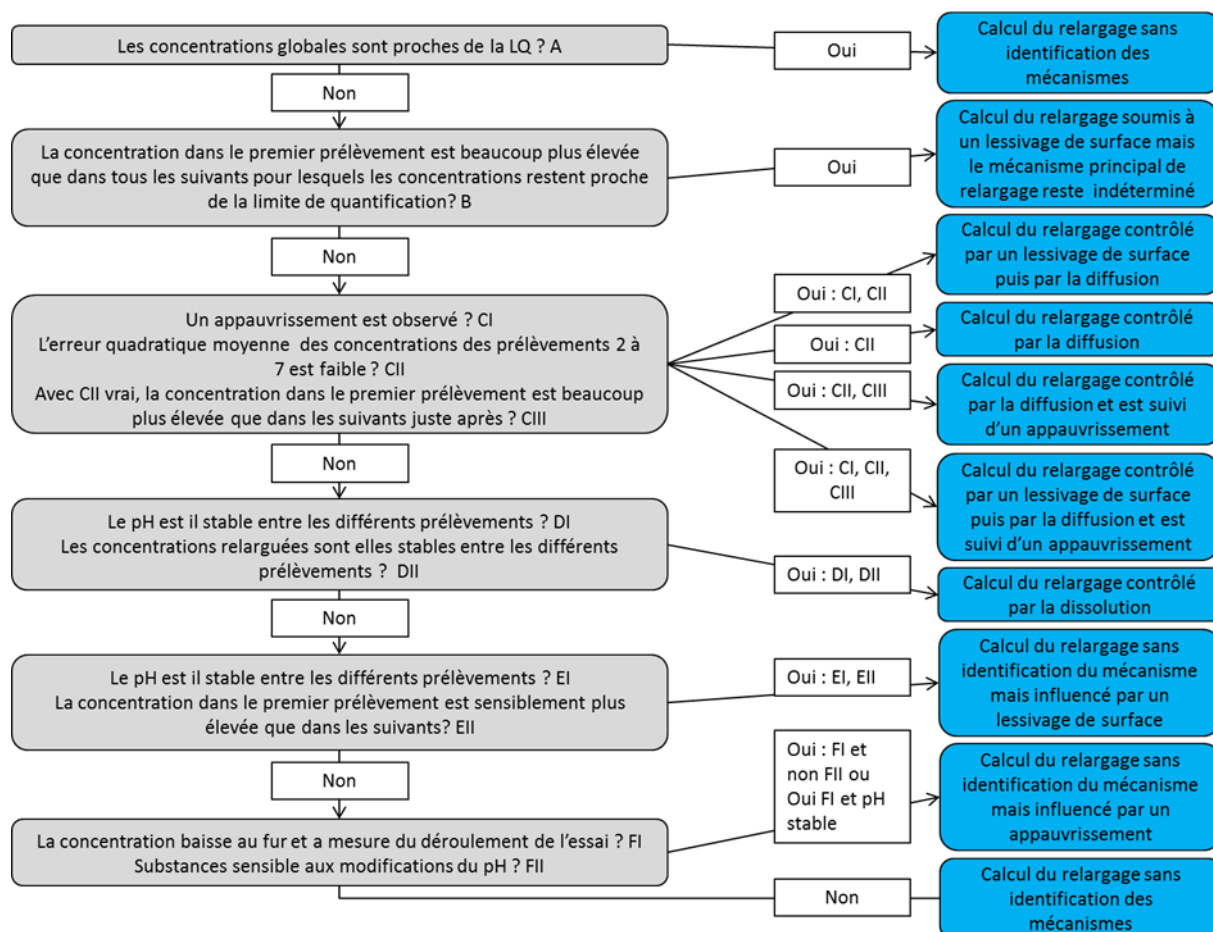


Figure 15 Logigramme sur les modalités de détermination du mécanisme principal contrôlant le relargage lors de la lixiviation sur monolithe normalisée NF EN 15863 [38]

Evaluation du potentiel de relargage à long terme

La prévision d'émissions de substances dangereuses sur le long terme est importante pour l'évaluation du comportement au relargage d'un produit de construction durant sa vie en service dans une construction. Afin d'être en mesure de prévoir le relargage par extrapolation sur le long terme, il est nécessaire de connaître le mécanisme de relargage. Toutefois, les difficultés rencontrées pour l'identification des mécanismes de relargage des éléments traces métalliques et métalloïdes à partir des résultats des essais de lixiviation dynamique sur monolithes limite les possibilités d'extrapolation à long terme. De plus, l'absence de seuils réglementaires nationaux pour le test de lixiviation dynamique sur monolithes ne permet pas à l'heure actuelle de s'assurer de l'innocuité environnementale des matériaux fabriqués. Dans d'autres pays européens comme l'Allemagne et les Pays Bas, l'utilisation de matières premières secondaires est réglementée et des seuils environnementaux existent pour l'essai de lixiviation dynamique sur monolithes. Ces seuils permettent de vérifier à un niveau national la

conformité des produits de construction avant leur mise sur le marché et garantissent leur innocuité environnementale à long terme. Le référentiel bénéficiant du retour d'expérience le plus significatif est sans doute celui mis en place par les Pays-Bas dans le cadre du Building Materials Decree (1995) puis du Soil Quality Decree (2008). Ce référentiel est développé ci-après, afin de pouvoir discuter de l'innocuité environnementale des matériaux formulés dans le cadre de nos travaux.

Le référentiel néerlandais

Depuis 1995, les Pays-Bas ont un décret sur la construction fondé sur l'impact potentiel de matériaux sur l'environnement. Le décret donne des critères de qualité pour l'application et la réutilisation des matériaux minéraux dans le domaine de la construction. Aucune différence n'est faite entre matières nobles, matières recyclées et déchets. Le décret est applicable lorsque ces matériaux sont utilisés dans les ouvrages de construction où ils sont en contact avec l'eau de pluie, les eaux de surface, et les eaux souterraines (par exemple dans les remblais, les infrastructures routières, les murs extérieurs des bâtiments, les fondations et les toitures). Le retour d'expérience de ce dispositif au bout de 10 ans d'application, a mis en évidence certaines limites, ce qui a conduit à la mise en place du «Soil Quality Decree», entré en vigueur depuis 1er juillet 2008. Les valeurs limites d'émission ont été calculées afin de respecter les sols, les eaux souterraines et les critères de qualité des eaux de surface. Les seuils disponibles s'appliquent à des matériaux granulaires ou monolithiques, et les substances inorganiques concernées sont l'antimoine (Sb), l'arsenic (As), baryum (Ba), cadmium (Cd), chrome (Cr), cobalt (Co), cuivre (Cu), mercure (Hg), plomb (Pb), molybdène (Mo), nickel (Ni), sélénium (Se), étain (Sn), vanadium (V), zinc (Zn), bromure (Br^-), chlorure (Cl^-), fluorure (F^-) et sulfates (SO_4^{2-}). Les valeurs limites d'émission sont calculées en six étapes, qui sont reportées dans la figure 16 :

1. Un terme source est calculé pour décrire le scénario de relargage des substances à partir des matériaux de construction. Le modèle de relargage est le résultat des propriétés de la substance concerné mais aussi des caractéristiques du matériau et de l'ouvrage. Dans cette approche un modèle de diffusion pour chaque substance est utilisé, sur la base des données mesurées sur de nombreux matériaux de construction.
2. Deux modèles dynamiques sont appliqués pour calculer les variations de concentrations de substances dans le temps et sur la profondeur du profil de sol. Un modèle de transport utilisant des coefficients de partage solide/liquide (PEARL 2.2.2)

et un modèle incluant la spéciation et la complexation de surface des éléments traces sont utilisés (ORCHESTRA).

3. Les concentrations résultantes dans les milieux récepteurs sont comparées aux valeurs de conformité (critères de qualité).
4. Le terme source est ajusté de telle manière à calculer les concentrations permettant de respecter les valeurs de conformité dans le sol et les eaux souterraines. Deux termes sources sont dérivés : un premier terme dérivé à partir de la conformité des valeurs dans les eaux souterraines et un second terme dérivé à partir des valeurs de conformité du sol.
5. Les termes source sont ensuite ajustés et transformés en valeurs limites d'émission dans les matériaux.
6. La valeur limite d'émission la plus stricte protège l'ensemble de l'environnement sur le temps de simulation qui a été fixé à 100 ans. Le profil du sol est constitué de 1 m de sol insaturé et 1 m de sol saturé. Le niveau moyen des eaux souterraines est de 1 m sous la surface du sol, ce qui correspond à une moyenne pour la situation néerlandaise.

Les valeurs limites d'émission obtenues via cette méthodologie permettent ensuite de fixer des seuils de conformité pour les essais normalisés de percolation (dans le cas des matériaux granulaires) et de lixiviation dynamique sur monolithes (dans le cas des matériaux monolithiques). Les valeurs limites à respecter dans ces essais normalisés sont reportés dans le tableau 8.

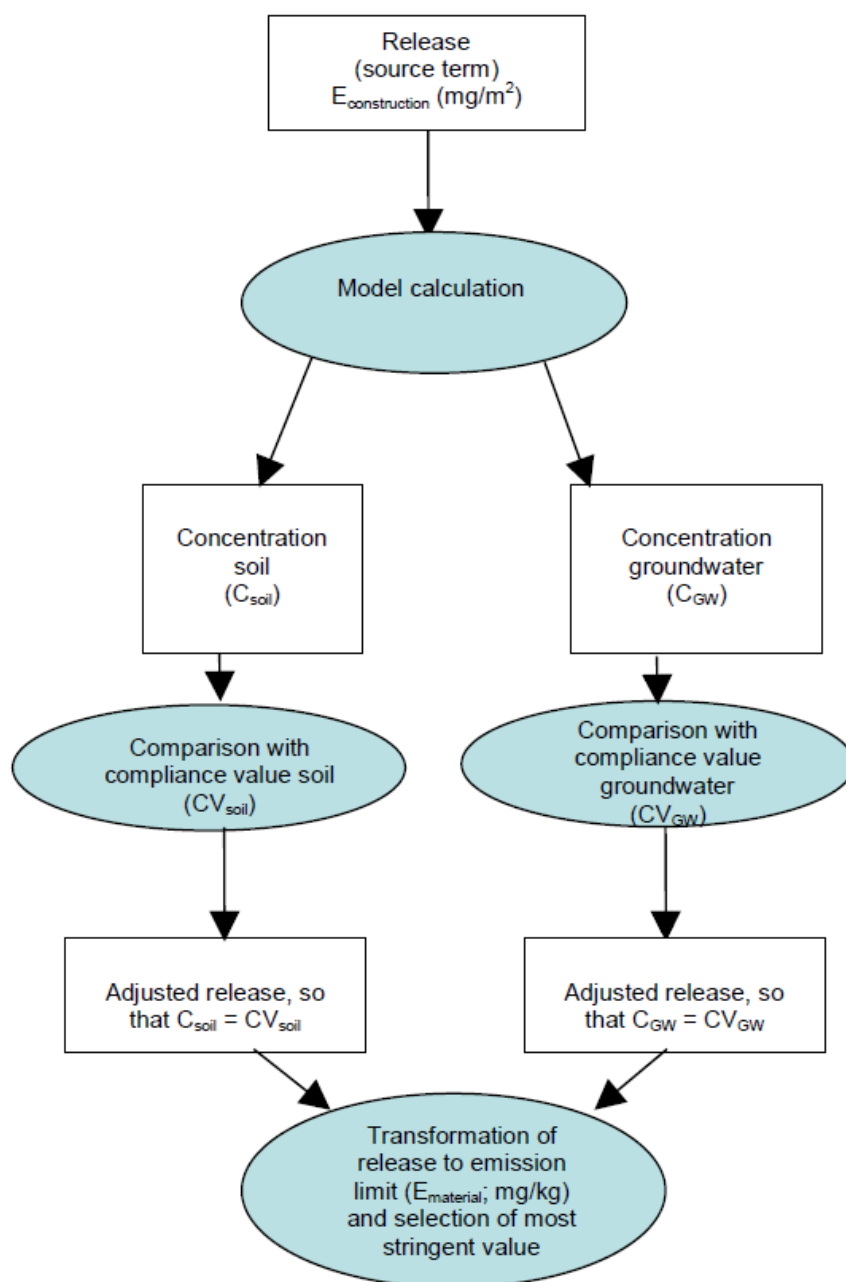


Figure 16 Procédure de détermination des limites d'émission des matériaux de construction dans la réglementation néerlandaise (Soil Quality Decree, 2008).

Tableau 8 Valeurs des seuils de conformité des matériaux granulaires et monolithiques dans l'essai de percolation et l'essai dynamique de lixiviation sur monolithique

Paramètres	Seuils de conformité des matériaux granulaires dans l'essai de percolation normalisé (mg/kg)	Seuils de conformité des matériaux monolithiques dans l'essai normalisé de lixiviation dynamique sur monolithes (mg/kg)
As	0,90	260
Ba	22	1500
Cd	0,04	3,8
Co	0,54	60
Cr	0,63	120
Cu	0,90	98
Hg	0,02	1,4
Mo	1,00	144
Ni	0,44	81
Pb	2,30	400
Sb	0,32	8,7
Se	0,15	4,8
Sn	0,40	50
V	1,80	320
Zn	4,50	800
Bromures	20	670
Chlorures	616	110 000
Florures	55	2500
Sulfates	2430	165 000

La relation semi-empirique appliquée pour la mise en place des seuils de conformité en lixiviation sur les matériaux monolithiques est la suivante :

$$E_{64j} = \frac{I}{f_{(h, x\%, De)} \cdot f_{temp}}$$

E_{64j} , le seuil de conformité à respecter au terme de l'essai normalisé (64 jours) en mg/m² ;

I , la valeur limite d'émission de la substance extrapolée pour 100 ans, en mg/m² ;

$f_{(h, x\%, De)}$, le facteur de correction appliqué à l'essai normalisé pour prendre en compte l'épaisseur du matériau, sa teneur en eau, et le coefficient de diffusion ;

f_{temp} , le facteur de correction appliqué à l'essai normalisé pour prendre en compte le différentiel entre la température moyenne en laboratoire et la température moyenne en extérieur.

Le facteur f_{temp} est calculé pour une température moyenne de l'essai en laboratoire de 20°C contre 10°C en extérieur, ce facteur est 0,7 [33]. Le facteur $f_{(h, x\%, De)}$, est calculé selon 2 catégories, soit le matériau est en contact avec l'eau du sol (catégorie A), soit il n'est qu'avec l'eau de pluie (catégorie B). En fonction de cette catégorie le facteur varie pour la première de

1 à 15 pour les contaminants avec une extrapolation à 100 ans et vaut 2,4 pour les contaminants avec une extrapolation à 1 an ; et pour la seconde de 1 à 5 pour les contaminants avec une extrapolation à 100 ans et vaut 0,8 pour les contaminants avec une extrapolation à 1 an [44].

I.6 Les matériaux composites

I.6.1 Définition

Les composites sont des matériaux solides, inhomogènes et généralement anisotropes constitués de deux ou plusieurs matériaux de natures différentes. Cette association conduit à un matériau dont les performances sont supérieures à celles d'un matériau à un seul constituant. Les matériaux composites permettent d'atteindre des niveaux de performances inégalés comparés aux autres matériaux. En effet, ils possèdent une structure géométrique spécialement conçue pour leur conférer des propriétés que leurs constituants élémentaires ne possèdent pas individuellement, et leur permettre de remplir de nombreuses fonctions techniques (références). Pour tirer le meilleur parti de leurs capacités, les composites sont généralement conçus en même temps que les pièces qu'ils constituent. La frontière entre le produit et le matériau est donc plus floue qu'avec les matériaux traditionnels, ce qui implique de profonds changements dans la conception des produits industriels.

En fonction de leurs natures, les matériaux composites sont classés en trois grandes gammes :

- Les composites à matrice organique, qui ne peuvent être utilisés que dans les cas où les températures ne dépassant pas 200 à 300°C.
- Les composites à matrice métallique qui sont utilisés jusqu'à 600°C.
- Les composites à matrice céramique qui peuvent être utilisés au-delà de 1000°C.

La classification des types de matrices couramment rencontrées est illustrée sur la figure ci-dessous :

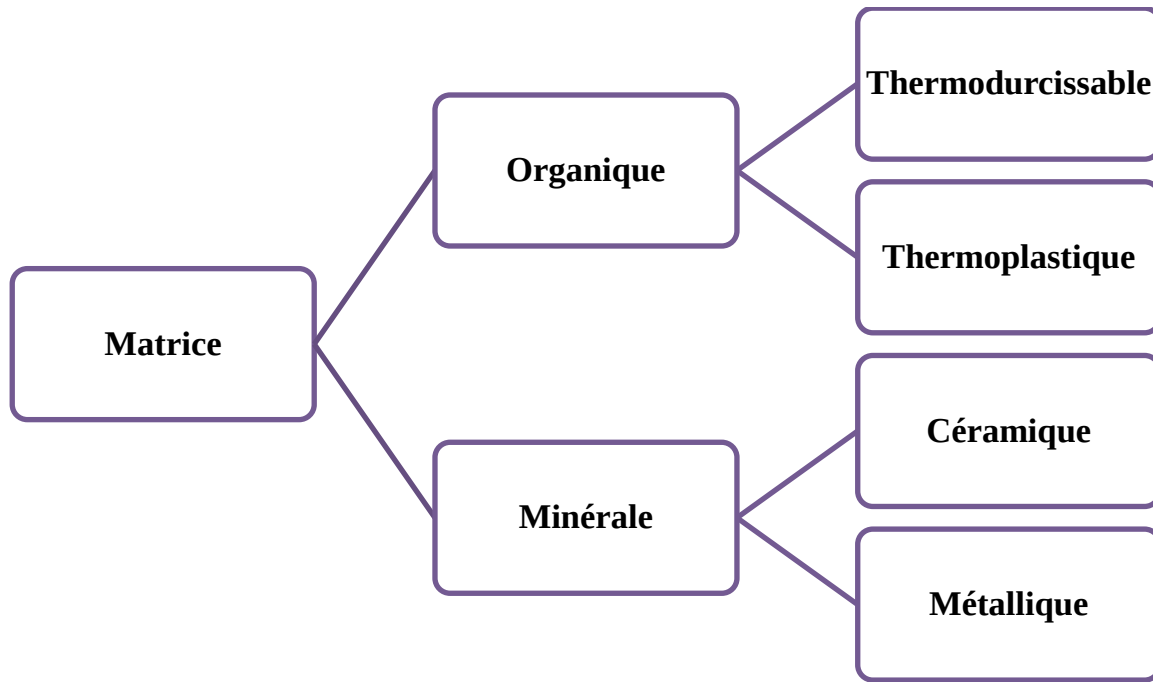


Figure 17 Types des matrices

Un matériau composite est constitué principalement de deux phases nommées renforts et matrice. Lorsque le matériau composite est non endommagé, les renforts et la matrice sont parfaitement liés et il ne peut pas y avoir ni glissement ni séparation entre les différentes phases.

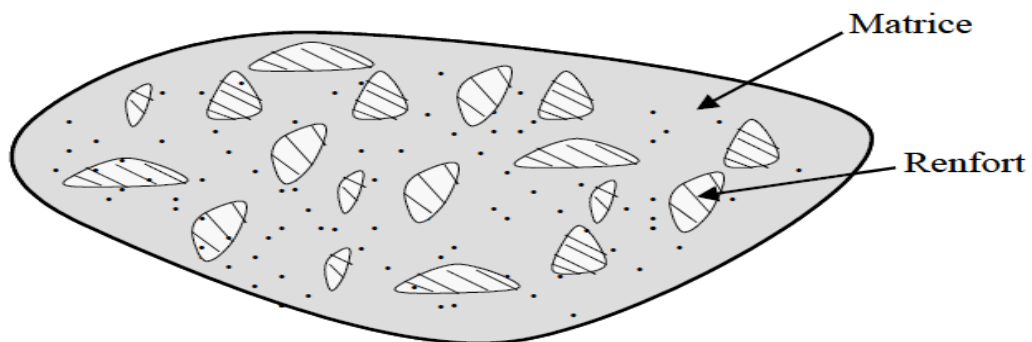


Figure 18 Matériau composite en générale

I.6.2 Structure d'un matériau composite

Matrice

La matrice assure la cohésion entre les renforts de manière à répartir les sollicitations mécaniques. Dans un grand nombre de cas, la matrice constituant le matériau composite est

une résine polymère. Les résines polymères existent en grand nombre et chacune à un domaine particulier d'utilisation. Dans les applications où une tenue de la structure aux très hautes températures est requise, des matériaux composites à matrice métallique, céramique ou carbone sont utilisés.

Renfort

Le renfort a pour rôle de supporter l'essentiel des efforts mécaniques appliqués au matériau composite grâce à ses caractéristiques mécaniques élevées. Il se présente sous forme de particules ou fibreuses. L'arrangement des fibres, leur orientation et leur taille permettent de renforcer les propriétés mécaniques de la structure. La recherche de renforts performants s'oriente dans le cas des renforts fibreux, à quelques exceptions près, vers les fibres de verres, de carbone, etc., du fait de leurs hautes performances mécaniques et de la relative maîtrise quant à leur élaboration. D'autres fibres sont également commercialisées mais restent peu utilisées du fait de leur mise en œuvre plus complexe et de leur coût plus élevé : fibres multibrins de carbure de silicium, d'alumine et de silice,....

Les propriétés mécaniques de l'interface entre renfort et matrice sont très importantes dans la réalisation d'une structure composite.

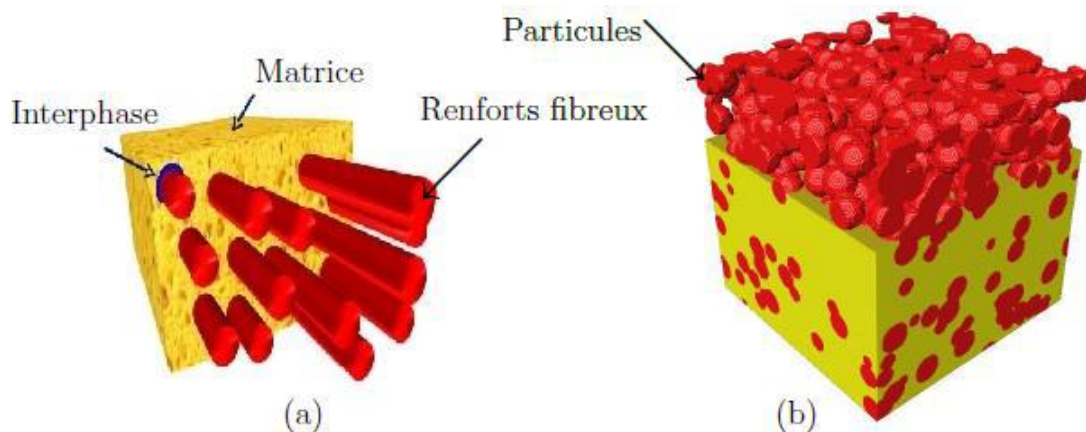


Figure 19 composites hétérogène de renfort : (a) fibre et (b) charge

I.6.3 Mortier polymère ou la composites à matrice organique

La matrice organique (le liant ou la résine)

Le béton polymère est un matériau composite formé par l'association d'une matrice organique (thermodurcissable ou thermoplastique) et des charges ou renforts.

Un polymère peut être défini comme un enchaînement d'unités structurales répétitives. L'unité de répétition dans le polymère étant le monomère. Un monomère est une molécule composée principalement de carbone et d'hydrogène. Le terme macromolécule, désignant de grandes molécules, est souvent utilisé pour désigner un enchaînement de monomères

Les polymères réticulés sont obtenus à partir de pré-polymères linéaires ou ramifiés de faible poids moléculaire. Ils sont réticulés sous l'effet de la chaleur en présence de catalyseur. Leur structure est tridimensionnelle et dans ce cas, la mobilité des molécules est limitée d'où des résines quasi infusibles et insolubles. Cette structure est caractéristique des polymères thermodurcissables

La polymérisation désigne une réaction chimique, en fonction du temps et de la température, conduisant à la solidification de la résine de manière irréversible (valable uniquement pour les thermodurcissables). La taille de la macromolécule d'un polymère est caractérisée soit par sa masse moléculaire, soit par son degré de polymérisation (nombre de molécules de monomère formant la macromolécule). De nombreuses propriétés de polymères dépendent de ces caractéristiques et notamment la rigidité moléculaire qui traduit le mouvement de certaines liaisons ou groupements d'atomes. Ainsi, la structure moléculaire peut favoriser ou restreindre la libre rotation des segments de molécule, modifiant les propriétés mécaniques, en particulier la rigidité

Les polymères ne sont pas utilisables à l'état pur. Pour les rendre utilisables comme matériaux industriels, certains additifs sont rajoutés aux polymères et le semi-produit obtenu est appelé plastique (Tableau 9).

En général les polymères sont classés par leurs propriétés thermomécaniques soit les thermoplastiques ou les thermodurcissable (Tableau 10).

Les thermoplastiques : Dans les thermoplastiques les très longues chaînes sont reliées les uns aux autres par des faibles forces de Van der Waals. Sous l'effet de la chaleur, les thermoplastiques ramollissent et deviennent souples. On peut alors leur donner une forme qu'ils garderont en refroidissant. La transformation est réversible et renouvelable un grand nombre de fois. Les thermoplastiques sont ainsi facilement recyclables. Cependant ils ne sont pas biodégradables et ont une « durée de vie » de plusieurs centaines d'années.

Tableau 9. Type des polymères

Les polymères	Thermodurcissable	Résine polyester insaturé, Epoxy, Furane Vinylester ou Vinyl ester, Polyuréthane Phénoplastes, Aminoplastes
	Thermoplastique	Poly acétals ou polyoxyméthylène (POM), Polychlorure de vinyle (PCV), Polyamides (PA), Poly méthacrylate de méthyle (PMMA), Polyéthylène (PE) Polypropylène (PP), Polystyrène (PS), Polycarbonate Polyesters et polyéthylène téréphtalate (PET)

Tableau 10 propriétés des polymères

	Thermoplastiques	Thermodurcissables
Etat de base	Solide (prêt à l'emploi : Polymérisé)	Liquide visqueux à polymériser
Stockage de la matière de base	Illimité	Temps réduit
Mouillabilité des renforts	Difficile	Aisé
Cycle	Court	Plus long
Tenue au choc	Assez bonne	limitée
Tenue au thermique	Réduite sauf nouveau matériaux	meilleur
Chutes et déchets	recyclables	Perdus ou recyclés en charges
Condition de mise en œuvre	Bonne + propreté	Émanations pour méthode humide (allergie possible)

La matrice thermodurcissable

Les chaînes formées par des nœuds de réticulation et les sous macromoléculaires sont reliées entre elle par des nœuds de réticulation et sous l'action de la température et du refroidissement, ils conservent un comportement solide. A température plus élevée, ils se dégradent sans fondre et ils ne se ramollissent pas.

Ces plastiques prennent une forme définitive au premier refroidissement ils deviennent durs et ne se ramollissent plus une fois moulés. La technique de fabrication est difficile à mettre en œuvre mais elle produit des matériaux très solides et très résistants aux agressions chimiques et à la chaleur.

On distingue deux formes de polymères thermodurcissables

Résines liquides : les charges sont introduites par le transformateur, dans les résines, au moment du moulage par coulée, en même temps que catalyseurs, durcisseurs, accélérateurs, colorants, etc. On prépare de la même façon les prémix qui sont à base de polyesters insaturés.

Poudres à mouler: les charges sont introduites par le producteur, dans les résines, alors qu'elles sont à un stade intermédiaire de leur évolution chimique, en même temps que catalyseurs, colorants, lubrifiants internes, etc.

La résine époxy

Le terme époxyde désigne une grande variété de prépolymères comportant un ou plusieurs motifs époxydiques qui, après polycondensation avec un durcisseur, forment des produits thermodurcis dont les principales applications concernent le collage et les matériaux composites (matrice époxyde avec des renforts en fibre de verre ou de carbone). Il s'agit de produits performants qui rentrent dans un très grand nombre d'applications, dont certaines sont d'un niveau technique incontestablement élevé :

- industrie aéronautique et automobile (collages de structures et de panneaux) ;
- industrie électrique moyenne et haute tension (surtout appareillage électrique) ;
- électronique (enrobages de condensateurs, confection de circuits imprimés, etc.) ;
- sport (skis, raquettes, arcs et flèches de compétition, cadres de vélos en carbone, roues lenticulaires...) ;
- outillages (modèles à reproduire, maîtres modèles, boîtes à noyaux, etc.) ;
- stratifiés et composites (nids d'abeilles, structures triangulaires, arbres de transmission, carrosseries de voitures de sport...) ;
- revêtements résistant aux agents chimiques, réparation de fissures de barrages etc.

La résine polyester

Ces résines, découvertes en 1942, sont souvent utilisées sous forme stratifié, lamifié et/ou renforcé par des fibres de verre. La résine est obtenue par polycondensation d'un ou plusieurs diacides avec un ou plusieurs glycols. Principales utilisations de ces résines sont: les coques et cabines de bateaux, les carrosseries d'automobiles, les réservoirs et bacs, les piscines, vernis, certains bétons, toitures.

Ce polymère est un thermodurcissable, ce qui empêche le recyclage matière.

Les principales propriétés mécaniques de la résine polyptère sont :

- Résistance en flexion : selon le type de résine, elle peut varier de 40 à 170 MPa.
- La résistance en traction peut varier de 7 à 70 MPa selon le type de résine.
- Allongement à la rupture : les taux élevés d'instauration entraînent un faible allongement à la rupture, de 1 à 3 % pour la plupart des résines.
- Module d'Young en flexion : selon les types, il varie de 1400 à 6000 MPa.
- Résistance en compression : les résines polyesters ont un excellent comportement en compression. La résistance, selon les types, se situe entre 800 et 2500 MPa.

Les matrices thermoplastiques

Le polypropylène (PP)

Le PP est un thermoplastique de grande diffusion et d'utilisation. Utilisé souvent dans de nombreux secteurs, et en particulier dans l'emballage, l'industrie automobile, l'électroménager, le sanitaire et le textile, sa production représente plus du cinquième des plastiques produits dans le monde. Polypropylènes (PP)

Le polypropylène est une polyoléfine résultant de la polymérisation coordinative des monomères propylènes $[(CH_2=CH-CH_3)]$ en présence de catalyseurs, principalement la catalyse de ZieglerNatta.

Structure des polypropylènes : sous le nom de polypropylène se cache en réalité tout un ensemble de matériaux. On peut au moins distinguer les homopolymères, les copolymères et les compounds :

- Un homopolymère est préparé ??? liant chimiquement des unités toutes identiques, le propylène en l'occurrence. Un copolymère est un assemblage de plusieurs monomères, en général propylène et éthylène, suivant des proportions et des modes variables. Les compounds sont des mélanges plus ou moins complexes.
- Homopolymères : ce sont des polymères obtenus par polymérisation d'un seul monomère, le propylène.
- Copolymères : pour réaliser des copolymères, il faut faire réagir des monomères propylènes et d'autres monomères.

- Compounds à base de polypropylène : les mélanges à base de PP les plus utilisés sont les suivants : o polypropylène chargé de talc ou de carbonate de calcium. Ces charges : augmentent la rigidité ; augmentent la tenue thermique.

Le polystyrène expansé (PSE)

Est un matériau alvéolaire rigide, peu dense, dont les principales utilisations sont l'isolation thermique des bâtiments et l'emballage des produits industriels ou alimentaires.

Il existe deux types de polystyrène expansé :

- le polystyrène expansé moulé (PSE-M) ;
- le polystyrène expansé extrudé (PSE-E) ou XPS (Extruded polystyrene foam).

Le PSE-M est obtenu à partir d'un polystyrène cristal auquel on a ajouté en cours de polymérisation, un agent d'expansion (le pentane, C_5H_{12}). Le PSE-E est quant à lui obtenu lors de l'extrusion par injection sous pression d'un gaz d'expansion (le pentane) dans le polymère cristal fondu.

Les propriétés les plus remarquables du polystyrène expansé sont :

- sa faible masse volumique ;
- son pouvoir isolant thermique ;
- ses excellentes propriétés mécaniques (résistance en compression, capacité d'amortissement des chocs) ;
- son insensibilité à l'eau ;
- sa facilité de mise en forme (moulage, découpage) ;
- sa recyclabilité.

Enfin, la production de styrène à grande échelle et la facilité de polymérisation de ce monomère conduisent à un compromis propriétés/prix particulièrement intéressant pour les deux marchés principaux du polystyrène expansé.

Les polyesters saturés PBT, PET

Les polyesters saturés, qui font l'objet de ce fascicule, sont des produits finis, mis en œuvre par fusion (injection, extrusion...). Ces polyesters saturés sont des matières thermoplastiques.

Polymères: les polyesters thermoplastiques couramment moulés par injection sont au nombre de deux, dont la norme ISO 104332 a normalisé les abréviations :

- PBT : poly (téréphtalate de butanediol-1,4)

- PET : poly(téréphtalate d'éthylèneglycol).

Les PBT et PET sont des polymères semi-cristallins (à l'état solide, une partie de la matière est amorphe et le reste est cristallisé). Le taux de cristallinité ne dépasse pas 40 à 50% en volume. Un certain nombre de facteurs influent sur la vitesse de cristallisation :

- la nature chimique;
- la masse moléculaire

Description et principe de mise en forme des thermoplastiques

L'extrusion est une technique de fabrication en continu, elle consiste à transporter, fondre, malaxer, plastifier, comprimer la matière thermoplastique dans une extrudeuse à l'aide d'une vis de plastification. Ensuite la matière plastifiée passe sous pression au travers de la filière pour donner la forme du profilé.

Les machines d'extrusion peuvent être compliquées à utiliser, mais l'ensemble du processus est relativement simple. Le cœur de la machine est la vis. La vis est actionnée par une boîte de vitesses, qui est actionné par un moteur.

Les granulés thermoplastiques sont insérés dans la machine à travers une trémie. La trémie est située à l'arrière de l'ensemble tube/vis, les granulés tombent dans la machine depuis cette trémie. Lorsque la vis tourne, elle entraîne lentement les granulés thermoplastiques vers l'avant. La chaleur dégagée par le frottement de la vis qui tourne à l'intérieur du tube – en plus d'une unité de chauffage externe – fait fondre la matière plastique. Le plastique fondu est alors envoyé vers l'avant de la machine pour la suite du processus

La matière chaude subit alors des opérations diverses visant à lui donner son aspect et sa forme définitive: soufflage (films, corps creux) ou conformation (tubes profilés), ou encore calandrage (feuilles plastiques, enduction). La matière est ensuite refroidie et figée dans sa forme définitive, soit dans l'air (gaine) soit dans l'eau (joncs, tubes, plaques, profilés, câbles), soit encore sur des cylindres refroidis (cas du film à plat et de l'enduction). Toutes les matières thermoplastiques peuvent être extrudées

Une extrudeuse est essentiellement constituée d'un fourreau cylindrique en acier de haute résistance dans lequel vient tourner une vis entraînée en rotation par un moto-variateur. Cet ensemble vis fourreau est thermo-régulé par un ensemble de résistances électriques ou par circulation de fluide. La matière est introduite dans la trémie qui s'ouvre sur le fourreau à

l'entrée de la vis et celle-ci la pousse de façon continue jusqu'à la filière. Il existe deux types d'extrudeuses bi-vis:

- Les extrudeuses bi-vis co-rotatives: Les vis tournent dans le même sens et ont le même sens de filet. Le trajet en "8" ouvert, fait des extrudeuses bi-vis co-rotatives des machines bien adaptées au compoundage car elles privilégient plutôt le malaxage de la matière que la montée en pression
- Les extrudeuses bi-vis contra-rotatives: Les deux vis tournent en sens inverse. La matière est enfermée dans un espace en forme de "C" Elle subit un cisaillement et une montée en pression très importante

Au fil du temps, la technologie d'extrusion bi-vis est devenue incontournable dans plusieurs industries car elle offre de nombreux avantages par rapport à l'extrusion mono-vis ; parmi ces avantages :

- Meilleure maîtrise de la capacité production et de la qualité des produits finis
- Productivité améliorée grâce aux démarrages, arrêts et changements de produits plus rapides, et à une automatisation avancée
- Plus grande flexibilité avec la capacité de transformer une large gamme de matières premières
- Des retombées environnementales plus marquées grâce aux économies d'eau et d'énergie, à de meilleurs rendements
- Simplicité et facilité d'entretien et de nettoyage.

Charges minérales

La charge est en général toute substance inerte, minérale ou végétale, qui forme le squelette du béton. Dans les mortiers à matrice polymère on peut utiliser n'importe quel charge utilisable dans les mortiers/bétons hydrauliques. La plupart des recherches recommande le séchage des charges avant de le mélanger à la résine. Il a été rapporté que la teneur en eau des granulats ne devrait pas dépasser 0.1% et le teneur en eau influe sur les propriétés mécaniques [45]. Il est conseillé que le teneur d'eau des granulats ne dépasse pas 0.1% à 0.5%[46][47][48]. L'incorporation des charges dans une matrice polymère a un rôle important ; les charges améliorent plusieurs propriétés des matériaux polymère. Divers types de charges incorporer dans la matrice polymère tels que les charges organiques naturelles (cellulosiques, farines de bois, fibres végétales et pâte de cellulose...), les charges organiques synthétiques (polyéthylène, Polystyrène), charge minérales (craies et carbonates, silice, talcs,

argiles et alumino-silicates...), les oxydes et hydrates métalliques(Poudres et microsphères, Alumine et trihydrate d'aluminium, Oxyde de magnésium, Céramiques...), les verres(Poudre de verre, Fibres de verre...), le carbone (Noir de carbone...), les charges métalliques

Les agrégats/charges constituent environ 75 à 80% en volume de mortier/béton polymère. La granulométrie des agrégats peut être des grossières comprenant des grains de taille supérieure à 5 mm ou bien fines avec une taille de grains inférieure à 5 mm. Dans la formulation des mortiers/bétons polymères, l'association des charges fines dans le mélange d'agrégats grossiers permet de réduire les vides intra-granulaires.

Parmi les grandes problématiques est la gestion des déchets afin de limiter leur influence sur l'environnement. Certains types de charges minérales peut être issu de déchets ou sous-produits industriels, tel que les cendres volantes. Les mortiers/bétons polymères sont très attrayant en raison de leur compatibilité physicochimique avec les déchets, permettant ainsi d'avoir des matériaux conformes aux différentes filières de valorisation. Par ailleurs, le développement de ces nouveaux matériaux rencontre des barrières majeures ; D'une part, le coût élevé des résines qui est généralement considérée comme le principal facteur limitant. D'autre part, la croissance des volumes de déchets à gérer annuellement.

I.6.4 les facteurs influent sur les propriétés des mortiers/bétons polymères

- ***Influence du choix du type de résine***

Le type de résine utilisé pour la formulation des mortiers/bétons polymères est déterminant et conditionne les performances physicomécaniques des matériaux formulés. Les résines époxy sont préférables aux résines polyester en raison de leurs meilleures propriétés mécaniques ainsi que de leur durabilité. En effet, plusieurs études comparatives entre des bétons à matrices époxy et des bétons à matrices polyester, avec le même type et le même taux de charges, ont montrées que les bétons époxy présentent de meilleures propriétés mécaniques, et en particulier les résistances à la flexion. Par ailleurs, les propriétés des bétons polyester peuvent être améliorées par l'ajout de micro-charges telles que les cendres volantes ou par un traitement de surfaces des charges avec des agents de couplage tels que les silanes. Ces derniers peuvent jouer un rôle important quant à l'amélioration de l'adhérence entre les charges à la matrice [49] ; [50] ; [51] ; [52] ; [53] ; [54].

Par ailleurs, la modification de la résine par des ajouts peut aussi modifier le comportement des matériaux formulés. En effet, Jamshidi and Pourkhorshidi [55] et

Gorninski et al. [56] ont montrés que pour le même type de matrice (polyester), à laquelle on rajoute d'autres composés chimiques (polyester insaturé et polyester modifié - polyester orthophtalique et Polyester isophtalique), on peut avoir des matériaux formulés différents avec des caractéristiques physicomécaniques complètement différentes.

Il s'avère que les bétons polymères à matrice de polyester orthophtalique présentent des propriétés mécaniques et chimiques inférieures à celle des bétons à matrice polyester isophtalique [57].

- ***Influence de la quantité de la résine***

Les dosages de résine rapportés par divers auteurs se situent généralement dans la gamme de 10 à 30% en masse du béton polymère. Les premières études sur le béton polymère tout en prenant la teneur en résine comme variable ont montré que les propriété mécanique dépend de la teneur en résine [53] ; Des chercheurs Golestaneh et al. 2010 ont montré que [58] la quantité de résine époxy polymère avait une grande influence sur les propriétés mécanique de béton fabriqué ; Hassani Niaki et al. [59] ont fabriqués des bétons époxy a charge de basalte, ils ont noté que l'augmentation de la quantité de la résine époxy améliore les propriétés mécaniques ;Ferreira et al [60] ont montré que dans le béton polymère à charge de (sable propre et sable de fonderie) la résistance augmente lorsque la teneur en résine augmente.

- ***La quantité et la nature des charges (minérales ou organiques)***

Les performances d'un béton/mortier polymère dépendent également de la nature, et en particulier la granulométrie des agrégats utilisés dans le mélange. Ceci conditionne aussi le dosage en résine, car lors de l'utilisation d'agrégats fins il est recommandé d'augmenter le dosage en résines, en raison de la grande surface de ces matériaux fins. Une étude réalisée par Agavriiloaie et al. [61] sur le béton à matrice époxy avec deux classes granulométriques de granit concassé (0-1mm et 1-3mm), a permis de montrer que la granulométrie des charges influe sur les résultats des résistances mécaniques. En effet, pour le même dosage massique des deux classes granulométriques, les auteurs ont montrés que les mortiers contenant les granulats les plus grossiers présentent les meilleures performances mécaniques. Les pourcentages de granulats grossiers et fins doivent être choisis de manière à ce que le mélange granulaire présente un minimum de vide et une densité apparente maximale, ce qui se traduit par une meilleure compacité granulaire [62] ; [63]. De ce fait, la quantité de liant nécessaire pour assurer une bonne liaison et une meilleure adhérence entre les particules et la matrice est

minimisée. Par contre, très peu d'études ont été rapportées dans la littérature concernant le dosage et l'optimisation d'agrégats dans les mortiers/bétons polymères.

D'un autre côté, il a été démontré que la forme des charges influe considérablement sur les liaisons charges/résine, et par conséquent sur les propriétés physicomécaniques et chimiques des mortiers/bétons polymères. Kou and Poon [64] ont utilisés plusieurs types de charges (verre recyclé (5-10mm), sable de verre recyclé ($D < 2,36$ mm), des cendres volantes et des métakaolins) pour la fabrication des bétons polymères à matrice époxy. Les meilleures performances ont été observées avec les formulations contenant les cendres volantes. Ceci a été justifié par le fait que les cendres volantes, de formes sphériques, adhèrent mieux à la matrice. Aussi par leur forme sphérique, les cendres volantes ne favorisent pas l'apparition de micro fissures sous l'effet du chargement, à l'inverse aux particules de métakaolins qui ont une forme angulaire. Ces conclusions ont été confirmées par les travaux de [54] et de [65] ; [66] ; [67] ; [68].

Une autre étude menée par Bourguiba et al. [69] sur les mortiers de réparation à base de polymères époxy avec des charges de forme différentes (sable normalisé de forme arrondie et sable recyclé de forme angulaire). Les résultats montrent que les mortiers formulés avec 20% de résine époxy et du sable normalisé présentent les résistances mécaniques les plus élevées par rapport aux mortiers de sable recyclé. Cette étude a permis de conclure que le mortier de résine le mieux adapté à la réparation des ouvrages de génie civil est celui formulé avec 20% de résine époxy et du sable normalisé.

- ***Conditions de cure***

Plusieurs conditions de cure et de durcissement ont été étudiés dans la littérature, tels que la cure à température ambiante, la cure à haute température, la cure dans l'eau, etc. Vipulanandan and Paul [70] qui ont travaillé sur les conditions de cure d'un béton polymère Polyester et du sable, ont montrés qu'une cure à température ambiante pendant 1 jour suivi d'une cure à 1 jour à 80 °C permet d'avoir une augmentation de la résistance à la compression d'environ 50%, par rapport à une cure de 2 jours température ambiante. Par ailleurs, Ribeiro et al. 2003 [53] ont montré qu'une cure de sept jours à température ambiante équivaut à une cure de trois heures à 80 °C.

Les travaux de recherche menés sur la durée de cure des bétons/mortiers polymères ont montrés que ces derniers atteignent environ 70–75% de leur résistance maximale après une cure d'un jour à la température ambiante, alors que les bétons de ciment Portland normal

atteignent environ 20% de leur résistance maximale à la même période de cure [71] ; [60]. Le gain rapide des résistances mécaniques est très important, surtout dans le domaine des structures préfabriquées. Ceci permet aux structures de résister au jeune âge à des contraintes élevées nécessaires pour les opérations de décoffrage, de manutention, de transport et de montage.

D'autres travaux de recherches ont montrés que la résistance à la compression du béton polymère devient presque constante après une cure pendant 7 jours à température ambiante [45].

- ***Teneur en eau initiale des charges***

La teneur en eau des granulats influence considérablement sur les résistances des bétons/mortiers polymères. De ce fait, la plupart des travaux de recherches menés sur les bétons/mortiers polymères ont suggérés de procéder au séchage des agrégats avant de les introduire dans le mélange. Il est recommandé que la teneur en eau devait être limitée à 0,1%, pour des meilleures performances des matériaux formulés [71] ; [56] ; [48].

I.7 Liste des Tableaux

Tableau 1 Granulométrie typique des sédiments marins et fluviaux français (pour la fraction <2mm)	17
Tableau 2 Principales phases cristallines présentes dans les sédiments marins et fluviaux français	17
Tableau 3 Teneur en carbone organique total dans les sédiments marins et fluviaux français	18
Tableau 4 Propriétés de danger présentées dans le Règlement 1357/2014/UE, remplaçant l'annexe III de la directive 2008/98/CE.	23
Tableau 5 Valeurs indicatives en éléments traces permettant, de par leur construction, de garantir le caractère non dangereux des sédiments au titre des propriétés HP 4 à 8, HP10, HP11, et HP13.	25
Tableau 6 Valeurs indicatives en composés organiques et en tributylétain permettant, de par leur construction, de garantir le caractère non dangereux des sédiments au titre des propriétés HP4 à 8, HP10, HP11, et HP13.	26
Tableau 7 Intervalles de temps appliqué au prélèvement et au renouvellement des éluats pour l'essai normalisé de lixiviation dynamique sur monolithes NF EN 15863 [38]	47
Tableau 8 Valeurs des seuils de conformité des matériaux granulaires et monolithiques dans l'essai de percolation et l'essai dynamique de lixiviation sur monolithique	56
Tableau 9. Type des polymères	61
Tableau 10 propriétés des polymères	61
Tableau 11 Essais de caractérisation des matériaux granulaires	83
Tableau 12 Les caractéristiques physicomécaniques des granulats	158
Tableau 13 Intervalles de temps appliqué au prélèvement et au renouvellement des éluats pour l'essai normalisé de lixiviation dynamique sur monolithes NF EN 15863	193
Tableau 14 Principales caractéristiques mécaniques et physiques	194

I.8 Liste des Figures

Figure 1 Les principaux constituants des matrices sédimentaires _____	19
Figure 2 Schéma de la composition simplifiée d'un sédiment portuaire [9] _____	20
Figure 3 Gestion des sédiments extraits lors de travaux ou d'opérations impliquant des dragages maritimes - Circulaire du 4 juillet 2008 _____	21
Figure 4 Voies possibles de valorisation ou d'élimination des sédiments en cas de gestion à terre[11] Acceptabilité environnementale des déchets _____	27
Figure 5 Classification des méthodologies nationales d'évaluation environnementale utilisées dans le domaine de la gestion des déchets [11] _____	29
Figure 6 Approche graduée pour l'évaluation du risque des substances chimiques pour l'environnement _____	32
Figure 7 Schéma général de l'ÉRE d'après [13] sur la base de la méthodologie de l'US EPA [22] _____	34
Figure 8 Organigramme décisionnel d'évaluation de l'éco-compatibilité de déchets en scénario (d'après [31]) _____	36
Figure 9 Méthodologie de la norme NF EN 12920+A1 _____	38
Figure 10 Logigramme d'identification des essais de lixiviations à mettre en œuvre en fonction du produit à tester selon la norme CEN/TS 16637-1 _____	46
Figure 11 Dispositif expérimental pour la lixiviation sur monolithes NF EN 15863 [38] _____	47
Figure 12 Présentation schématique des mécanismes de transfert de matière de la matrice cimentaire vers la solution aqueuse[39] _____	48
Figure 13 Modèle de dégradation des matrices cimentaires lixiviées par l'eau, d'après [42] et cité dans [43]. _____	50
Figure 14 Modèle de relargage de diffusion (gauche) et de dissolution (droite). _____	51
Figure 15 Logigramme sur les modalités de détermination du mécanisme principal contrôlant le relargage lors de la lixiviation sur monolithe normalisée NF EN 15863 [38] _____	52
Figure 16 Procédure de détermination des limites d'émission des matériaux de construction dans la réglementation néerlandaise (Soil Quality Decree, 2008). _____	55
Figure 17 Types des matrices _____	58
Figure 18 Matériau composite en générale _____	58
Figure 19 composites hétérogène de renfort : (a) fibre et (b) charge _____	59

Figure 20 Synthèse de la démarche de valorisation des sédiments dans les matrices thermodurcissables _____ **83**

Figure 21 Synthèse de la démarche expérimentale de l'étude _____ **157**

Figure 22 Dispositif expérimental pour la lixiviation sur monolithes [11] (NF EN 15863) _____ **192**

I.9 Références

- [1] Ramade, F., 1998. Dictionnaire encyclopédique des sciences de l'eau, France.
- [2] LIFE, 2002. Méthodes de gestion et de réutilisation des sédiments pollués. Agence de l'eau Picardie. Pôle de Compétence des sites et sols pollués. Etude réalisée par In Vivo, France, p. 126.
- [3] Ujevic, I., Odzak, N., Baric, A., 2000. Trace metal accumulation in different grain size fractions of the sediments from a semi-enclosed bay heavily contaminated by urban and industrial wastewaters. *Water Research* 34, 3055-3061.
- [4] Lin, J.-G., Chen, S.-Y., 1998. The relationship between adsorption of heavy metal and organic matter in river sediments. *Environment International* 24, 345-352.
- [5] De Gregori H, I., Pinochet C, H., Arancibia J, M., Vidal B, A., 1996. Grain Size Effect on Trace Metals Distribution in Sediments from Two Coastal Areas of Chile. *Bulletin of Environmental Contamination and Toxicology* 57, 163-170.
- [6] El Bilali, L., Rasmussen, P.E., Hall, G.E.M., Fortin, D., 2002. Role of sediment composition in trace metal distribution in lake sediments. *Applied Geochemistry* 17, 1171-1181.
- [7] Bonnet, C., 2000. Développement de bioessais sur sédiments et applications à l'étude, en laboratoire, de la toxicité de sédiments dulçaquicoles contaminés. Thèse de doctorat. Université de Metz, France, p. 326.
- [8] Geffard, O., 2001. Toxicité potentielle des sédiments marins et estuariens contaminés: évaluation chimique et biologique, biodisponibilité des contaminants sédimentaires. Thèse de doctorat. Université de Bordeaux I, France, p. 351
- [9] Proulhac, N., 2006. Schéma directeur du traitement des vases portuaires. IDRA Environnement SA, Bassin d'Arcachon (France), p. 174.
- [10] Rebischung F., Lefebvre G. Valorisation de sédiments en technique routière - GT1 : Evaluation de la dangerosité : proposition de seuils et confrontation à des données françaises, rapport INERIS-DRC-16-149793-00431B. 2017.
- [11] Y. Mamindy-Pajany, Contribution à la gestion environnementale des sédiments marins non-immérgeables provenant de sites portuaires: Approche couplée (Géo) chimie - Ecotoxicologie - Génie Civil, 2018.
- [12] Sannier L., Tivolle I., Méhu J., Aqua J.L. (2013) - SEDIMARD 83. Guide des réalisations CAP Sédiments, 57 p.

-
- [13] SEDIGEST, 2011, Programme de recherche ANR SEDIGEST. <http://www.sedigest.org/>. In : ENTPE (Ed.), Vaulx-en-Velin.
- [14] R. Achour, Valorisation et caractérisation de la durabilité d'un matériau routier et d'un béton à base de sédiments de dragage, Thèse de doctorat en Génie civil, Université de Sherbrooke, Université des sciences et technologies de Lille, 2013.
- [15] Organisation de Coopération et de Développement Economiques (OCDE). 2011. Ligne directrice 201. Lignes directrices de l'OCDE pour les essais de produits chimiques. Algues d'eau douce et cyanobactéries, essai d'inhibition de la croissance. 27 pp.
- [16] Brock, T.M.C., Arts, G.H.P., Maltby, L., Van den Brink, P.J. 2006. Aquatic Risks of Pesticides, Ecological Protection Goals, and Common Aims in European Union Legislation. *Integrated Environmental Assessment and Management* 2:20–46.
- [17] Brock, T.M.C. 2013. Priorities to Improve the Ecological Risk Assessment and Management for Pesticides in Surface Water. *Integrated Environmental Assessment and Management* 9: 64-74.
- [18] Brock, T.M.C., Crum, S.J.H., Deneer, J.W., Heimbach, F., Roijackers, R.M.M., Sinkeldam, J.A. 2004. Comparing aquatic risk assessment methods for the photosynthesis-inhibiting herbicides metribuzin and metamitron. *Environmental Pollution* 130: 403-426.
- [19] Campbell, P.J., Arnold, D.J.S., Brock, T.C.M., Grandy, N.J., Heger, W., Heimbach, F., Maund, S.J., Streloke, M. 1999. Guidance document on higher-tier aquatic risk assessment for pesticides (HARAP). Brussels (BE): SETAC-Europe. 179 p.
- [20] Boxall, A.B.A., Brown, C.D., Barrett, K.L. 2002. Higher-tier laboratory methods for assessing the aquatic toxicity of pesticides. *Pest Management Science*. 58:637-648.,
- [21] US-EPA. Framework for ecological risk assessment. Washington, DC: risk assessment forum. U.S. Environmental Agency, 1992. p. 161. EPA/630/R-92/001.,
- [22] US EPA. Guidelines for Ecological Risk Assessment. United States Environmental Protection Agency, Washington. 1998, 188 pp.
- [23] Perrodin, Y., Boillot, C., Angerville, R., Donguy G., Emmanuel, E., Ecological risk assessment of urban and industrial systems: A review, *Science of the Total Environment* 409 (2011) 5162- 5176.
- [24] Rivière J.L. Evaluation du risque écologique des sols pollués. Association RE.CO.R.D., 1998, 230p.
- [25] ECB. Technical Guidance Document (TGD) in support of Commission Directive 93/67/EEC on Risk Assessment for new notified substances, Commission Regulation (EC) No 1488/94 on Risk Assessment for existing substances and Directive 98/8/EC of the European Parliament and of the Council concerning the placing of biocidal products on the market. European Chemical Bureau, Ispra (Italy); 2003. p. 1044.

- [26] Perrodin Y, Grelier-Volatier L, Barna R, Gobbey A. Assessment of the ecocompatibility of waste disposal or waste use scenarios: towards the elaboration and implementation of a comprehensive methodology. *Waste Manag Ser* 2000, 1:504-12.
- [27] Emmanuel E, Perrodin Y, Keck G, Blanchard JM, Vermande P. Ecotoxicological risk assessment of hospital wastewater: a proposed framework for raw effluents discharging into urban sewer network. *J Hazard Mater* 2005, 117:1-11.
- [28] Feron VJ, Groten JP. Toxicological evaluation of chemical mixtures. *Food Chem Toxicol* 2002;40:825–39.
- [29] Boillot C, Perrodin Y. Joint-action ecotoxicity of binary mixtures of glutaraldehyde and surfactants used in hospital: use of TI model and isoblogram representation. *Ecotox Environ Safe* 2008, 71:252-9.
- [30] Lin Z, Du J, Yin K. Mechanism of concentration addition toxicity: they are different for nonpolar narcotic chemicals, polar narcotic chemicals and reactive chemicals. *Chemosphere* 2004, 54:1691–701.
- [31] ADEME «Evaluation de l'écocompatibilité des scénarios de stockage et de valorisation des déchets. Guide d'usage. » Novembre 2002. Réf. 4445. 147 p.
- [32] NF EN 12920+A1 Novembre 2008 Caractérisation des déchets - Méthodologie pour la détermination du comportement à la lixiviation d'un déchet dans des conditions spécifiées.,
- [33] Guide technique régional relatif à la méthodologie de gestion des sédiments de dragage portuaire (PREDIS, Nord Pas de Calais, 2006).
- [34] Acceptabilité de matériaux alternatifs en technique routière – Evaluation environnementale Sétra, mars 2011, 32 p.
- [35] Note technique à l'intention des DREAL précisant la nature des ouvrages de travaux publics comparables aux ouvrages routiers pour l'examen de l'acceptabilité environnementale des matériaux alternatifs employés, DGPR, mars 2016.
- [36] M.-O. Lupsea, Contribution à l'évaluation de l'impact environnemental des bâtiments : modélisation numérique des émissions dans l'eau des substances dangereuses, thèse de doctorat en Génie des procédés et de l'Environnement, Université de Toulouse, 2013,
- [37] European committee for standardization, CEN/TS 16637-1: TECHNICAL SPECIFICATION Construction products - Assessment of release of dangerous substances - Part 1: Guidance for the determination of leaching tests and additional testing steps, (2014).,
- [38] European committee for standardization, NF EN 15863: Characterization of waste — Leaching behaviour test for basic characterization — Dynamic monolithic leaching test with periodic leachant renewal, under fixed conditions, (2015).

-
- [39] N. Schiopu, L. Tiruta-Barna, E. Jayr, J. Méhu, P. Moszkowicz, Modelling and simulation of concrete leaching under outdoor exposure conditions, *Science of The Total Environment*. 407 (2009) 1613–1630.
- [40] van Brakel, J. and Heertjes, P. M. Analysis of diffusion in macroporous media in terms of a porosity, a tortuosity and a constrictivity factor. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 1974, 17, p. 1093-1103.
- [41] Cranck, J. *The Mathematics of Diffusion*, 2nd edition. Oxford: Clarendon Press, 1975, 414 p.
- [42] Adenot, F. *Durabilité du béton : caractérisation et modélisation des processus physiques et chimiques de dégradation du ciment*, Thèse de doctorat, Université d'Orléans, 1992.
- [43] Moudilou, E., 2000. *Cinétiques et mécanismes de relargage des métaux lourds présents en traces dans les matrices cimentaires*. Thèse de Doctorat de l'Université d'Orléans, 219 pp.
- [44] A. Verschoor, J. Lijzen, H. van den Broek, R. Cleven, R. Comans, J. Dijkstra, P.H.. Vermij, *Kritische emissiewaarden voor bouwstoffen Milieuhygiënische onderbouwing en consequenties voor bouwmaterialen*, RIVM, Bilthoven, 2006.,
- [45] Y. Ohama, *Mix Proportions and Properties of Polyester Resin Concretes*, SP. 40 (1973) 283–294. doi:10.14359/17394.
- [46] K.S. Rebeiz, S.P. Serhal, A.P. Craft, *Properties of Polymer Concrete Using Fly Ash*, *Journal of Materials in Civil Engineering*. 16 (2004) 15–19. doi:10.1061/(ASCE)0899-1561(2004)16:1(15).
- [47] K.S. Rebeiz, *Time-temperature properties of polymer concrete using recycled PET, Cement and Concrete Composites*. 17 (1995) 119–124. doi:10.1016/0958-9465(94)00004-I.
- [48] B.-W. Jo, S.-K. Park, D.-K. Kim, *Mechanical properties of nano-MMT reinforced polymer composite and polymer concrete*, *Construction and Building Materials*. 22 (2008) 14–20. doi:10.1016/j.conbuildmat.2007.02.009.
- [49] S. Guhanathan, M.S. Devi, *Effect of environmental stress on the mechanical properties of surface treated fly-ash/polyester particulate composite*, *Polymer International*. 51 (2002) 289–296. doi:10.1002/pi.826.
- [50] P. Mani, A.K. Gupta, S. Krishnamoorthy, *Comparative study of epoxy and polyester resin-based polymer concretes*, *International Journal of Adhesion and Adhesives*. 7 (1987) 157–163. doi:10.1016/0143-7496(87)90071-6.
- [51] H. Abdel-Fattah, M.M. El-Hawary, *Flexural behavior of polymer concrete*, *Construction and Building Materials*. 13 (1999) 253–262. doi:10.1016/S0950-0618(99)00030-6.

- [52] W. Lokuge, T. Aravinthan, Effect of fly ash on the behaviour of polymer concrete with different types of resin, *Materials & Design*. 51 (2013) 175–181. doi:10.1016/j.matdes.2013.03.078.
- [53] M.C.S. Ribeiro, C.M.L. Tavares, M. Figueiredo, A.J.M. Ferreira, A.A. Fernandes, Bending characteristics of resin concretes, *Materials Research*. 6 (2003) 247–254. doi:10.1590/S1516-14392003000200021.
- [54] A. Garbacz, J.J. Sokołowska, Concrete-like polymer composites with fly ashes – Comparative study, *Construction and Building Materials*. 38 (2013) 689–699. doi:10.1016/j.conbuildmat.2012.08.052.
- [55] M. Jamshidi, A.R. Pourkhorshidi, Modified polyester resins as an effective binder for polymer concretes, *Materials and Structures*. 45 (2012) 521–527. doi:10.1617/s11527-011-9779-9.
- [56] J.P. Gorninski, D.C. Dal Molin, C.S. Kazmierczak, Study of the modulus of elasticity of polymer concrete compounds and comparative assessment of polymer concrete and portland cement concrete, *Cement and Concrete Research*. 34 (2004) 2091–2095. doi:10.1016/j.cemconres.2004.03.012.
- [57] J.P. Gorninski, D.C. Dal Molin, C.S. Kazmierczak, Strength degradation of polymer concrete in acidic environments, *Cement and Concrete Composites*. 29 (2007) 637–645. doi:10.1016/j.cemconcomp.2007.04.001.
- [58] M. Golestaneh, G. Amini, G.D. Najafpour, M.A. Beygi, Evaluation of mechanical strength of epoxy polymer concrete with si, (2010) 6.
- [59] M. Hassani Niaki, A. Fereidoon, M. Ghorbanzadeh Ahangari, a novel, *Structural Concrete*. 19 (2018) 366–373. doi:10.1002/suco.201700003.
- [60] A.J.M. Ferreira, C. Tavares, C. Ribeiro, Flexural Properties of Polyester Resin Concretes, *Journal of Polymer Engineering*. 20 (2000). doi:10.1515/POLYENG.2000.20.6.459.
- [61] L. Agavriiloaie, S. Oprea, M. Barbuta, F. Luca, Characterisation of polymer concrete with epoxy polyurethane acryl matrix, *Construction and Building Materials*. 37 (2012) 190–196. doi:10.1016/j.conbuildmat.2012.07.037.
- [62] O. Elalaoui, E. Ghorbel, V. Mignot, M. Ben Ouezdou, Mechanical and physical properties of epoxy polymer concrete after exposure to temperatures up to 250°C, *Construction and Building Materials*. 27 (2012) 415–424. doi:10.1016/j.conbuildmat.2011.07.027.
- [63] M. Bărbuță, M. Harja, I. Baran, Comparison of Mechanical Properties for Polymer Concrete with Different Types of Filler, *Journal of Materials in Civil Engineering*. 22 (2010) 696–701. doi:10.1061/(ASCE)MT.1943-5533.0000069.

- [64] S.-C. Kou, C.-S. Poon, A novel polymer concrete made with recycled glass aggregates, fly ash and metakaolin, *Construction and Building Materials*. 41 (2013) 146–151. doi:10.1016/j.conbuildmat.2012.11.083.
- [65] G. Sosoi, M. Barbuta, A.A. Serbanoiu, D. Babor, A. Burlacu, Wastes as aggregate substitution in polymer concrete, *Procedia Manufacturing*. 22 (2018) 347–351. doi:10.1016/j.promfg.2018.03.052.
- [66] K.T. Varughese, B.K. Chaturvedi, Fly ash as fine aggregate in polyester based polymer concrete, *Cement and Concrete Composites*. 18 (1996) 105–108. doi:10.1016/0958-9465(95)00006-2.
- [67] J.P. Gorninski, D.C. Dal Molin, C.S. Kazmierczak, Comparative assessment of isophthalic and orthophthalic polyester polymer concrete: Different costs, similar mechanical properties and durability, *Construction and Building Materials*. 21 (2007) 546–555. doi:10.1016/j.conbuildmat.2005.09.003.
- [68] N. Benzannache, A. Bezazi, H. Bouchelaghem, M. Boumaaza, S. Amziane, F. Scarpa, Statistical Analysis of 3-Point Bending Properties of Polymer Concretes Made From Marble Powder Waste, Sand Grains, and Polyester Resin, *Mechanics of Composite Materials*. 53 (2018) 781–790. doi:10.1007/s11029-018-9703-2.
- [69] A. Bourguiba, E. Ghorbel, W. Dhaoui, Résistance des mortiers résine époxy/sable recyclé à la diffusion des ions chlorures, 10.
- [70] C. Vipulanandan, E. Paul, Precast use of polymer concrete using unsaturated polyester resin based on recycled PET waste, *Journal of Materials in Civil Engineering*. 5 (1993) 62–82. doi:10.1061/(ASCE)0899-1561(1993)5:1(62).
- [71] K.S. Rebeiz, Precast use of polymer concrete using unsaturated polyester resin based on recycled PET waste, *Construction and Building Materials*. 10 (1996) 215–220. doi:10.1016/0950-0618(95)00088-7.

CHAPITRE II : FORMULATION DE MORTIERS À MATRICE THERMODURCISSABLE À BASE DE SÉDIMENTS

Sommaire

II.1 Résumé chapitre

II.2 Démarche expérimentale

II.3 Résultats de caractérisation des mortiers de polymères à base de sédiments

II.4 Conclusion

II.5 “Study the polymer mortar based on dredged sediments and epoxy resin: Effect of the sediments on the behavior of the polymer mortar”. Article soumis le 03-04-19 dans le journal “ Powder Technology “

II.6 “Eco-friendly polymers mortar for floor covering based on dredged sediments of the north of France”. Article publié le 15 February 2019 dans “journal of material cycles and waste management“

II.1 Introduction

Dans ce chapitre nous présentons les résultats de valorisation des sédiments dans une matrice thermodurcissable. Deux types de matrices thermodurcissables ont été utilisés pour la formulation de mortiers polymères: résine polyester et résine époxy. Les matériaux formulés ont été caractérisés selon les tests du référentiel UPEC relatif aux revêtements de sols. Les résultats obtenus avec les deux types de résines sont présentés dans deux articles distincts.

Les résultats obtenus montrent la faisabilité d'incorporation des sédiments de dragage jusqu'à un taux de substitution de 50% de la charge minérale dans la formulation des mortiers polymères à matrice thermodurcissables. Par ailleurs, d'après les évaluations physicomécaniques, thermiques et chimiques des mortiers polymères à matrices thermodurcissables, il s'avère que ces performances dépendent principalement des facteurs suivants : le type et le taux de résine, le taux de sédiments utilisés.

II.2 Démarche expérimentale

En premier lieu on s'est attaché d'évaluer l'influence de l'origine des sédiments sur les performances des mortiers polymères. Pour ce faire, il a été utilisé des sédiments marins du grand port maritime de Dunkerque et des sédiments fluviaux des Voies Navigables de France. Les sédiments marins et fluviaux ont été incorporés dans les mortiers polymères à matrice polyester, avec un taux en substitution du sable constant, et égal à 30%. En second lieu on s'est intéressé à évaluer l'influence du taux de substitution du sable par les sédiments fluviaux et l'influence du taux de résine dans les formulations de mortiers à matrice époxy ; Le sable a été substitué par les sédiments fluviaux à deux taux massiques (30 et 50%). Les taux massique de la résine époxy utilisés sont les suivants : 12, 14, 16, 18, 20 et 25%. La figure ci-dessous présente une synthèse de la démarche globale de ce chapitre II.

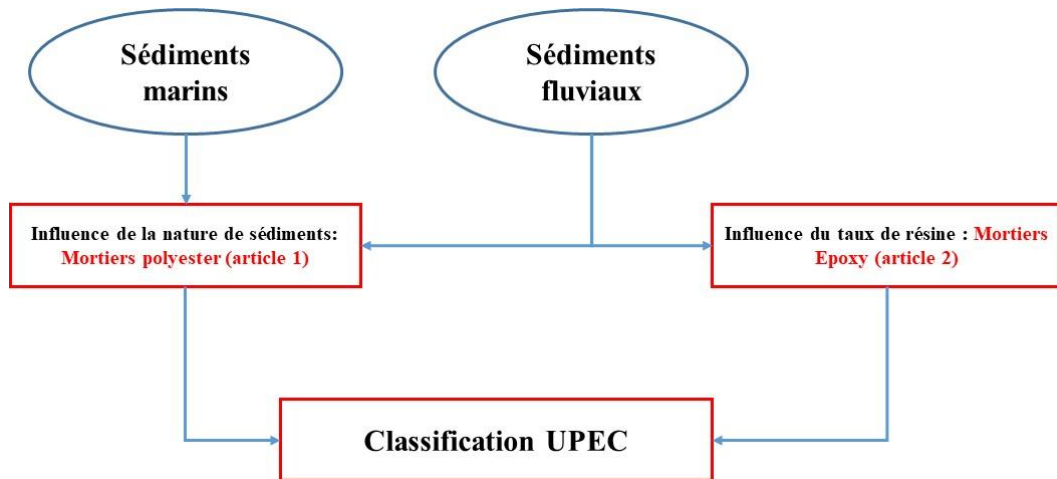


Figure 20 Synthèse de la démarche de valorisation des sédiments dans les matrices thermodurcissables

Les essais de caractérisation réalisés pour identifier les sédiments de dragages sont présentés dans le tableau ci-dessous:

Tableau 11 Essais de caractérisation des matériaux granulaires

Essai	Norme
Densité absolue	NF EN 1097 - 7
Granulométrie	ISO 13320 - 1
Surface Spécifique BET	NF EN ISO 18757
Matières organiques	XP P94 - 0447
Valeur Bleu de méthylène	NF P 94 - 068
Test de Lixiviation	EN 12457-2

Les différentes formulations de mortiers polymères à matrice thermodurcissable ont été caractérisées conformément au référentiel UPEC, d'un point de vue physicomécanique, thermique et chimique. Après leurs confections, les échantillons ont été conservés à température et humidité contrôlées (23 °C et 48% HR). Les essais physiques réalisés sur les matériaux formulés sont : la densité apparente, la porosité par intrusion de mercure et l'absorption d'eau. Concernant les tests mécaniques, la résistance à la flexion et à la compression simple ont été réalisés sur les différentes formulations de mortiers polymères à plusieurs échéances. Pour ce qui concerne les essais thermiques, qu'ils ont été réalisés sont : la mesure de la dilatation thermique linéaire conformément à la norme NF EN ISO 10545-8 et la résistance au choc thermique selon la norme EN ISO 10545-9. Les essais chimiques ont été

effectués conformément à la norme EN 10545-13, pour ce qui est de la résistance à l'attaque chimique et selon la norme EN 12457, pour ce qui est des tests de lixiviation.

II.3 Résultats de caractérisation des mortiers de polymères à base de sédiments

Suite à la caractérisation des mortiers de résines thermodurcissables, les principaux résultats des deux démarches de valorisation des sédiments de dragage sont résumés dans ce qui suit :

- Mortier de résine polyester :

Les résultats de caractérisation des mortiers polymères à base de sédiments montrent que l'incorporation des sédiments engendre une baisse des performances physicomécaniques. Ceci est dû principalement à la baisse de la compacité granulaire du mélange sable - sédiments comparée à la compacité du mélange sable - fillers. Cette baisse de la compacité est plus significative pour les formulations à base de sédiments fluviaux. Ceci peut être expliqué par le fait que la distribution granulométrique des sédiments marins est plus proche de celle des fillers calcaires. Des observations au microscope électronique ont confirmées ce constat, à travers l'observation de la porosité des différentes formulations. Néanmoins, les performances des mortiers de résines restent acceptables pour être utilisés comme matériaux de revêtement selon le référentiel UPEC.

- Mortier de résine époxy :

Selon les résultats de caractérisation des sédiments de dragage à base de sédiments fluviaux, il s'avère que l'introduction des sédiments de dragage fluviaux dans les formulations de mortiers polymères réduise leurs performances physicomécaniques et thermiques.

Par ailleurs, il apparaît clairement que le taux de résine influe significativement sur les performances physicomécaniques de ces derniers. En effet, les performances des mortiers polymères à base de sédiments deviennent acceptables à partir d'un taux massique de résine supérieur ou égal à 16%. Ceci peut être expliqué par l'influence de l'imprégnation de la charge minérale (sédiments) qui conditionne son adhérence avec la résine.

II.4 Conclusion

Dans ce chapitre on s'est intéressé à la faisabilité d'introduire des sédiments de dragage dans une matrice polymère thermodurcissable. Les mortiers polymères à base de sédiments présentent des propriétés physicomécaniques, thermiques et chimiques acceptables pour des applications tant que revêtements de surface. Ce travail a permis de d'identifier les

paramètres qui conditionnent les performances physicomécaniques, thermiques et chimiques des mortiers polymères à base de sédiments. En effet, il apparaît que la nature, la granulométrie et la compacité des mélanges ont une influence directe sur les performances des mortiers polymères.

**II.5 “Study the polymer mortar based on dredged sediments and epoxy resin: Effect of the sediments on the behavior of the polymer mortar”.
Article soumis le 03-04-19 dans le journal “ Powder Technology “**

Optimization of the polymer mortar based on dredged sediments and epoxy resin: Effect of the sediments on the behavior of the polymer mortar

Walid MAHERZI, Mahfoud BENZERZOUR, Ilyas ENNAHAL, Yannick MAMINDY-PAJANY, Nor-Edine ABRIAK

LGCgE-Laboratoire de Génie Civil et géoEnvironnement, Département Génie Civil and Environnemental, IMT Lille-Douai, Univ. Lille, EA 4515, 764 BD Lahure, 59500 Douai, France

Abstract

A large volume of river sediments dredged in France, the sediment falls within the framework waste; the management of these sediments represents a major economic, environmental and social challenge. Among the waste management solution is valorization. Several studies have shown the potential of upgrading sediments in the civil engineering field. However, the complexity of sediments represents a scientific challenge in terms of their incorporation into civil engineering fields; most of the sediment compositions are minerals or organic matter or contaminants. In this study, we present river sediments recovery results, in a thermosetting matrix. The thermosetting matrix used for the formulation of mortars is an epoxy. The formulated materials have been characterized according to the benchmark tests for applications of materials formulated in the field of civil construction.

The characterization results of polymeric mortars show the feasibility of incorporating dredged sediments up to a 50% substitution rate of natural sand in the thermosetting formulation. Moreover, according to the physic, mechanical, thermal and chemical evaluations of the thermosetting matrices, it appears that the performances depend on the factors of the rate of resin and the rate of sediments used. Indeed, the difference between the performances of resin mortars containing sediments and mortars without sediments is reduced by a resin content equal to 18%. In comparison with cementitious matrix mortars, the performances of polymeric mortars are well above. Finally, the SEM observations of different formulations made it possible to explain the results observed at the macroscopic scale.

Keywords: sediment, beneficial reuse, waste management; polymer concrete, sustainability

I. Introduction

In France the river sediments extract represents 6 million m³ per year [1]. This accumulation gradually reduces the depth of rivers and becomes a constraint for river transport. The river network of Nord-Pas-de-Calais suffers from significant sedimentation, due to the low flows and slopes that characterize its hydrographic network. This phenomenon is fueled by significant inputs suspended matter from urban storm water runoff, erosion of agricultural soils, industrial activities and sanitation networks.

Fluvial sediments after the dredging operation are considered as waste in accordance with national legislation. Fluvial dredging sediments have specific physical and chemical characteristics comparing with natural aggregates like:

- Pollutants such as heavy metals (Hg, As, Cr, Tl, Pb, etc.); the organic pollutant (PCB, PAH, etc.) [2,3] is concentrated in the sediments which imposes a risk of transfer of these pollutants from the sediments to the ecosystem.
- the organic matter that affects the physical and mechanical properties [4]
- the grain size distribution [5]

The polymer mortar is a composite material comprises a polymeric binder and a hardener and aggregates. The polymer mortar was developed for the first time in the 50's [18], then became well known in the 70's [19]. Today it is shown that polymer matrix materials have the following advantages: high strength properties [22], fast curing time [23], good chemical resistance [24,25] and corrosion ease of manufacture, and it has a long service life and low permeability. Polymer mortars have been used in several civil engineering applications, mainly used for flooring and repairing cracks in damaged concrete structures, pavements, sewage pipes, hazardous waste containers, several prefabricated products such as acid tanks [20,21]. The performance of polymeric mortars depends on several factors; such as resin content [26,27]; the quantity and size of the aggregates [28,29]; the nature and the shape of the aggregates [30]; the bonding between the particle and matrix [31]. several studies have demonstrated the feasibility of using natural mineral aggregates as filler in polymeric materials, such as River Sand [28], standardized siliceous sand [33], crushed basalt [34]; On the other hand, other researchers have used waste such as recycled glass [35], foundry sand [32], fly ash [36,21,37], red mud [38], waste polyethylene terephthalate (PET) [39,40], marble powder waste [41], wood flour [42].

A number of research studies have been carried out in order to reuse sediment as secondary raw materials, like as in sub base materials for road construction [6,7,8], in cement matrices [9,10,11], in lightweight aggregates formulation [12,13]. However, they have shown that the use of sediments in cementitious matrices influences the characteristics of fresh concrete (rheology, setting time) [14,2,15] and hardened concrete (strength and durability) [16,17]. Ennahal et al. [43] used marine and fluvial sediments to make polyester matrix mortars.

Our research study carried out the feasibility of reusing sediments as aggregates in a thermosetting polymer matrix. The mechanical strengths of a polymer mortar mainly depend on the intragranular porosity. The formulations of resin mortar were optimized using the Packing Density Model. The purpose of the packing density model is to optimize the granular skeleton to reduce intragranular porosity. Once the granular skeleton was optimized, the resin was added to bind the particles and at the same time to fill the intragranular porosity. It is noted that the epoxy resin does not exhibit any significant dimensional change in hardening. Therefore, this optimization method makes it possible to have a better mixture in the hardened state.

II. Materials and characterization

II.1. Resin

The RECKLI EPOXI EP binder used is a two-component, solvent-free, transparent epoxy-based castable resin. the resin is supplied by SOCECO RECKLI. Two different hardeners are proposed; the final results are the same but the reaction rate is changed. The hardener was selected with a reaction rate of between 40 minutes and 50 minutes. The epoxy resin can be mixed with different fillers and will allow, according to the proportion of resin, to obtain mortars. Table 1 presents the characteristics of the epoxy resin.

Table 1. Characteristics of the used epoxy resin

Proportions of the mixture	mix ratio resin to hardener => 2:1
Density	1.1 g / cm ³
Hardness Shore D	70 – 75
Hardness of the core	70 - 75 N / mm ² at 14 days
Heat resistance	+40 ° C to +45 ° C
Operating temperature	+10 ° C to +30 ° C
Viscosity	1000 - 1200 mPa.s

II.2. Characterization Aggregates

The sediment used to make the mortar; it is fluvial sediment from the Neufossé channel (framed area in red on the Fig1) was provided by (the navigable ways of France (VNF)). The sand used is standardized sand (ISO 679 standardized sand) is natural siliceous sand, especially in the finest fractions. It's clean; the grains are of generally isometric and rounded shape.



Figure 21. Navigable network of the Nord-Pas de Calais Regional Directorate of Voies navigables de France (VNF-SDRTD, 2009)

The sediment and sand density was measured using a Micromeritics Accupycs 1330 helium pycnometer model. This test was performed in accordance with standard NF EN 1097-7: (2008). In accordance with standard NF EN ISO 18757: (2003), the BET surface area was also measured, thus enabling the fineness of the materials to be evaluated using a Micromeritics Autopore IV 9505 instrument. The evaluation of the material organic is carried out by the fire loss test according to the standard XP P94-0447: (1998) consisting of calcination at 450 ° C for 3h and a measurement of the loss of mass. The methylene blue (VBS) absorption test for the evaluation of the clay was also carried out in accordance with standard NF P 94 - 068: (1998). Table 2 presents the physical characterization of the sediments

Table 2. Characterization of the river sediments

Characteristics	Standards	sediment	Sand
density (Kg/m ³)	NF EN 1097-7	2610	2650
Methylene blue value (g/100 g of dry matter)	NF P 94-068	0.53	0.50
Organic matter content (%) at 450° C	XP P94-047	4.2	0.1
BET Surface (m ² /g)	NF EN ISO18757	11.0079	-

Determination of the particle size is performed with an LS 13320 laser apparatus. The particle size distribution of the aggregates is shown in the figure (Fig 2).

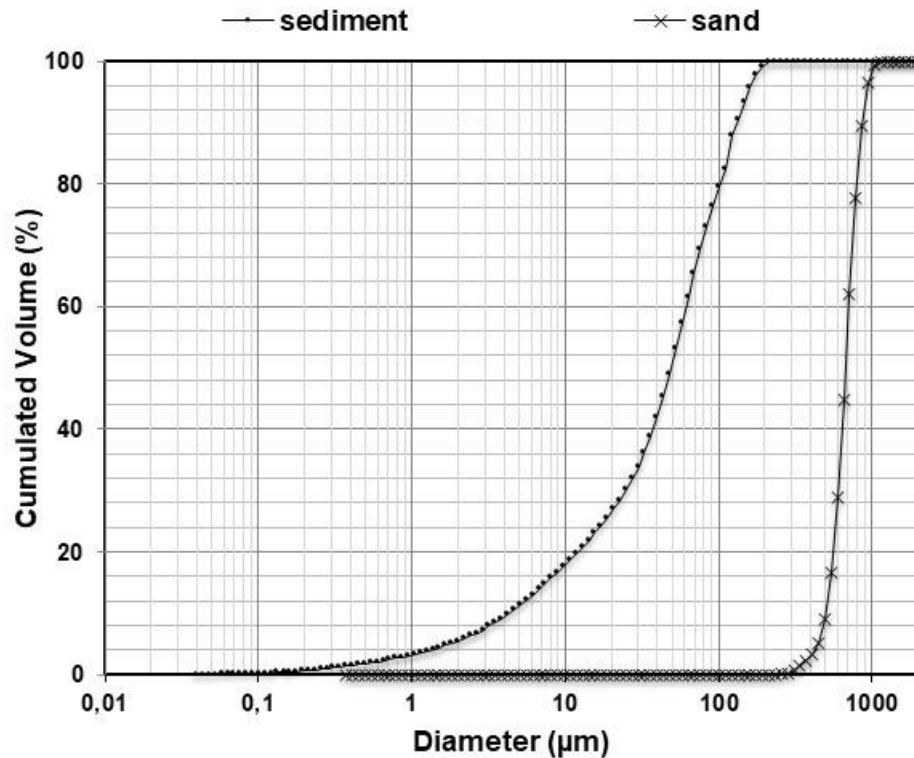


Figure 22. Particle size distribution of aggregates

The mineralogical characterization of sediment and sand is carried out essentially by X-ray diffraction analysis (XRD or XRD = X-Ray Diffraction). The analysis is carried out using a device of the Siemens D5000 type and consists of a measurement of the intensity and the diffraction angles pertaining to the internal atomic structuring. This is completed by an X-ray fluorescence (FX) analysis to determine quantitatively the chemical elements involved.

The results indicate that the sediment composition consists mainly of quartz (SiO_2) with a low presence of calcite (CaCO_3). We also note the presence of minor mineral phases such as albite ($\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$), orthoclase (KAlSi_3O_8) and muscovite ($\text{KAl}_2(\text{AlSi}_3\text{O}_{10})(\text{OHF})_2$). According to the semi-quantification carried out by X Ray diffraction, the majority clays of the sediment are muscovite and illite-illite interstratified. Chlorite and kaolinite are also observed in smaller proportions. Quartz and calcite are the major non-clays composing the sediment. Different families of feldspars are also present in smaller quantities as well as dolomite in the form of traces.

The XRD analysis highlighting the crystallized phases thus proves that this sand consists exclusively of crystallized silica (Quartz) Which corresponds to the very nature of the sand.

The results (Table 3) show that the sediment mainly contains oxygen (O), silicon (Si) and calcium (Ca). Iron (Fe) and aluminum (Al) are present in significant amounts. Several elements are observed at levels close to 1%, this is the case of magnesium (Mg) and potassium (K). Finally, it should be noted the presence of very low levels of sodium (Na), phosphorus (P), and sulfur (S), titanium (Ti) and chlorine (Cl) in the form of traces.

Table 3. Elemental composition in X-ray fluorescence of the sediment

Elements (%)	O	Na	Mg	Al	Si	P	S	Cl	K	Ca	Ti	Fe
Content	48,5	0,4	0,9	6,7	24,8	0,5	0,4	Traces	1,8	11,8	0,5	3,6

The leaching tests were carried out in accordance with the European standard EN 12457-2. This European standard has the status of French standard (December 20, 2002). The principle of the test consists in exposing the crushed material to a leachate during 24 hours, and then analyzes the eluate obtained. Each material having a particle size less than or equal to 4 millimeters was tested in triplicate reduced to a maximum particle size of 4 mm. It applies to fragmented waste and sludge with a particle size less than 4 millimeters, the reduction of the size of the particles meeting this criterion being possible. A test portion corresponding to 90 g (± 5 g) of dry mass is placed in a one-liter flask. The material of the flask is chosen so as to limit as much as possible the interactions with the waste tested and as a function of the substances assayed during the analysis of the eluate (in our case, it is high density polyethylene). The lixiviate used is ultra-pure water. The amount of leachate to be added is determined so that the liquid / solid ratio (L / S in L / kg of dry matter) is 10 ($\pm 2\%$). The flask is then shaken with a rotary shaker at 10 rpm for 24 hours (± 30 min). At the end of the test, the separation of the eluate from the solid is done in 2 steps. First, the mixture is allowed to settle (for 15 minutes ± 5 min) and then the eluate is filtered through a 0.45 μm cellulose acetate membrane. A centrifugation step can be added in case of problems. For each eluate, the pH, the conductivity and the temperature are systematically measured.

Table 4. the results of leaching of sediment and sand

Parameters	Sediment	Sand	ISDI threshold	ISDND threshold
As	0,1	< 0,1	0,5	2
Ba	3	0,03	20	100
Cd	0,01	< 0,01	0,04	1
Co	-	< 0,01	-	-
Cr	0,02	< 0,01	0,5	10
Cu	0,6	< 0,02	2	50
Hg	-	< 0,05	0,01	0,2
Mo	0,1	< 0,1	0,5	10
Ni	0,1	< 0,04	0,4	10
Pb	0,1	< 0,02	0,5	10
Sb	0,11	< 0,05	0,06	0,7
Se	0,07	< 0,11	0,1	0,5
Sn	-	< 0,06	-	-
V	-	0,03	-	-
Zn	1	< 0,03	4	50
chlorides	36	< 10	800	15000
fluorides	20	< 5	10	150
sulfates	270	< 10	1000	20000
soluble fraction	2837	358	4000	60000
pH	8,09	8,98	-	> 6
Conductivity ($\mu\text{S}/\text{cm}$)	264	27,75	-	-

The results of leaching test (Table 4) show that the release in metallic trace elements is respected for all the values of the ISDI thresholds. As the quantity of fluoride released is twice

its limit value at the ISDI threshold, the sediment is considered non-inert and non-hazardous according to the decree of 12 December 2014. For standardized sand, the results of the batch leaching test (NF EN 12457-2) show that the concentrations of metallic trace elements, anion and soluble fraction are well below the ISDI thresholds (Table 4). Only barium and vanadium could be quantified and it should be noted that the released barium concentration is well below the ISDI and ISDND thresholds. Although it is standardized sand, its environmental safety has been verified.

II.3. Mortar manufacturing

The purpose of using The packing density model of a granular mixture is to combine the grains to minimize the vacuum to use as little binder as possible [43]

II.3.1. Optimisation of the Packing density of mixture

The Packing Density Model (PDM) makes it possible to forecast the real packing density of a mixture noted ϕ present with different classes from the knowledge of the energy to be used, the packing density of each component and the particle size of each component. This model is based on two physical concepts:

The virtual packing density of the mixture γ_i : it is the maximum packing density that can reach a granular stack, if all the grains were stored optimally. In reality, the experimental packing density is inferior to the virtual packing density.

Clamping index (K): is a representative quantity of clamping intensity. The index is infinite so the actual mixing packing density is equal to the virtual packing density.

Once the interactions are known, the dominant class is determined. The virtual packing density of a mixture of n classes is expressed by the formula:

$$\gamma_i = \frac{\beta_i}{1 - \sum_{j=1}^{i-1} [1 - \beta_i + b_{ij}\beta_i(1 - 1/\beta_j)]\gamma_j - \sum_{j=i+1}^n [1 - a_{ij}\beta_i/\beta_j]\gamma_j} \quad \text{Equation 1}$$

γ_i : virtual packing density when class i is dominant,

n: number of classes in the mixture,

β_i : residual packing density of class i,

β_j : residual packing density of class j,

y_j : volume proportion of class j in the mixture with:

$$y_i = \frac{v_i}{\sum_{j=1}^n v_j} \quad \text{Equation 2}$$

a_{ij} : loosening effect exerted by a grain j in a stack of coarse grains i ,

b_{ij} : wall effect exerted by a large grain i in a stack of fine grains j .

Calculations of the packing density of the sediment are made by precisely fixing the amount of water in the mixtures. Measurements were made for each formulation using a Vicat device following the standard procedure specified in the standard NF EN 196-3. Depending on the water demand, the amount of added water needs to allow a needle penetration depth of 6 mm. This amount of water allows a state of normal consistency of the dough, which corresponds to the maximum filling density of the material. The relationship between the maximum packing density and the water demand of a material is given by [44]

$$C = \frac{1000}{1000 + M_v \frac{M_e}{M_p}} \quad \text{Equation 3}$$

Where M_v is the density of the powder (kg/m^3), and M_e and M_p are the masses of water and powder respectively (kg).

Furthermore, understanding the behaviour of a mixture requires the knowledge of its packing density. Indeed, there is a direct relationship between packing density and porosity. The latter significantly affects the mechanical properties, durability, and water absorption. The relationship between the maximum packing density and the porosity of a material is given by:

$$n = 1 - C \quad \text{Equation 4}$$

Where n is the porosity and C is the packing density of the mix.

Measurement of the packing density of sand is made with the shaking table, the test consists of placing a sample of sand in a mould under the constraint of a piston, and to apply to all the mechanical shake causing rearrangement of the grains, and thus compaction of the sample, the measurement is then that of the apparent density of the sample, which makes it possible to calculate the packing density. The packing density is calculated according to the following formula [45]

$$C = \rho_a / \rho_{rd} \quad \text{Equation 5}$$

With

ρ_{rd} (g/cm³) = real density in the sense of the standard NF EN 1097-6

ρ_a (g/cm³) = Apparent density of the material.

Fig 3 shows the variation of the packing density of the mixtures as a function of the percentage of the sediment. It is found that the optimal packing density is 0.7885 with percentage of the mixture is between 10-30% of the sediment and 90-70% of the sand. From this curve (Fig. 3) two selected mixtures; the first mixture PMxSed30 constitutes 30% sediment and 70% sand; and second mixture constitutes 50% sand and 50% sediment; for both mixtures the amount of the binder is varied between 12% and 25%. It is found that for the mixture of PMxSed30 the porosity is 21.95% and for the mixture PMxSed50 is 25.57%. Table 5 shows PMxSed30 and PMxSed50 formulations tested.

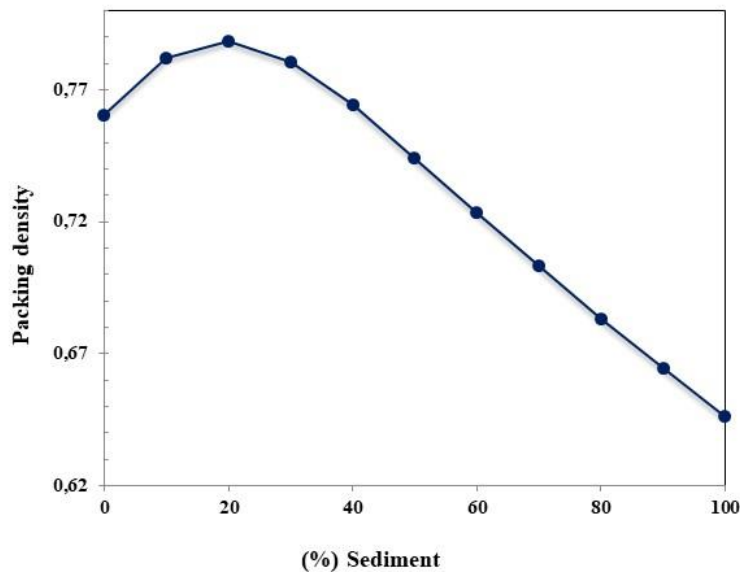


Figure 23. Evolution of the packing density of the mixtures

The constituents are stored under favorable conditions according to the manufacturer's instructions or the rules of art; the sand is dried at 105 °C for 24 hours and the sediment at 60 °C for more than 72 hours to reduce the moisture content. After drying the sediment, it is necessary to crush it and sift it in 2 mm. the resin must be stored in a temperature-controlled room. The base product is mixed with the hardener in a plastic bucket for 3 minutes until a uniform mixture is obtained. In another bucket, the charges are mixed (sand and sediment).

Invert the binder into a second container and knead again for 6 minutes at this point. We add the fillers in the binder in 2 parts. The molds are filled in two layers; each layer is compacted using the impact table (60 shots). The polymer concrete samples were demolded after 24 h and cured in air at 25 ° C and 48% RH.

Table 5. Polymer mortar formulations

Formulation	Epoxy resin (kg)	Sand (kg)	Sediment (kg)	Resin content in the mix. (%)
PM12	0.42	3.5	0	12
PM14	0.49	3.5	0	14
PM16	0.561	3.5	0	16
PM18	0.63	3.5	0	18
PM20	0.7	3.5	0	20
PM25	0.875	3.5	0	25
PM12Sed30	0.42	2.45	1.05	12
PM14Sed30	0.49	2.45	1.05	14
PM16Sed30	0.561	2.45	1.05	16
PM18Sed30	0.63	2.45	1.05	18
PM20Sed30	0.7	2.45	1.05	20
PM25Sed30	0.875	2.45	1.05	25
PM12Sed50	0.42	1.75	1.75	12
PM14Sed50	0.49	1.75	1.75	14
PM16Sed50	0.561	1.75	1.75	16
PM18Sed50	0.63	1.75	1.75	18
PM20Sed50	0.7	1.75	1.75	20
PM25Sed50	0.875	1.75	1.75	25

PMx: Polymer mortar with x the polymer content in (%) given by the total weight of the loads

PMxSedy: Polymer mortar with:

- X the polymer content in (%) given by the total weight of the loads.
- Y the sediment content in (%) given by the total weight of the loads.

II.4. Experimental tests

II.4.1. the apparent density

It is defined as the density of one cubic meter of the material comprising the voids of the particles as well as those between particles. The apparent density of a granular material depends on its degree of compaction. It is expressed by the following relation $\rho = M_s/V_t$ where V_t is the total volume and M_s its mass after a passage in the oven at 40° C until obtaining a constant mass.

II.4.2. Mechanical tests

To evaluate the strength of the polymer mortar, unconfined compression (UCS) and three-point bending tests were performed on 40 x 40 x 160 mm samples, according to the requirements of standard NF EN 196-1. Polymer mortar were conserved at a temperature of 20°C ± 2 °C and relative humidity maintained at 50% at least. The compression tests were carried out with a load increase of 2400 N/s ± 200 N/s. The three-point bending tests were performed with a speed loading of 50 N/s ± 10 N /s. Otherwise the dynamic modulus of elasticity has also been measured by Grindo-sonic frequency analyzer on 40 x 40 x 160 mm specimens.

II.4.3. Porosity

Porosity by mercury intrusion was measured using mercury porosimetry. This technique provides rapid access to pore distribution with good accuracy in the range of 3 nm to 360 µm and the mercury pressure range is 30000 psi (206 MPa).

II.5.4. The absorption of water

The absorption of water is followed over time by simple gravimetric measurement. The formula for calculating the mass gain is:

$$\text{gain mass (\%)} = \frac{M(t) - M(0)}{M(0)} * 100$$

Where $M(t)$ is the mass of the MBR after immersion for a time "t" and $M(0)$ the initial mass of the specimen in the dry state.

II.5.5. Linear thermal expansion

The experimental tests were carried out in accordance with standard NF EN ISO 10545-8 on three test pieces of each formulation. The samples were dried at a constant temperature ($110 \pm 5^\circ \text{C}$) to constant mass and then introduced into a desiccator to cool to room temperature.

II.5.6. The thermal shock resistance test

Was carried out on three samples ($80 \text{ mm} * 40 \text{ mm} * 40 \text{ mm}$) of each formulation. The specimen subjected to 10 cycles during which the temperature varies between 15°C and 145°C . according to EN ISO 10545-9. The visible defects on the specimens were identified by examining them with the naked eye.

II.5.7. The chemical resistance

Test was carried out in accordance with EN 10545-13. The following solutions were used:

- 3% hydrochloric acid solution (volumetric percentage).
- 18% hydrochloric acid solution (volumetric percentage).
- Potassium hydroxide (KOH) solution, 30 g / l.
- Potassium hydroxide (KOH) solution, 100 g / l.

The test pieces were immersed in the citric acid solution and kept in the laboratory for 24 hours according to the standard. For the hydrochloric acid and potassium hydroxide resistance test, the specimens were immersed for 96 hours.

III. Results and discussion

III.1. The apparent density

The figure (4 a) shows the evolution of the density for 7 days, 14 days and 28 days; we note that the density of polymer mortar of different mass fractions is between $1689.23 \text{ kg} / \text{m}^3$ and $1891.12 \text{ kg} / \text{m}^3$. Polymer mortars PM_x for x equals 12, 14, 16, 18, 20 and 25 are increased by 1.28%, 2.38%, and 3.68%, 1.01%, 2.33% and 0.63% respectively. It is noted that the density of the polymer mortar from 14% of the mass fraction of the binder decreases when the mass fraction of the binder increases.

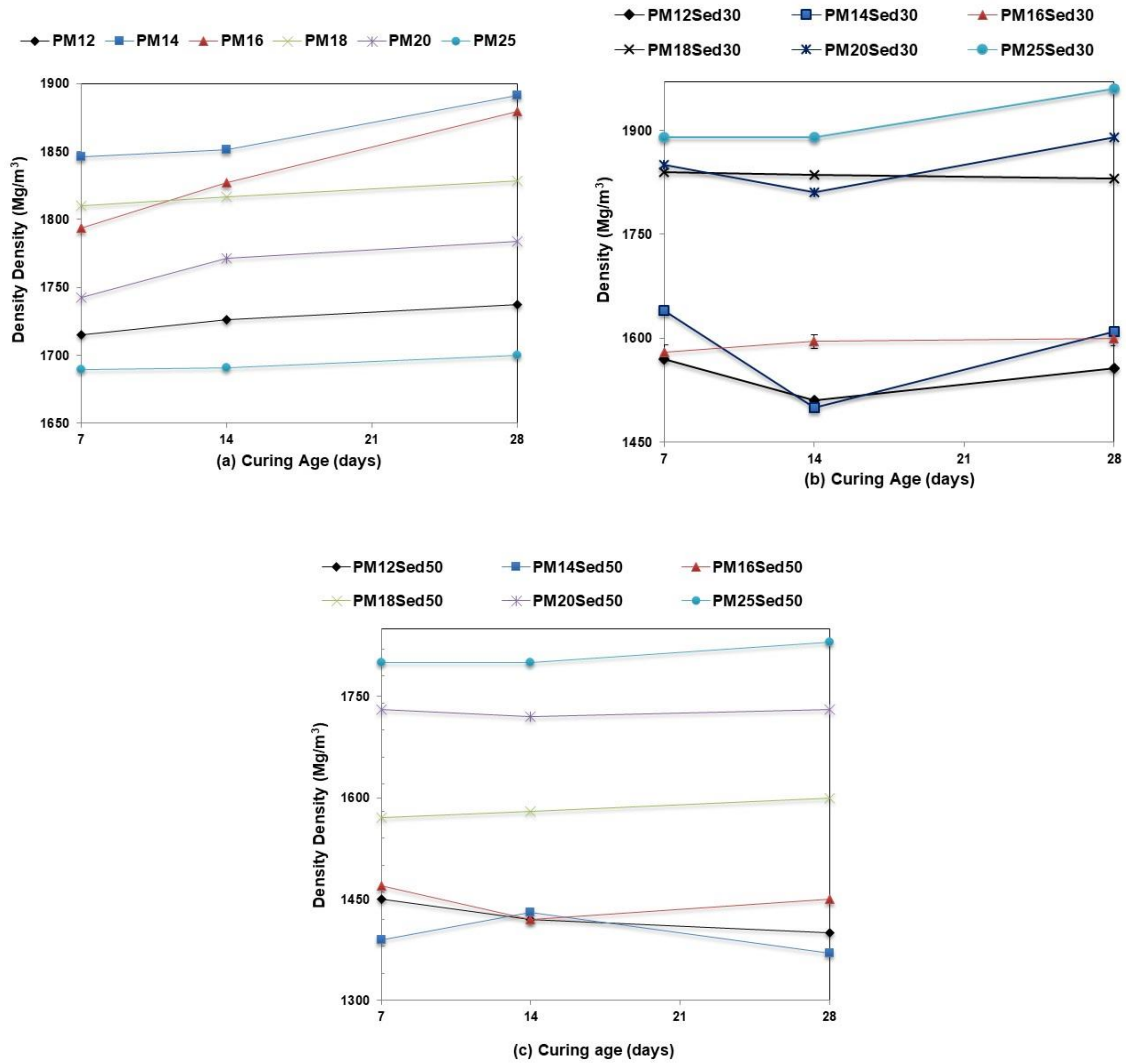


Figure 24. (a) and (b) and (c) show the evolution of the density of PMx and PMxSed30, PMxSed50 respectively, as a function of curing age.

The phenomenon of increase in the density observed during the curing time for the polymer mortar (PMx) is attributed to the increase of the crosslinking density of the epoxy polymer binder, these already this phenomenon obtained in a study on the micro epoxy concrete polymer [46]. The density is related to the amount of resin, when the mass fraction of the resin is increased implies a decrease in the amount of granule causing a decrease in the density of the mixture.

The graph (4-b) shows the change in density for polymer mortars PMxSed30 for 7 days, 14 days, and 28 days. the density of the formulation PMxSed30 is range between 1700 and 1891.12 kg/m³. It is noted that the density decreases in day 14 except for the PM16Sed30 and PM20Sed30 formulations, after the 14th day the increased density, the density of polymer

mortars PMxSed30 for x equals 12, 14, 18 and 25% decreased by 3.97%, 9.33%, 0.27%, 4.28%, respectively. It is observed that the density of the polymer mortar (PMxSed30) at 28 days increases when the mass fraction of the binder increases and the quantity of aggregates decreases.

The figure (4-c) shows the evolution of the density of polymer mortars PMxSed50 for 7 days, 14 days and 28 days. It is observed that the density for the formulations PM12Sed50 and PM14Sed50 is decreased to 1.45% and 3.57 respectively; for PMxSed50 for x equal 18 and 25 increased by 1.87 and 1.63 respectively. It is observed that the density of the polymer mortar (PMxSed50) at 28 days bound to the mass fraction of the binder

Figure 5 shows the density of polymer mortars at 28 days. We note that the density of the PMx polymer mortar for the mass fraction is 12, 14 and 16 % are higher than that of the polymer mortar PMxSed30 and PMxSed50. the mass fractions of the binder equals 18% and it is observed that the density of the PMx polymer mortar is low compared to PMxSed30. At 25% of the mass fraction of the binder the density of the PMx polymer mortar is small compared to PMxsed30 and PMxSed50 polymer mortar. It is observed that the density is related to the amount of binder and sediment. From the 16% of the mass fraction of the binder, the density of the polymer mortar PMx decreases, unlike the polymer mortars based on the sediment.

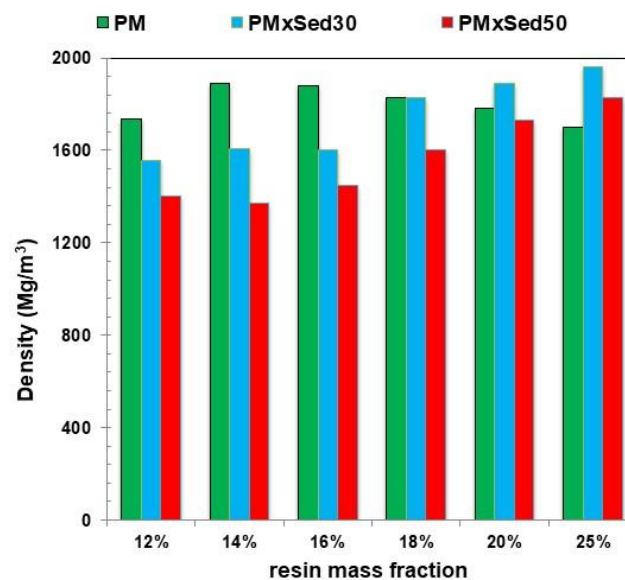


Figure 25. Comparison between different densities of mix at 28 days

A study [47], they optimized the sand with cork granules in an epoxy matrix, they showed that the density increases when the mass fraction of the epoxy binder and the quantity of the cork granules increases. In another study[41] Incorporation of marble powder increased the density of polymer concrete but at some mass fractions of the binder the density decreased. In a study[39]; they replaced different percentages of the weight (up to 20%) of the sand by non-biodegradable plastic aggregates consisting of polyethylene terephthalate (PET) waste from beverage containers, they have shown that the addition of PET waste contributes to reducing the density of the epoxy or unsaturated matrix polymer mortar. a study[33] of the polymer mortar loaded with standardized sand and epoxy resin; they observed that the density of the polymer mortar increases from 8% of the mass fraction up to 10% of the mass fraction, from the 12% of the mass fraction the density decreases when the mass fraction increases.

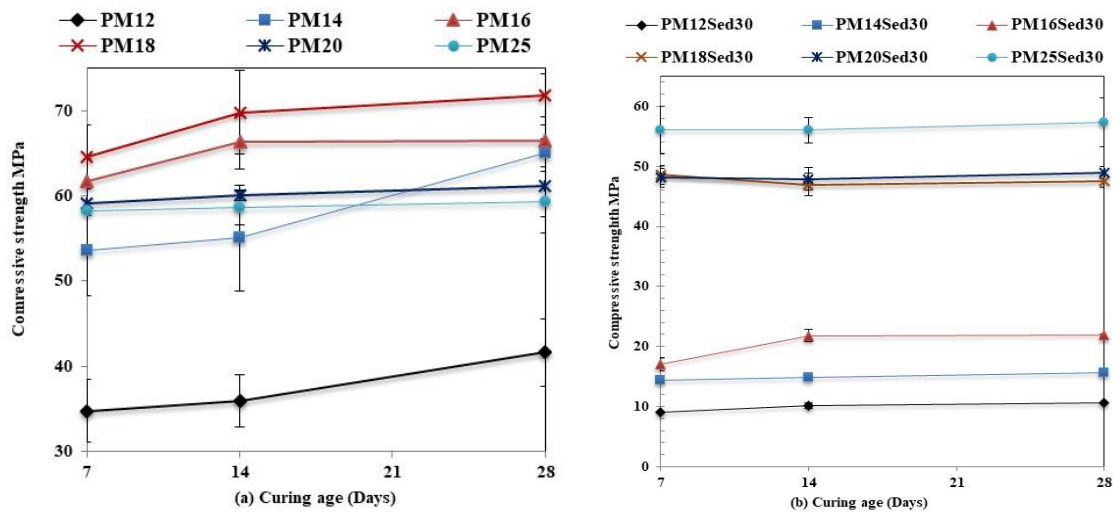
III.2. Compressive test

Figure (Fig 6-a) shows the evolution of the compressive strength of the PMx formulation for 7 days, 14 days and 28 days; note that the compressive strength increases for all mass fractions of resin as a function of time. For the percentage of the mass fraction of the binder 12, 14, 16, 18, 20 and 25 are increased by 16.43%; 17.59%; 7.07%; 10.09%; 3.34%; 1.8% respectively. It is observed that between 7 days and 28 days will not have much difference in compressive strength; a study[48] on the relationship between hardening conditions and the compressive strength of polyester resin concrete to show that the compressive strength of the polymer concrete becomes almost constant after dry curing for 7 days. several studies [49][50]of curing time of polymer mortar have shown that it reaches three-thirds of its compressive strength after curing for one day at room temperature. It is observed that the compressive strength increases when the content of the binder increases, starting from the mass fraction 20% the compressive strength decreases when the content of the binder increases, this phenomenon can be explained by the fact that many areas rich in resin deteriorate the mechanical properties of the mortar PMx

The figure (Fig 6 b) shows the evolution of the compressive strength of the PMxSed30 formulation for different percentages of mass fraction for 7 days, 14 days and 28 days. It is noted that compressive strength increases over time for all PMxSed30 formulations except for the PM18Sed30 formulation decreased by 2.29%. There is an increase of 13.71; 7.83; 21.82; 1.65; 2.26 for the formulations PM12Sed30, PM14Sed30, PM16Sed30, PM20Sed30 and

PM25Sed30 respectively. Note that the compressive strength of the polymer mortar PMxSed30 increases as the amount of resin content increases. It is observed that the compressive strength is almost stable for 28 days; Note that the compressive strength between the mortar PM16Sed30 and PM18Sed30 increases by 118%. This can be mainly due to the reduction of the internal porosity of the mortars. In fact, it is noted that the porosity decreases from 15% to about 5% between the mortars PM30 and PM 30 18, respectively.

The figure (6-c) shows the evolution of the compressive strength for 7 days, 14 days and 28 days of PMxSed50 formulations with different mass fractions. The formulation PM12Sed50; PM14Sed50; PM16Sed50; PM18Sed50 and PM20Sed50 decreased by 8.80%; 2.68%; 9.7%; 13.15%; 0.82% respectively. PM25Sed50 formulation increased by 6.84%. We notice that the quantity of the sediment influences the period of the cure. It is observed that the compressive strength of the polymer mortar is related to the mass fraction of the binder, when the content of the binder increases the resistance increases.



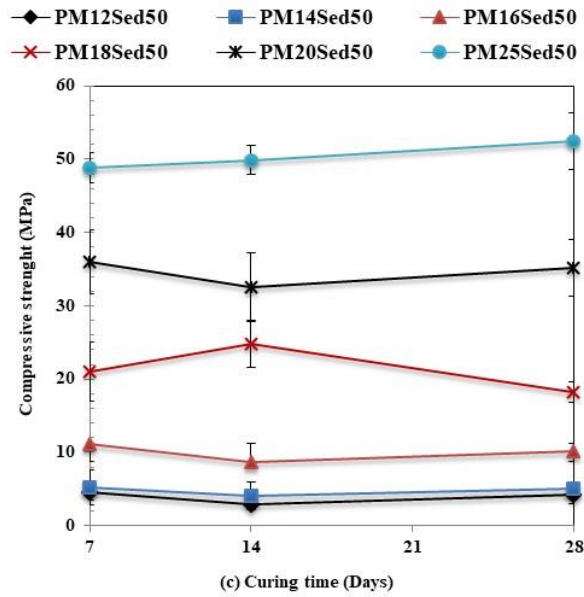


Figure 26. (a) and (b), (c) show the evolution of the compressive strength of PMx and PMxSed30, PMxSed50 respectively, versus curing age

The figure 7 shows the compressive strength of the mortars PMx; PMxSed30 and PMxSed50 in 28 days, we take note that:

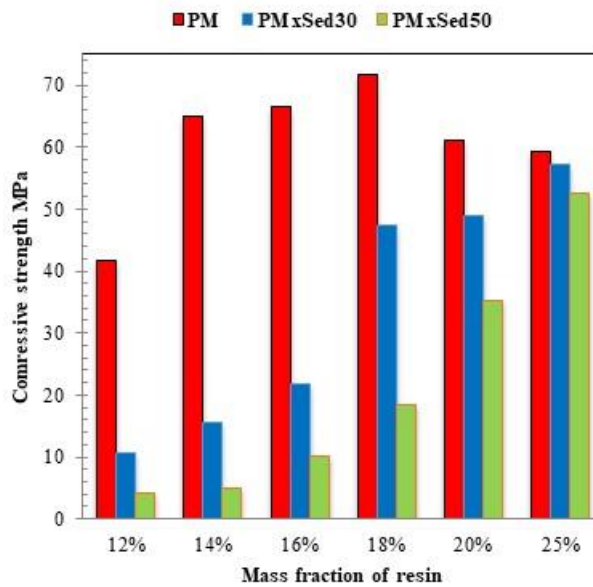


Figure 27. Compressive strength of PMx, PMxSed30 and PMxSed50 versus mass fraction

- The compression strength of masse fractions equal to 12; 14; 16; 18; 20 and 25 of the PMxSed30 formulation is small compared to the mortar PMx of the same mass fraction with a percentage difference of 74.59, 75.89, 67.11, 33.86, 20.14 and 3.32 respectively.

- The compression strength of masse fractions equal to 12; 14; 16; 18; 20 and 25 of the PMxSed50 formulation is small compared to the mortar PMx of the same mass fraction with a percentage difference of 89.9, 92.2, 84.65, 74.53, 42.51 and 11.51 respectively.
- The compression strength of masse fractions equal to 12; 14; 16; 18; 20 and 25 of the PMxSed50 formulation is small compared to the mortar PMxSed30 of the same mass fraction with a percentage difference of 52.03, 67.68, 53.33, 61.49, 28.02 and 8.47 respectively.

These differences can be expressed by several factors:

The increase in the compressive strength is related to the quantity of the resin. Compressive strength increases with increasing polymer content for all mortars with sediment except mortar (PM) with sand. The compressive strength of the mortar (PM) after reaching the peak (mass fraction equal to 18%) decreases with an increase in the amount of resin; this increase in compressive strength can be explained by the lack of the amount of binder required to coat the aggregates and fill the voids between the aggregates. The increase in the binder content allows a better coating of the aggregates and leads to completely filling the gaps between the aggregates; several researches in the literature [51,36,52] confirm these results

It is observed that the compressive strength decreases when the amount of the sediment increases, the amount of fines affects the mechanical properties from the amount added to the matrix; what is confirmed in the literature [53]. Another explanation for this decrease by sediment characterization; sediments have a high capacity to absorb water; during the mixing of the aggregates with the resin, the sediment is not saturated which brings back the sediment absorbed a quantity of the resin

Several studies have shown the influence of granulometry on the properties of the polymer mortar also as reported in the literature [54]. The granular mixture in the mortar affects the compressive strength; the granular mixture must be mixed in a manner and a minimum void content and maximum bulk density [55]. The smaller particles have a larger area, therefore the specific area of the sediment is larger compared to the sand implies a higher dosage of resin; in the literature [56,57,58] has shown the effect of the specific surface area on the amount of resin and on the compressive strength. This difference in compressive strength between mortars can be explained by the difference in the type of aggregates; Fu et al. [53]

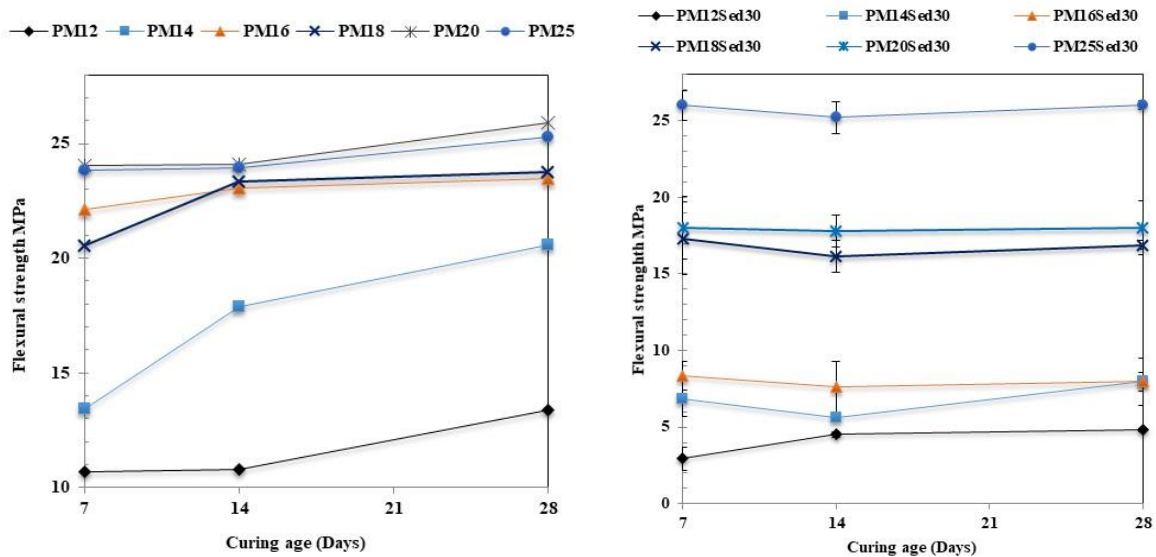
has shown that the type of aggregates affect compressive strength. The bond between the charge and the matrix and the amount of charges in the matrix are two important factors that also affect the mechanical properties [53]. For well-matrix-bound fillers, the stress applied to the mortar can be efficiently transferred to the particles from to the matrix. The compression strength of the mortars PMx and PMxSed30, PMxSed50 can be related to the mass percentage of the resin by a linear relationship of positive slope with a correlation of 0.17 and 0.93, 0.89 respectively.

III.3. Flexural strength

The figure (8 a) shows the flexural strength of the mortar PMx formulation of different mass fractions for 7 days, 14 days and 28 days. it is observed that the resistance increases with time for all the mass fractions; a percentage increase in flexural strength of 19.83, 34.72, 5.78, 13.58, 7.1 and 5.69 is found for the formulation PM12, PM14, PM16, MP18, PM20 and PM25 respectively. It should be noted that flexural strength increases with the increasing resin content. By 25% of the mass fraction of the resin, the flexural strength decreased slightly. The flexural strength of the PMx mortar increased by 54.11% as the mass fraction of the binder increased from 12% to 14%. From the mass fraction, 14% the flexural strength between 20.59 MPa and 25.89 MPa

Figure (8 b) shows the evolution of the flexural strength for the PMxSed30 formulation for different mass fractions for 7 days, 14 days and 28 days. It is noted that the flexural strength decreases between the seventh day and the fourteenth day for all formulations, with the exception of the formulation of the mass fraction equal to 12%. For PM14 Sed30, PM16 Sed30, PM18 Sed30, PM20 Sed30, PM25 Sed30, flexural strength decreased between the seventh day and fourteenth day to 22.36%, 9.71%, 7.18%, 1.29% and 3.09% respectively, for PM12 Sed30 formulation. Flexural strength increases by 34.73%. between days 14 and 28, flexural strength increases for all PMxSed formulations30, with an increase of 28.54, 29.77, 4.27, 4.38, 1.33, 3.15 percent for formulations or the mass fraction of 12%, 14%, 16%, 18%, 20% and 25% respectively. At 28 days, the flexural strength of 4.8 MPa to 7.96 MPa was observed for the PM12Sed30, PM14Sed30 and PM16Sed30 mortars; for mortars PM18Sed30 and PM20Sed30, the flexural strength is between 16.89 MPa and 18.03 MPa; for mortar PM25Sed30 is 26.03 MPa.

The figure (8 c) shows the evolution of the flexural strength of PMxSed50 formulation for different mass fractions. It is noted that for all formulations the resistance decreases between 7 days and 14 days. After 14 days the resistance increases. for the formulation PM12Sed50; PM14Sed50; PM16Sed50; PM18Sed50; PM2 Sed50 and PM25Sed50 a decrease in flexural strength of 35.16%; 37.20%; 19.87%; 6.31%; 7.71% and 0.76% respectively between seventh and fourteenth days. an increase in flexural strength of 44.91%; 44.57%; 16.54%; 7.22%; 8.44% and 3.45% for the PM12Sed50 formulation; PM14Sed50; PM16Sed50; PM18Sed50; PM20Sed50 and PM25Sed50 respectively between fourteenth and twenty-eighth day. At 28 days, the flexural strength of PM12Sed50 mortar; PM14Sed50; PM16Sed50; PM18Sed50; PM20Sed50 and PM25Sed50 equals 1.71 MPa, 4.65 MPa, 4.93 MPa, 8.91 MPa, 11.94 MPa and 20.05 MPa respectively. It is observed that for all formulations (PMx, PMxSed30 and PMxSed50) the flexural strength is related to the resin content



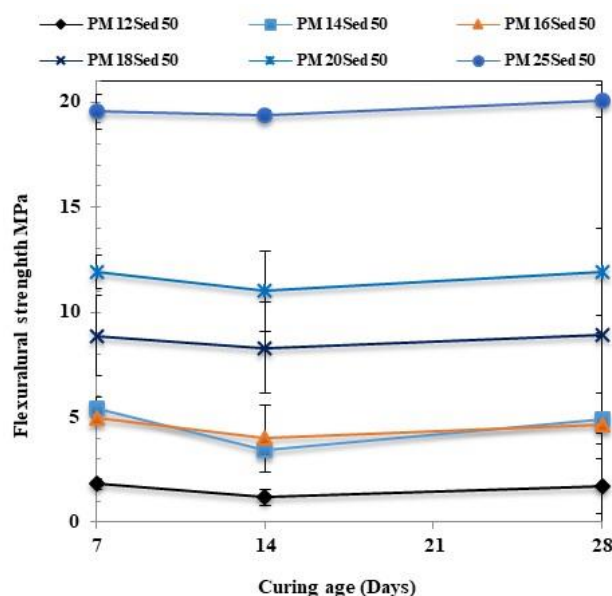


Figure 28. (a) and (b), (c) show the evolution of the flexural strength of PMx and PMxSed30, PMxSed50 respectively, versus curing age

Figure 9 shows the flexural strength of the formulations: PMx; PMxSed30 and PMxSed50 in twenty-eight days. it is found that the flexural strength of PMx is greater than that of PMxSed30 and PMxSed50 formulations for a mass fraction equal to: 12; 14; 16; 18 and 20%.

It is noted that:

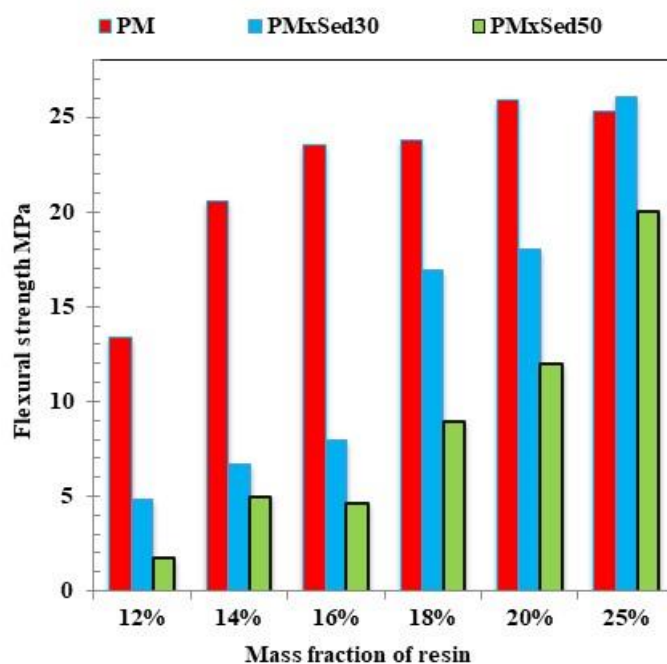


Figure 29. Flexural strength of PMx, PMxSed30 and PMxSed50 versus mass fraction of resin

- The flexural strength of mass fraction equal to 12; 14; 16; 18; 20 and 25% of the PMxSed30 formulation decreased by 64.07; 67.45; 66.12; 28.97 and 30.35% compared to the PMx formulation respectively.
- The flexural strength of mass fraction equal to 12; 14; 16; 18; 20 and 25% of the PMxSed50 formulation decreased by 87.20; 76.05; 62.53; 28.97, 53.88 and 20.75% compared to the PMx formulation respectively.
- The flexural strength of the mass fraction equal to 12; 14; 16; 18; 20% and 25 of the PMxSed50 formulation decreases by 53.88; 26.41; 41.58; 47.24; 33.77 and 22.97% compared to the PMxSed30 formulation respectively.

Several factors affect flexural strength, such as the amount of resin, the nature and amount of the filler and the particle size of the filler. In a research article [58], they arrived at the same results. The flexural strength of the polymer mortars PMx and PMxSed30, PMxSed50 can be related to the mass percentage of the resin by a linear relationship of positive slope with a correlation of 0.76 and 0.92, 0.92 respectively.

III.4. Modules of elasticity

The figure 10 shows the modulus of elasticity of the mortars PMx, PMxSed30 and PMxSed50 as a function of the mass fractions. The modulus of elasticity of the PMx mortar decreased by 10.05% for mass fraction between the ranges of 16% to 25% there is an increase of 29.49% for mass fraction between 12% and 18%.

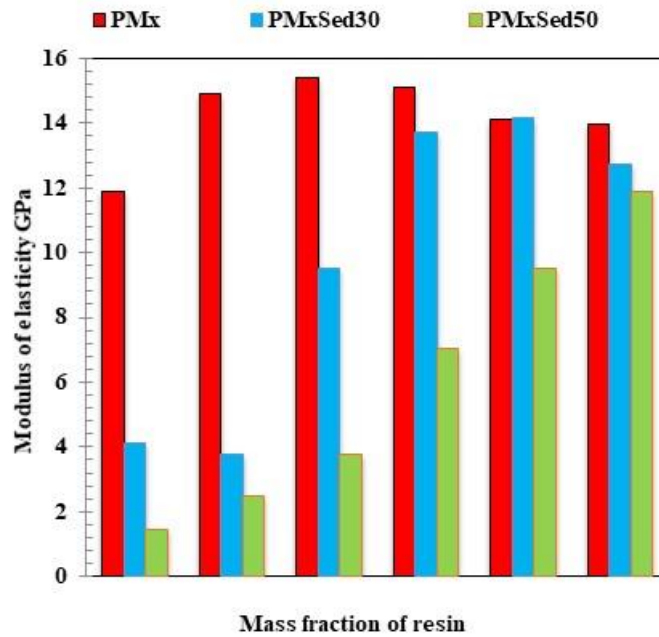


Figure 30. Modulus of elasticity of PMx, PMxSed30 and PMxSed50 versus mass fraction of resin

The modulus of elasticity of the PMxSed30 polymer mortar decreased by 7.89% for an increase in mass fractions of 12 to 14%, a decrease of 9.89% for a mass fraction between 20% and 25% of the resin; there is an increase of the modulus of elasticity of 150, 44.21 and 3.28% when the mass fraction between 14-16; 16-18 and 18-20% respectively. It is observed that the modulus of elasticity of the PMxSed50 formulation is increased from 1.45 GPa to 11.9 GPa when the mass fraction increases from 12% to 25%.

Comparing the elasticity modulus of the PMx mortar and PMxSed30, we find that the modulus of elasticity of the PMx mortar is superior with a percentage difference of 65.54; 74.47; 38.35; 9.39 and 8.66 for the equal weight fraction 12; 14; 16; 18 and 25 respectively. For the equal mass fraction 20, the modulus of elasticity of the mortar PMxSed30 slightly exceeds the modulus of elasticity of the PMx mortar.

The modulus of elasticity of the mortar PMx is greater than the modulus of elasticity of the mortar PMxSed50, the percentages of difference is equal to 87.81; 83.21; 75.66; 53.37; 32.67 and 14.75 for the equal weight fraction 12; 14; 16; 18; 20 and 25 respectively. The modulus of elasticity of the PMxSed50 mortar increases from 1.45 GPa to 11.9 GPa between the mass fraction of 12% to 25%. The modulus of elasticity of the mortar polymer PMxSed30 is higher than that of the modulus of elasticity of the mortar PMxSed50, the difference percentages is

64.63; 34.21; 60.52; 48.54; 32.86 and 6.66 for the equal weight fraction 12; 14; 16; 18; 20 and 25% respectively.

It is observed that the modulus of elasticity is related to the mass fraction of the resin, the modulus of elasticity can be related to the mass fraction of the binder with a linear function of the positive slope with a strong correlation of 0.79 and 0.97 for PMxSed30 and PMxSed50 formulations respectively. For the PMx formulation have a low correlation of 0.10. It is concluded that the modulus of elasticity of the polymer mortar PMxSed30 and PMxSed50 increases when the quantity of the resin increases unlike the mortar PM it reaches the optimum value (the mass fraction equal to 16%). the amount of sediment increases the modulus of elasticity decreases; This phenomenon can be explained by the particle size of the sediment that affects the charge distribution in the matrix. the nature of the sediment being different from that of sand, this difference influences the modulus of elasticity, which confirms in the literature[59,60]. The interfacial load / matrix has an important role on the modulus of elasticity[61], the bond of the sand with the resin is different from the bonding of the sediment with the resin the adhesion force corresponds to the chemical reactions between the load and the resin which this reaction depends on the elements that make up the load.

III.5. Porosity

The figure (11 a) shows the porosity of the mortar PMx, PMxSed30 and PMxSed50 as a function of the mass fraction. the value of the porosity of epoxy resin without charge is equal to 3.95% this porosity can be related to the binder preparation, during the mixing air balls were observed where it can be related to the pressure exerted by the mercury porosimetry on the composite.

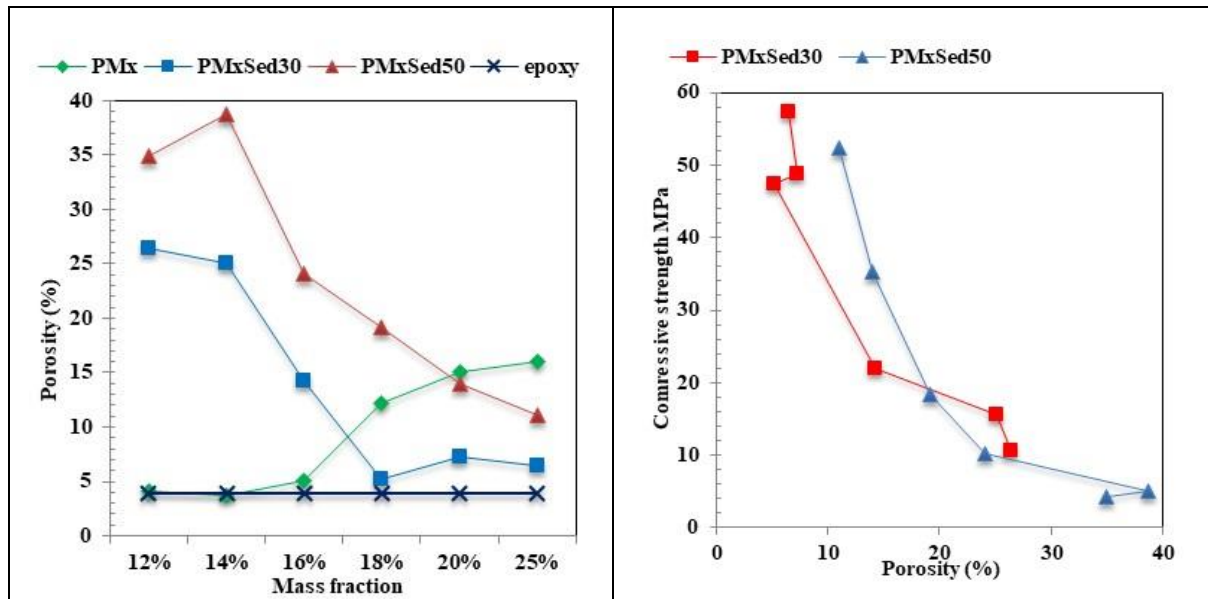


Figure 31. (a) Evolution of the porosity of the mortar PMx, PMxSed30 and PMxSed50 versus mass fraction ; (b) the compressive strength as a function of the porosity

Note that the porosity of the PMx mortar decreases when the mass fraction of the resin increases from 12% to 14%, the porosity increases by 68.43% when the mass fraction increases from 14% to 25%, the same phenomenon observed in the study [33], This phenomenon can be explained by the study of [62], the fact that the apparent absorption of mercury by the polymer mortar fills the void in the material produced by the collapse or compression of the material and that the material has a restitution or elasticity and resumes its original shape or volume. But it is observed that 100% of the resin content that the porosity lower than the porosity of the polymer mortar, can explain this difference by the fact that the mercury pressure applied to the charges leads to applying a force on the matrix; implies that this force on the charge opens the pores.

The PMxSed30 mortar porosity value decreased by 80.38% in the mass fraction ranging from 12% to 18%, the porosity value curve increases in the mass fraction range from 18% to 25%; % with an increase of 25.67%. It is noted that the value of the porosity of the mortar PMxSed50 is increased by 10.6% between the mass fraction of 12% to 14%, after the mass fraction of 14%, the curve of the porosity decreases with a percentage of 71, 43. The porosity of the PMxSed30 and PMxSed50 mortars related to the mass fraction by a linear relationship of negative slope with a correlation is equal to 0.82 and 0.89 respectively. With regard to the

PMx mortar, the porosity can be related to the mass fraction by a linear relationship of positive slope with a correlation equal to 0.88.

The value of the porosity of the mortar PMx is large compared to the value of the porosity of binder; it is observed that the percentage difference in value of the porosity between the mortar PMx and the binder increases with the increase of the mass fraction. Contrary for the mortar PMxSed30 and PMxSed50 the value of the porosity becomes close to the value of the porosity of binder with the increase of the mass fraction.

It is noted that over the mass fraction range of 12% to 25% the value of the porosity of the mortar PMxSed50 is greater compared to the mortar PMxSed30; the percentage difference in the value of the porosity between the mortar PMxSed30 and PMxSed50 is between 32 % and 92 %. This difference can be explained by the amount of sediment increases implies that the adhesion force between the load and the matrix is low; this weakness leads to empty spaces, The sediment characterizations have a role on the porosity; the percentage of water absorption of the sediment is important which leads to the absorption of the resin by the sediment until saturation.

The figure (11 b) shows the curve of the compressive strength as a function of the porosity. Note that the compressive strength of the mortar PMxSed30 and PMxSed50 decreases when the porosity increases which is equivalent to a decrease in the mass fraction of the binder. But the compressive strength of the mortar PMx is not related to the porosity so that a weak correlation of 0.07. The compressive strength of the mortar PMxSed30 and PMxSed50 can be related to the porosity by a linear relationship of negative slope with a correlation of 0.88 and 0.79 respectively.

III.6. Water absorption

Figure (12 a) illustrates the evolution of water absorption of the PMx mortar with different mass fractions of the binder as a function of time. It should be noted that PMx water absorption decreases as the mass fraction of the binder decreases. It should be noted that the PMx mortars are saturated from 4 hours except the PM12 mortar.

Figure (12 b) illustrates the evolution of the water absorption of the PMxSed30 mortar with different mass fractions as a function of time. It should be noted that the water absorption of PMxSed30 decreases as the mass fraction of the binder decreases. Mortars PM12Sed30,

PM14Sed30 and PM16Sed30 saturate after 12 hours, unlike mortars PM18Sed30, PM20Sed30 and PM25Sed30.

The figure (12 c) illustrates the evolution of the water absorption of the mortar PMxSed50 with different mass fractions as a function of time. It noted that the water absorption of PMxSed30 decreases as the mass fraction of the binder decreases. PM12Sed50, PM14Sed50 and PM16Sed50 mortars saturate them from 12 hours unlike PM18Sed50, PM20Sed50 and PM25Sed50 mortars

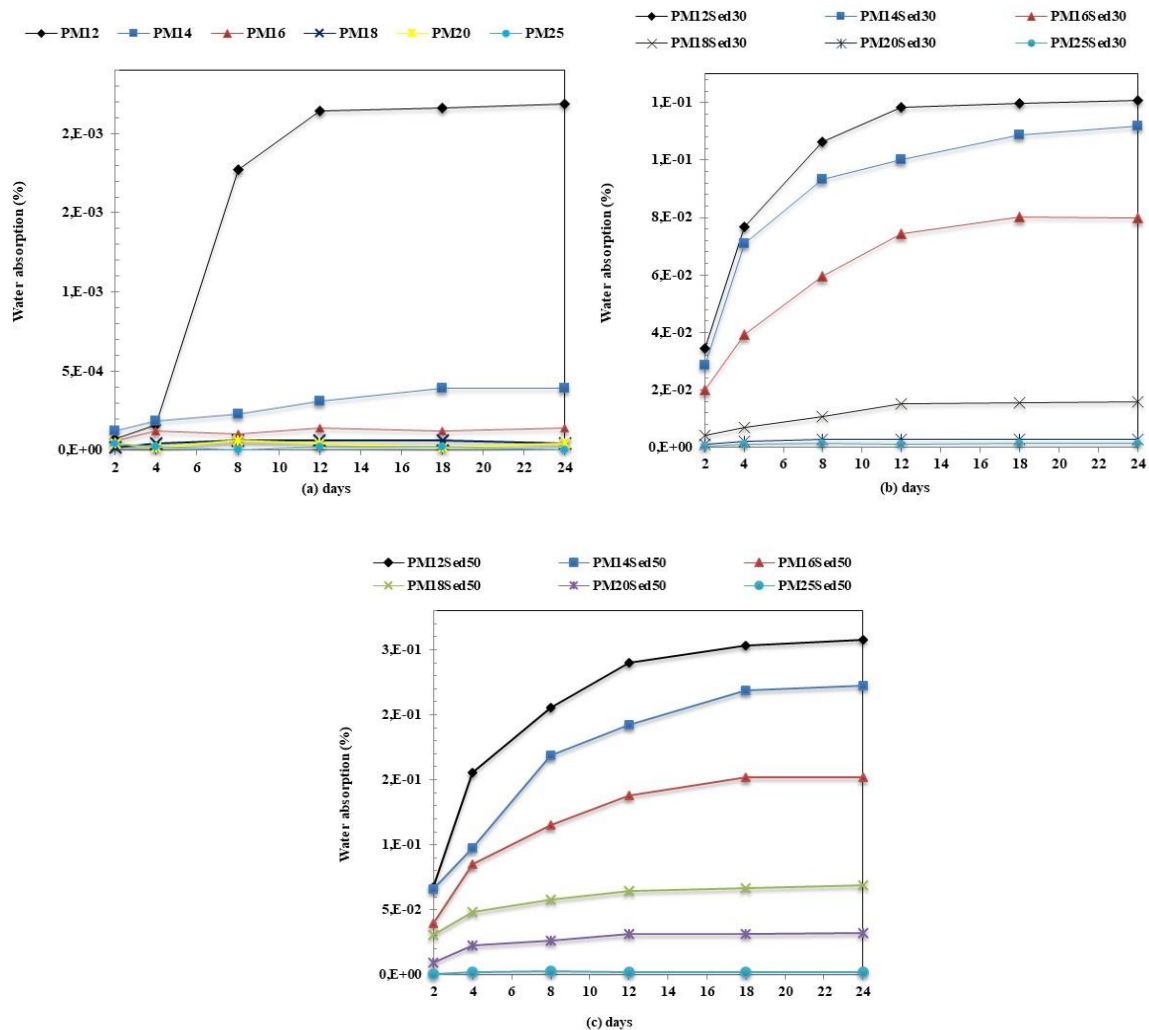


Figure 32. (a), (b) and (c) the water absorption of the PMx and PMxSed30, PMxSed50 mortar respectively as a function of curing time

water absorption increases as the percentage of sediment increases and the mass fraction of the binder decreases; in the literature [63] they confirmed the relationship between resin quantity and water absorption. The resin covering the charges prevents the penetration of

water; when the amount of resin is insufficient to cover the entire charge the water penetrates remains stuck in the mortar where the charges of the unsaturated sediment absorb it;

III.7. Linear thermal expansion

The figure 13 shows the evolution of the coefficient thermal expansion of the PMx, PMxSed30 and PMxSed50 mortars as a function of the mass fractions, we observe that:

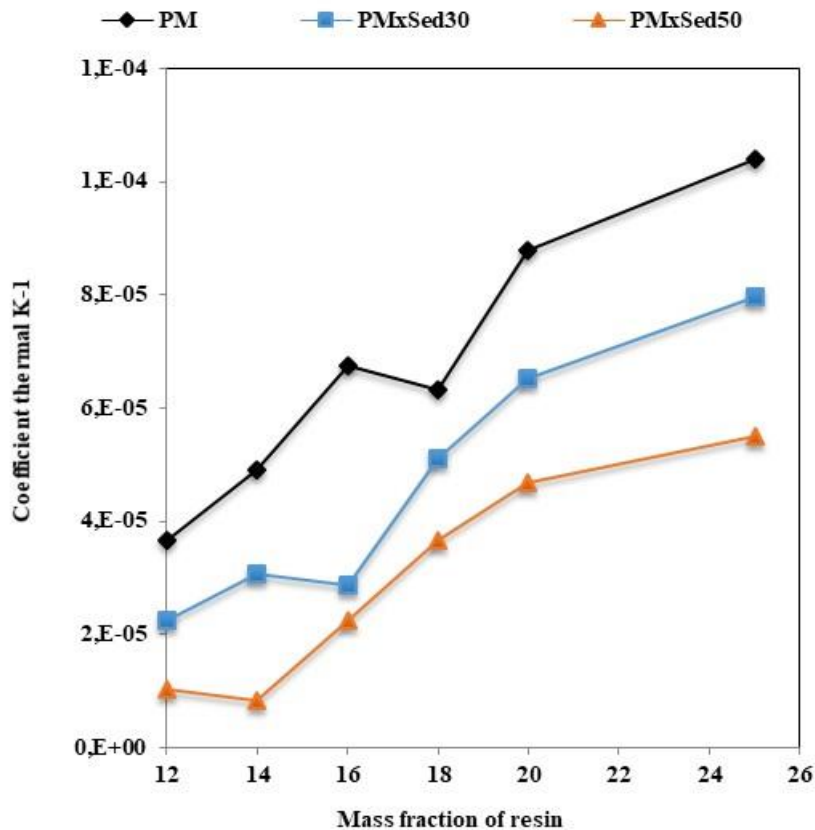


Figure 33. Evolution of the coefficient of thermal expansion of the PMx, PMxSed30 and PMxSed50

- The graph of the thermal expansion of the PMx mortar is an increasing curve, the thermal expansion increases as the mass fraction increases. The value of the thermal expansion is increased by a percentage of 33.33%; 37.49%; 38.7%; 18.6%; between the mass fraction of 12% to 14%; 14% to 16%; 18% to 20% and 20% to 25% respectively and a slight decrease of 6.06% between the mass fraction of 16% to 18%. The thermal expansion curve of the PMx mortar can be connected to the mass fraction by a linear relationship of positive slope with a correlation of 0.94.
- The thermal expansion curve of the PMxSed30 mortar is an increasing curve as a function of the mass fractions. It is observed that between the intervals of the mass

fraction comprised between 12% to 14%; 16% to 18%; 18% to 20% and 20% to 25%, the value of thermal expansion increases by a percentage of 36.36; 78.57; 27.99 and 21.87 respectively. For the interval between 14% and 16%, the value of the thermal expansion reduces by 6.66%. The thermal expansion curve of the PMxSed30 mortar can be related to the mass fraction by a linear relationship of positive slope with a correlation of 0.93

- The thermal expansion curve of the mortar PMxSed50 is increasing as a function of the mass fraction of the binder, it is found that the value of the thermal expansion increases by a percentage of 175; 63.63; 27.77 and 17.39% between the mass fractions of 14% to 16%; 16% to 18%; 18% to 20% and 20% to 25% respectively. Between the mass fractions of 12% to 14% decreases by 20%. The thermal expansion curve of the PMxSed50 mortar can be connected to the mass fraction by a linear relationship of positive slope with a correlation of 0.91

the coefficient of thermal expansion of epoxy mortars is higher; the thermal expansion coefficient increases as the amount of resin increases and the coefficient of thermal expansion decreases when the load increases even remarks reported in a paper search[64]; these results can be explained by the connection between the charge and the matrix; when the important bond the coefficient thermal expansion is high. the type and shape of the load influences the thermal expansion coefficient we note that the thermal dilation coefficient of PMx is different from PMxSedy, in the literature have shown that the nature of charge[65] and the shape[66]

III.8. The thermal shock resistance

From visual examination according to the conditions of the standard on a surface treated with methyl blue, the modifications observed are small cracks and exfoliations on PM12Sed30 and PM12Sed50 formulations; these modifications can be explained by the low resin content which leads to a weak bond between the fillers and the matrix; for other formulations no modification. In a paper search [31], they did not observe modifications for a polymer mortar with a mass fraction of 30% epoxy and 70% of fillers (crushed granite)

III.9. Chemical resistance

It was noticed that the PM12 Sed30 and PM12 Sed50 and PM14 Sed50 formulations are not resistant to the attacks of the solutions (KOH and HCl). Modifications have been observed on the surface of the tested samples and that the solutions attack the load, these attacks related to

the small amount of resin that covers the charges. In one paper researches[68] have tested several chemical solutions on epoxy mortars; they concluded that epoxy mortars are resistant to chemical attack.

III.10. Leaching test crushed samples

TABLE 6 Results of leaching tests of mixtures PMxSed30

Parameters	Sediment	Sand	PM12 Sed30	PM14 Sed30	PM16 Sed30	PM18 Sed30	PM20 Sed30	PM25 Sed30	ISDI threshold	ISDND threshold
As	0,1	< 0,1	0,11	< 0,09	0,12	0,11	0,12	0,15	0,5	2
Ba	3	0,03	< 0,007	0,01	0,01	0,03	0,02	0,02	20	100
Cd	0,01	< 0,01	< 0,02	< 0,02	-	< 0,02	< 0,02	< 0,02	0,04	1
Co	-	< 0,01	0,14	0,12	0,11	0,16	0,26	0,17	-	-
Cr	0,02	< 0,01	< 0,004	< 0,004	-	< 0,004	< 0,004	< 0,004	0,5	10
Cu	0,6	< 0,02	< 0,007	0,07	-	< 0,007	< 0,007	< 0,007	2	50
Mo	0,1	< 0,1	< 0,04	< 0,04	-	< 0,04	< 0,04	< 0,04	0,5	10
Ni	0,1	< 0,04	< 0,03	< 0,03	-	< 0,03	< 0,03	< 0,03	0,4	10
Pb	0,1	< 0,02	< 0,09	< 0,09	-	< 0,09	< 0,09	< 0,09	0,5	10
Sb	0,11	< 0,05	< 0,2	< 0,2	-	< 0,2	< 0,2	< 0,2	0,06	0,7
Se	0,07	< 0,11	< 0,1	< 0,1	-	< 0,1	< 0,1	< 0,1	0,1	0,5
Sn	-	< 0,06	< 0,09	< 0,09	-	< 0,09	< 0,09	< 0,09	-	-
V	-	0,03	0,08	0,07	0,08	0,08	0,09	0,09	-	-
Zn	1	< 0,03	< 0,01	< 0,01	-	< 0,01	< 0,01	< 0,01	4	50
chlorides	36	< 10	< 10	12,5	15	30,5	36,5	24	800	15000
fluorides	20	< 5	7,25	5,7	4,05	4,15	4,3	4,55	10	150
sulfates	270	< 10	83,5	74,5	112,5	140	149,5	130,5	1000	20000
soluble fraction	2837	358	2103	3267	2614	4813	4338	4647	4000	60000
pH	8,09	8,98	8,48	8,65	8,83	8,76	8,77	8,71	-	> 6
Conductivity(μ S/cm)	264	27,75	114,40	104,50	114,45	134,80	137,15	133,80	-	-

The table 6 shows the results of the leaching of the PMxSed30 mortar of the different mass fractions of binder.

It is noted that for PMxSed30 mortar of different mass fraction the leaching result shows that the value of the antimony element (Sb) is exceeded the threshold. The soluble fraction value of the mortar PM18Sed30, PM20Sed30 and PM25Sed30 exceeds the threshold.

It should be noted that the values of the chemical elements of the PMxSed30 mortar are less than or equal to the values of the raw sediment. The fluoride value of the raw sediment is

exceeded the threshold but after the incorporation of the sediment in a polymer matrix this value has decreased and the more the mass fraction of the binder increases this value decreases.

The pH of the PMxSed30 mortar is almost stable and its value between the pH value of the sediment and the value of the sand. The soluble fraction increases with the increase of the mass fraction of the binder. The conductivity of the PMxSed30 mortar is small compared to the raw sediment but it is large compared to the sand. The PMxSed30 mortar of the different mass fraction of the binder is a non-inert and non-hazardous mortar.

The table 7 shows the results of the leaching of the PMxSed50 mortar of the different mass fractions of binder.

It is noted that for PMxSed35 mortar of different mass fraction the leaching result shows that the value of the antimony element (Sb) is exceeded the threshold. The value of the soluble fraction of PMxsed50 mortar for all mass fractions of binder exceeds the thresholds.

It should be noted that PMxSed50 mortar chemical values are less than or equal to raw sediment values. The fluoride value of the raw sediment is exceeded, but after the incorporation of the sediment in a polymer matrix, this value has decreased except for the PM12Sed50 mortar where the amount of binder is low, the fluoride value decreases when the quantity of resin increases

The pH of the PMxSed50 mortar is almost stable and its value between the pH value of the sediment and the value of the sand. The soluble fraction increases with the increase of the mass fraction of the binder. The conductivity of the PMxSed50 mortar is small compared to the raw sediment but it is large compared to the sand. The PMxSed50 mortar of the different mass fraction of the binder is a non-inert and non-hazardous mortar

The explanation of the decrease in the chemical values of the raw sediment after the incorporation of the sediments in a polymer matrix, the sediment loads are covered by the binder which prevents the diffusion of the chemical elements in the solution. Mainly, the increase of the soluble fraction is bound to the resin.

Table 6. Results of leaching tests of mixtures PMxSed50

Parameters	Sediment	Sand	PM12 Sed50	PM14 Sed50	PM16 Sed50	PM18 Sed50	PM20 Sed50	PM25 Sed50	ISDI threshold	ISDND threshold
As	0,1	< 0,1	0,19	0,14	0,13	0,16	0,13	0,16	0,5	2
Ba	3	0,03	0,03	< 0,007	0,01	< 0,007	0,02	0,03	20	100
Cd	0,01	< 0,01	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	< 0,02	0,04	1
Co	-	<0,01	0,08	0,08	0,03	0,11	0,12	0,13	-	-
Cr	0,02	< 0,01	< 0,004	< 0,004	< 0,004	< 0,004	< 0,004	< 0,004	0,5	10
Cu	0,6	< 0,02	0,14	< 0,007	< 0,007	0,03	0,02	0,02	2	50
Mo	0,1	< 0,1	< 0,04	< 0,04	< 0,04	< 0,04	< 0,04	< 0,04	0,5	10
Ni	0,1	< 0,04	< 0,03	< 0,03	< 0,03	< 0,03	< 0,03	< 0,03	0,4	10
Pb	0,1	< 0,02	< 0,09	< 0,09	< 0,09	< 0,09	< 0,09	< 0,09	0,5	10
Sb	0,11	< 0,05	< 0,2	< 0,2	< 0,2	< 0,2	< 0,2	< 0,2	0,06	0,7
Se	0,07	< 0,11	< 0,1	< 0,1	0,07	0,08	0,09	0,13	0,1	0,5
Sn	-	< 0,06	< 0,09	< 0,09	< 0,09	< 0,09	< 0,09	< 0,09	-	-
V	-	0,03	0,13	0,11	0,08	0,09	0,09	0,1	-	-
Zn	1	< 0,03	0,03	< 0,01	< 0,01	< 0,01	< 0,01	< 0,01	4	50
chlorides	36	< 10	17,5	13	10,5	11,50	12	23,5	800	15000
fluorides	20	< 5	11,5	10	6	6,5	5,7	4,9	10	150
sulfates	270	< 10	165,5	141,5	163	175	180,5	191	1000	20000
soluble fraction	2837	358	3367	2857	3737	5656	2594	1362	4000	60000
pH	8,09	8,98	8,63	8,65	8,51	8,58	8,62	8,67	-	> 6
Conductivity(μ S/cm)	264	27,75	152,25	143,15	133,95	141,95	144,00	155,70	-	-

III.11. SEM observation

Scanning electron microscopy (SEM) was performed; observations were made on the different formulations. The scanning electron microscope (SEM) analysis shows that the porosity in the composite is clearly influenced by the replacement of sand with sediment and the amount of resin / sediment. The porosity is probably due to the contact between the polymer matrix and the mineral filler. This may also be due to the elements that make up the material in the sediments, which hinders the matrix from binding to the mineral filler.

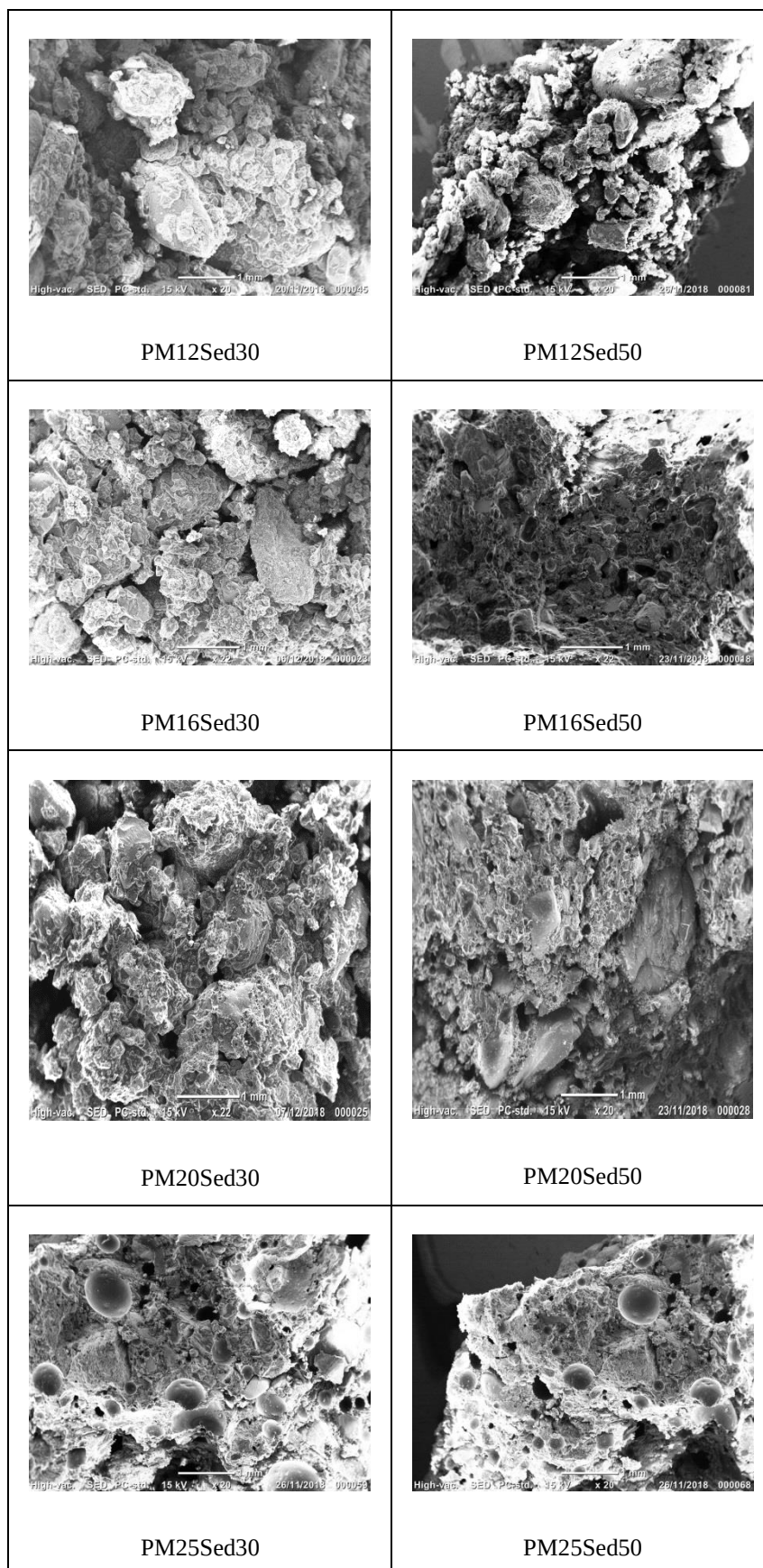


Figure 34. Scanning electron microscope (SEM) photograph from fracture surface of different formulation

IV. Conclusion and perspectives

This research paper has shown the feasibility of optimizing sediments in a polymer matrix with the packing density model 1, this model can give approximate percentages of the constituents to obtain an optimal compactness of the mixture; the porosity of the mixture given by the model may be the approximate amount of binder to be added.

The curing time of the polymer mortar made by sediments is identical to that of the polymer mortar made by sand. Tests of flexural, compressive strength and modulus of elasticity have shown good results, mechanical properties are related to the amount of resin and the nature of sediments. From the determined mass fraction of the binder, the results of the mechanical tests of the polymer mortar made by sediment exceed the results of the mechanical tests of a polymer mortar made by standardized sand. The mechanical properties can be improved if the sediment is saturated with a solution that does not react with the resin or with a surface treatment of the sediment to increase the adhesion forces between the sediment and the matrix.

The polymer mortar made by sediment has good physical properties. Mercury porosity and water absorption are related to the amount of resin and the amount of sediment. There is a linear relationship between compressive strength and porosity for polymer mortar made with sediment unlike mortar made with sand. The water absorption of the polymer mortar made by sand is low compared to the polymer mortar made by sediment, this difference related to the high water content of the sediment.

The polymer mortar made by sediment showed good thermal properties when compared to the polymer mortar made by sand, the incorporation of the sediment in a polymer matrix has influenced the thermal properties. The polymer mortar made by sediment has shown good durability to chemical attack and thermal shock, the durability of the polymer mortar manufactured by sediment is related to the nature and quantity of the load and the amount of binder. The leaching test has shown that the epoxy resin has an important role of covering the load; this cover limits the diffusion of the chemical elements.

Reference

[1] P.-Y. Scordia, Caractérisation et valorisation de sédiments fluviaux pollués et traités dans les matériaux routiers, (n.d.) 203.

- [2] E. Rozière, M. Samara, A. Loukili, D. Damidot, Valorisation of sediments in self-consolidating concrete: Mix-design and microstructure, *Construction and Building Materials*. 81 (2015) 1–10. doi:10.1016/j.conbuildmat.2015.01.080.
- [3] M. Benzerzour, Y. Mamindy-Pajany, E. van Veen, M. Boutouil, N.E. Abriak, Beneficial reuse of Brest-Harbor (France)-dredged sediment as alternative material in road building: laboratory investigations, *Environmental Technology*. 39 (2018) 566–580. doi:10.1080/09593330.2017.1308440.
- [4] F. Hamouche, R. Zentar, Effects of Organic Matter on Physical Properties of Dredged Marine Sediments, *Waste and Biomass Valorization*. (2018). doi:10.1007/s12649-018-0387-6.
- [5] N. Junakova, J. Junak, M. Balintova, Reservoir sediment as a secondary raw material in concrete production, *Clean Technologies and Environmental Policy*. 17 (2015) 1161–1169. doi:10.1007/s10098-015-0943-8.
- [6] K. Siham, B. Fabrice, A.N. Edine, D. Patrick, Marine dredged sediments as new materials resource for road construction, *Waste Management*. 28 (2008) 919–928. doi:10.1016/j.wasman.2007.03.027.
- [7] V. Dubois, N.E. Abriak, R. Zentar, G. Ballivy, The use of marine sediments as a pavement base material, *Waste Management*. 29 (2009) 774–782. doi:10.1016/j.wasman.2008.05.004.
- [8] R. Zentar, D. Wang, N.E. Abriak, M. Benzerzour, W. Chen, Utilization of siliceous–aluminous fly ash and cement for solidification of marine sediments, *Construction and Building Materials*. 35 (2012) 856–863. doi:10.1016/j.conbuildmat.2012.04.024.
- [9] M. Amar, M. Benzerzour, A.E.M. Safhi, N.-E. Abriak, Durability of a cementitious matrix based on treated sediments, *Case Studies in Construction Materials*. 8 (2018) 258–276. doi:10.1016/j.cscm.2018.01.007.
- [10] J. Couvidat, M. Benzaazoua, V. Chatain, A. Bouamrane, H. Bouzahzah, Feasibility of the reuse of total and processed contaminated marine sediments as fine aggregates in cemented mortars, *Construction and Building Materials*. 112 (2016) 892–902. doi:10.1016/j.conbuildmat.2016.02.186.
- [11] A. el M. Safhi, M. Benzerzour, P. Rivard, N.-E. Abriak, I. Ennahal, Development of self-compacting mortars based on treated marine sediments, *Journal of Building Engineering*. 22 (2019) 252–261. doi:10.1016/j.jobbe.2018.12.024.
- [12] C.-L. Hwang, L.A.-T. Bui, K.-L. Lin, C.-T. Lo, Manufacture and performance of lightweight aggregate from municipal solid waste incinerator fly ash and reservoir sediment for self-consolidating lightweight concrete, *Cement and Concrete Composites*. 34 (2012) 1159–1166. doi:10.1016/j.cemconcomp.2012.07.004.

- [13] C.-W. Tang, H.-J. Chen, S.-Y. Wang, J. Spaulding, Production of synthetic lightweight aggregate using reservoir sediments for concrete and masonry, *Cement and Concrete Composites*. 33 (2011) 292–300. doi:10.1016/j.cemconcomp.2010.10.008.
- [14] M. BENKADDOUR, F.K. AOUAL, A. SEMCHA, Durabilité des mortiers à base de pouzzolane naturelle et de pouzzolane artificielle, (n.d.) 11.
- [15] A. el Mahdi Safhi, M. Benzerzour, P. Rivard, N.-E. Abriak, Feasibility of using marine sediments in SCC pastes as supplementary cementitious materials, *Powder Technology*. 344 (2019) 730–740. doi:10.1016/j.powtec.2018.12.060.
- [16] A.L.G. Gastaldini, M.P. da Silva, F.B. Zamberlan, C.Z. Mostardeiro Neto, Total shrinkage, chloride penetration, and compressive strength of concretes that contain clear-colored rice husk ash, *Construction and Building Materials*. 54 (2014) 369–377. doi:10.1016/j.conbuildmat.2013.12.044.
- [17] A. Tironi, M.A. Trezza, A.N. Scian, E.F. Irassar, Assessment of pozzolanic activity of different calcined clays, *Cement and Concrete Composites*. 37 (2013) 319–327. doi:10.1016/j.cemconcomp.2013.01.002.
- [18] M. Jamshidi, A.R. Pourkhorshidi, Modified polyester resins as an effective binder for polymer concretes, *Materials and Structures*. 45 (2012) 521–527. doi:10.1617/s11527-011-9779-9.
- [19] J.I. Daniel, V.S. Gopalaratnam, M.A. Galinat, Reported by ACI Committee 544, (n.d.) 66.
- [20] J.M.. Reis, A.J.. Ferreira, Assessment of fracture properties of epoxy polymer concrete reinforced with short carbon and glass fibers, *Construction and Building Materials*. 18 (2004) 523–528. doi:10.1016/j.conbuildmat.2004.04.010.
- [21] W. Lokuge, T. Aravinthan, Effect of fly ash on the behaviour of polymer concrete with different types of resin, *Materials & Design*. 51 (2013) 175–181. doi:10.1016/j.matdes.2013.03.078.
- [22] J.P. Gorninski, D.C. Dal Molin, C.S. Kazmierczak, Comparative assessment of isophthalic and orthophthalic polyester polymer concrete: Different costs, similar mechanical properties and durability, *Construction and Building Materials*. 21 (2007) 546–555. doi:10.1016/j.conbuildmat.2005.09.003.
- [23] Rebeiz K. S., Craft A. P., Polymer Concrete Using Coal Fly Ash, *Journal of Energy Engineering*. 128 (2002) 62–73. doi:10.1061/(ASCE)0733-9402(2002)128:3(62).
- [24] M.J. Hashemi, M. Jamshidi, Flexural Behavior of Polyester Polymer Concrete Subject to Different Chemicals, 28 (2015) 7.

- [25] E. Ghorbel, M. Haidar, Durability to Chemical Attack by Acids of Epoxy Microconcretes by Comparison to Cementitious Ones, *Advances in Civil Engineering*. 2016 (2016) 1–15. doi:10.1155/2016/4728372.
- [26] C. Vipulanandan, N. Dharmarajan, Flexural behavior of polyester polymer concrete, *Cement and Concrete Research*. 17 (1987) 219–230. doi:10.1016/0008-8846(87)90105-0.
- [27] H. Abdel-Fattah, M.M. El-Hawary, Flexural behavior of polymer concrete, *Construction and Building Materials*. 13 (1999) 253–262. doi:10.1016/S0950-0618(99)00030-6.
- [28] M. Muthukumar, D. Mohan, Studies on polymer concretes based on optimized aggregate mix proportion, *European Polymer Journal*. 40 (2004) 2167–2177. doi:10.1016/j.eurpolymj.2004.05.004.
- [29] K.C. Radford, The mechanical properties of an epoxy resin with a second phase dispersion, *Journal of Materials Science*. 6 (1971) 1286–1291. doi:10.1007/bf00552042.
- [30] Y. Nakamura, M. Yamaguchi, M. Okubo, T. Matsumoto, Effects of particle size on mechanical and impact properties of epoxy resin filled with spherical silica, *Journal of Applied Polymer Science*. 45 (1992) 1281–1289. doi:10.1002/app.1992.070450716.
- [31] A.T. Dibenedetto, A.D. Wambach, The Fracture Toughness of Epoxy-glass Bead Composites, *International Journal of Polymeric Materials*. 1 (1972) 159–173. doi:10.1080/00914037208082114.
- [32] J.M.L. Reis, Fracture and flexural characterization of natural fiber-reinforced polymer concrete, *Construction and Building Materials*. 20 (2006) 673–678. doi:10.1016/j.conbuildmat.2005.02.008.
- [33] H.G. Nguyen, S. Ortola, E. Ghorbel, Micromechanical modelling of the elastic behaviour of polymer mortars, *European Journal of Environmental and Civil Engineering*. 17 (2013) 65–83. doi:10.1080/19648189.2012.739787.
- [34] M. Hassani Niaki, A. Fereidoon, M. Ghorbanzadeh Ahangari, a novel, *Structural Concrete*. 19 (2018) 366–373. doi:10.1002/suco.201700003.
- [35] S.-C. Kou, C.-S. Poon, A novel polymer concrete made with recycled glass aggregates, fly ash and metakaolin, *Construction and Building Materials*. 41 (2013) 146–151. doi:10.1016/j.conbuildmat.2012.11.083.
- [36] Comparison of Mechanical Properties for Polymer Concrete with Different Types of Filler | *Journal of Materials in Civil Engineering* | Vol 22, No 7, (n.d.). [https://ascelibrary.org/doi/abs/10.1061/\(ASCE\)MT.1943-5533.0000069](https://ascelibrary.org/doi/abs/10.1061/(ASCE)MT.1943-5533.0000069) (accessed November 2, 2018).

- [37] K.S. Rebeiz, S.P. Serhal, A.P. Craft, Properties of Polymer Concrete Using Fly Ash, *Journal of Materials in Civil Engineering*. 16 (2004) 15–19. doi:10.1061/(ASCE)0899-1561(2004)16:1(15).
- [38] A. Kumar, G. Singh, N. Bala, Evaluation of Flexural Strength of Epoxy Polymer Concrete with Red Mud and Fly Ash, *International Journal of Current Engineering and Technology*. (2013) 5.
- [39] J.M.L. Reis, R. Chianelli-Junior, J.L. Cardoso, F.J.V. Marinho, Effect of recycled PET in the fracture mechanics of polymer mortar, *Construction and Building Materials*. 25 (2011) 2799–2804. doi:10.1016/j.conbuildmat.2010.12.056.
- [40] G. Sosoi, M. Barbuta, A.A. Serbanoiu, D. Babor, A. Burlacu, Wastes as aggregate substitution in polymer concrete, *Procedia Manufacturing*. 22 (2018) 347–351. doi:10.1016/j.promfg.2018.03.052.
- [41] N. Benzannache, A. Bezazi, H. Bouchelaghem, M. Boumaaza, S. Amziane, F. Scarpa, Statistical Analysis of 3-Point Bending Properties of Polymer Concretes Made From Marble Powder Waste, Sand Grains, and Polyester Resin, *Mechanics of Composite Materials*. 53 (2018) 781–790. doi:10.1007/s11029-018-9703-2.
- [42] N.E. Marcovich, M.M. Reboredo, M.I. Aranguren, Mechanical properties of woodflour unsaturated polyester composites, *Journal of Applied Polymer Science*. 70 (1998) 2121–2131. doi:10.1002/(SICI)1097-4628(19981212)70:11<2121::AID-APP5>3.0.CO;2-Z.
- [43] I. Ennahal, W. Maherzi, Y. Mamindy-Pajany, M. Benzerzour, N.-E. Abriak, Eco-friendly polymers mortar for floor covering based on dredged sediments of the north of France, *Journal of Material Cycles and Waste Management*. (2019). doi:10.1007/s10163-019-00843-3.
- [44] A. Lecomte, J.-M. Mechling, C. Diliberto, Compaction index of cement paste of normal consistency, *Construction and Building Materials*. 23 (2009) 3279–3286. doi:10.1016/j.conbuildmat.2009.05.005.
- [45] Essai de compacité des fractions granulaires à la table à secousses: mode opératoire., *Laboratoire central des ponts et chaussées*, Paris, 2004.
- [46] Elalaoui et al. - 2012 - Mechanical and physical properties of epoxy polyme.pdf, (n.d.). https://ac.els-cdn.com/S0950061811003813/1-s2.0-S0950061811003813-main.pdf?_tid=033ade1e-482e-4ff2-b73d-a8c19960694f&acdnat=1535617709_40b87b5917863fa5655d02eab6da5bab (accessed August 30, 2018).
- [47] P.J.R.O. Nóvoa, M.C.S. Ribeiro, A.J.M. Ferreira, Mechanical Behaviour of Cork-Modified Polymer Concrete, *Materials Science Forum*. 455–456 (2004) 805–809. doi:10.4028/www.scientific.net/MSF.455-456.805.

- [48] Y. Ohama, K. Demura, Relation between curing conditions and compressive strength of polyester resin concrete, *International Journal of Cement Composites and Lightweight Concrete*. 4 (1982) 241–244. doi:10.1016/0262-5075(82)90028-8.
- [49] M.E. Tawfik, S.B. Eskander, Polymer Concrete from Marble Wastes and Recycled Poly(ethylene terephthalate), *Journal of Elastomers & Plastics*. 38 (2006) 65–79. doi:10.1177/0095244306055569.
- [50] K.S. Rebeiz, Precast use of polymer concrete using unsaturated polyester resin based on recycled PET waste, *Construction and Building Materials*. 10 (1996) 215–220. doi:10.1016/0950-0618(95)00088-7.
- [51] D.M. Yemam, B.-J. Kim, J.-Y. Moon, C. Yi, Mechanical Properties of Epoxy Resin Mortar with Sand Washing Waste as Filler, *Materials (Basel)*. 10 (2017). doi:10.3390/ma10030246.
- [52] C. Vipulanandan, N. Dharmarajan, Flexural behavior of polyester polymer concrete, *Cement and Concrete Research*. 17 (1987) 219–230. doi:10.1016/0008-8846(87)90105-0.
- [53] S.-Y. Fu, X.-Q. Feng, B. Lauke, Y.-W. Mai, Effects of particle size, particle/matrix interface adhesion and particle loading on mechanical properties of particulate–polymer composites, *Composites Part B: Engineering*. 39 (2008) 933–961. doi:10.1016/j.compositesb.2008.01.002.
- [54] M. Golestaneh, G. Amini, G.D. Najafpour, M.A. Beygi, Evaluation of mechanical strength of epoxy polymer concrete with si, (2010) 6.
- [55] P. Ravikumar, V. Ellappan, THE MIX PROPORTION AND STRENGTH OF POLYESTER RESIN CONCRETE WITH VARIOUS MICROFILLERS, (n.d.) 9.
- [56] A.J.M. Ferreira, C. Tavares, C. Ribeiro, Flexural Properties of Polyester Resin Concretes, *Journal of Polymer Engineering*. 20 (2000). doi:10.1515/POLYENG.2000.20.6.459.
- [57] M.C.S. Ribeiro, P.R. Nóvoa, A.J.M. Ferreira, A.T. Marques, Flexural performance of polyester and epoxy polymer mortars under severe thermal conditions, *Cement and Concrete Composites*. 26 (2004) 803–809. doi:10.1016/S0958-9465(03)00162-8.
- [58] M.C.S. Ribeiro, C.M.L. Tavares, M. Figueiredo, A.J.M. Ferreira, A.A. Fernandes, Bending characteristics of resin concretes, *Materials Research*. 6 (2003) 247–254. doi:10.1590/s1516-14392003000200021.
- [59] Y. Nakamura, M. Yamaguchi, M. Okubo, T. Matsumoto, Effect of particle size on mechanical properties of epoxy resin filled with angular-shaped silica, *Journal of Applied Polymer Science*. 44 (1992) 151–158. doi:10.1002/app.1992.070440116.

- [60] X.L. Ji, J.K. Jing, W. Jiang, B.Z. Jiang, Tensile modulus of polymer nanocomposites, *Polymer Engineering & Science*. 42 (2002) 983–993. doi:10.1002/pen.11007.
- [61] Mechanical properties of particulate composites, *Composites*. 4 (1973) 93. doi:10.1016/0010-4361(73)90794-5.
- [62] P.A. Webb, An Introduction To The Physical Characterization of Materials by Mercury Intrusion Porosimetry with Emphasis On Reduction And Presentation of Experimental Data, (n.d.) 23.
- [63] M. Haidar, E. Ghorbel, H. Toutanji, Optimization of the formulation of micro-polymer concretes, *Construction and Building Materials*. 25 (2011) 1632–1644. doi:10.1016/j.conbuildmat.2010.10.010.
- [64] M.C.S. Ribeiro, J.M.L. Reis, A.J.M. Ferreira, A.T. Marques, Thermal expansion of epoxy and polyester polymer mortars—plain mortars and fibre-reinforced mortars, *Polymer Testing*. 22 (2003) 849–857. doi:10.1016/S0142-9418(03)00021-7.
- [65] C.P. Wong, R.S. Bollampally, Thermal conductivity, elastic modulus, and coefficient of thermal expansion of polymer composites filled with ceramic particles for electronic packaging, *Journal of Applied Polymer Science*. 74 (1999) 3396–3403. doi:10.1002/(SICI)1097-4628(19991227)74:14<3396::AID-APP13>3.0.CO;2-3.
- [66] T.S. Chow, Effect of particle shape at finite concentration on thermal expansion of filled polymers, *Journal of Polymer Science: Polymer Physics Edition*. 16 (1978) 967–970. doi:10.1002/pol.1978.180160603.
- [67] L. Agavriloaie, S. Oprea, M. Barbuta, F. Luca, Characterisation of polymer concrete with epoxy polyurethane acryl matrix, *Construction and Building Materials*. 37 (2012) 190–196. doi:10.1016/j.conbuildmat.2012.07.037.
- [68] M. Golestaneh, Evaluation of Chemical Resistance of Polymer Concrete in Corrosive Environments, *Iranica Journal of Energy & Environment*. 4 (2013). doi:10.5829/idosi.ijee.2013.04.03.19.
- .

II.6 “Eco-friendly polymers mortar for floor covering based on dredged sediments of the north of France”. Article publié le 15 February 2019 dans “journal of material cycles and waste management”

Eco-friendly polymers mortar for floor covering based on dredged sediments of the north of France

ENNAHAL Ilyas, MAHERZI Walid, MAMINDY-PAJANY Yannick, BENZERZOUR Mahfoud, ABRIAK Nor-Edine

IMT Lille Douai, Univ. Lille, EA 4515 - LGCgE – Laboratoire de Génie Civil et géoEnvironnement, département Génie Civil & Environnemental, 764 BD Lahure 59500 Douai

ABSTRACT

The onshore management of marine and river sediments represents economic, environmental, and societal issues; these materials are considered as wastes after dredging. In the framework of the SEDIPLAST regional project, dredged sediments, which are considered as non-inert waste according to European regulation, are recovered as mineral aggregates in thermosetting polymeric matrix in order to formulate polymer mortars in the field of floor coverings. The formulations are optimized using the Packing Density Model, to determine the optimum density of the mixtures, thus allowing having the high mechanical characteristics of material. These formulations are evaluated by mechanical, thermal, and chemical tests according to the French classification of durability which characterizes the soil of a locality according to its use (UPEC).

The results showed that the polymer mortars including dredged sediments have excellent physical, mechanical, and thermal properties, such as low voids content and excellent chemical resistance properties. Finally, SEM observations of different mixtures allowed to give an explanation of the results observed in macroscopic scale.

Keywords: sediment, beneficial reuse, waste management; polymer concrete, sustainability

1. INTRODUCTION

The accumulation of sedimentary particles at the bottom and on the edges of waterways and shipping lanes, as well as at seaports, leads to congestion and obstruction. For rivers, it slows the flow and prevents the transport activities that take place there. For non-navigable rivers, this accumulation increases the risk of flooding. In order to maintain and restore these accesses, it is necessary to flint or clean regularly. The amount of sediment dredged in France is a small amount of 50 million m³. In accordance with the European Order of 18 April 2002, these dredged materials are considered as waste after the dredging operation. In a context of sustainable development, the valorisation of marine and river materials resulting from the dredging operations in civil engineering makes it possible to cope with the absence of the deposit and use as a resource. Sediment assessment has recently been of particular interest. Several works have been carried out to valorise these materials, either as alternative materials in road construction [1-3], or in the construction industry [4, 5] or landscaping equipment [6]. Nevertheless, the good use of dredged material encounters some scientific challenges, among them is the significant percentage of their initial water content and organic matter, and their fineness [7-9], and inorganic contaminants such as heavy metals (lead, copper, chromium, etc.), salts, cyanides, etc. But also, as organic hydrocarbons: PAH, PCB, TBT [10].

Studies in recent years on the valorization of sediments in mineral composites like concrete or mortar have shown that these sediments can be used [1, 11-13]. However, the interaction between binders and some chemical compounds of sediments, like heavy metals, may affect the characteristics of fresh concrete (rheology, setting time) [11, 14] and hardened concrete (the mechanical strength and the durability) [15, 16].

The aim of this study is to reuse the sediments in polymer mortars. The polymer mortar is a composite material in which the binder is the polymer (epoxy, polyester) [17] and the aggregates are limestone and sand. Some properties of polymer mortar are the high tensile strength [18], durable materials compared to mortar or concrete with cementitious matrix [19], and good resistance to chemical attack [20]. Polymeric binder is also characterized by short setting time, which represents an important factor in civil engineering. Among the advantages of polymer matrix concrete over cementitious matrix concrete is their ability to incorporate waste under the insulating nature of the resin, several researches were working to integrate industrial waste into polymer concrete, such as: mineral limestones or recycled glass [21], industrial waste as well as fly ash [22] or marble powders [23], slag [24], granule cork

[25], wood chips [26]. In addition to recycled organic limestones such as tire rubber or plastic granules from crushed electrical cable waste [27].

Only a few examples of sediment use in polymer matrices, such as Jiapei's study of the effects of epoxy resin on ground granulated blast furnace slag stabilized marine sediments, observed that mechanical factors are related to the percentage of the resin, while also the epoxy resin stabilizes the dangerous elements [28].

We chose to evaluate the formulations according to the UPEC standard. The UPEC classification of soils is a French classification of durability that characterizes the floor of a room according to its use such as ceramic tiles or textile floor coverings or tufted and woven carpets, soft floors, or laminate floors. This ranking lists the premises in eight categories: housing, offices, train stations and airports, shops, hotels, educational institutions, hospitals and homes for the elderly, with the detail, for each of them, of the function of the room. The UPEC classification indicates the level of resistance to be achieved by the coating according to the type of structure, in terms of wear on the step (U), punching due to fixed or rolling furniture or falling objects (P), resistance to water or moisture (E) and chemicals or staining (C). These performances are characterized by the association of these letters with indices ranging from 1 to 4 which correspond to the severity of use. The index increases with the level of local performance requirement or floor. For UPEC tests, compliance with certain standards is mandatory.

2. MATERIALS AND METHODS

2.1. Materials

The aggregates used to make tiles for floor covering consisted of coarse sand and fillers, and marine sediments and river sediments. The marine sediments used in this study are dredged at the Port of Dunkirk (GPMD) located in the north of France (GPS coordinates: 51° 02'24.8" N 2° 22'26.0" E). The port of Dunkirk, the third largest port of France, is recognized as a bulk loading port for its numerous industrial installations or other sectors such as the RO-RO Trans-Manche in Great Britain which is also the largest French port of import ore and coal; largest French port for copper imports, and the second largest French port for trade with Great Britain. This port drags about 4 million meters of sediment per year. A 500-kg sample was taken in February 2016 from a settling lagoon located inside the port where unsinkable sediments are stored. At the end of the settling process, the water content reduction can reach

65%; which facilitates transportation or landfill. The river sediments (R) are dredged in the Neufossé channel (GPS coordinates 50° 38'42" N, 2° 24'38" E), which is a French canal connecting the Aa River in Arques (a commune in the Pas-de-Calais department in northern France) to the channel of Aire-sur-la-Lys (a commune in the Pas-de-Calais department in northern France). It is a segment of the Canal Dunkerque-Escaut. A 300-kg sample was taken in May 2016 from a storage depot near the river.

The constituents must be stored under favourable conditions according to the manufacturer's instructions or the rules of the state of the art, the sand and Filler must be dried at 105 °C for 24 h and the sediment at 60 °C for more than 48 h to reduce moisture content and to ensure a good adhesion between aggregates. After the drying of the sediment it is necessary to crush them and then sieve at 2 mm fineness.

Geotechnical properties

The measurement of the density of the materials was carried out with a helium pycnometer of Micromeritics AccuPyc 1330 type according to the standard NF EN 1097-7 [29]. The BET surface is determined according to standard NF EN ISO 18757 [30]. The particle size distribution was carried out by wet particle size analysis for the sediments and the dry way for the sand and limestone using a LS12330 COULTER. The measurement of the organic material was carried out by the calcination test at 450 °C according to XP P94-047 [31]. To evaluate the clay content, the methylene blue absorption test (VBS) was conducted in accordance with French standard NF P 94-068 [32].

The sand and filler have an absolute density of about 2680 kg/m³ and 2684 kg/m³, respectively, Particle size distribution of the aggregates are shown in Figure 1, while Table 1 represents the cumulative volume of the size classes (D10 (μm), D50 (μm), D90 (μm), DMax (μm)) of the constituent particles, we note in the table 1 that the fillers contain only fines, marine sediments, and river sediments containing nearly 50% fines. (80 μm). Table 2 represents the characteristics of the sediments.

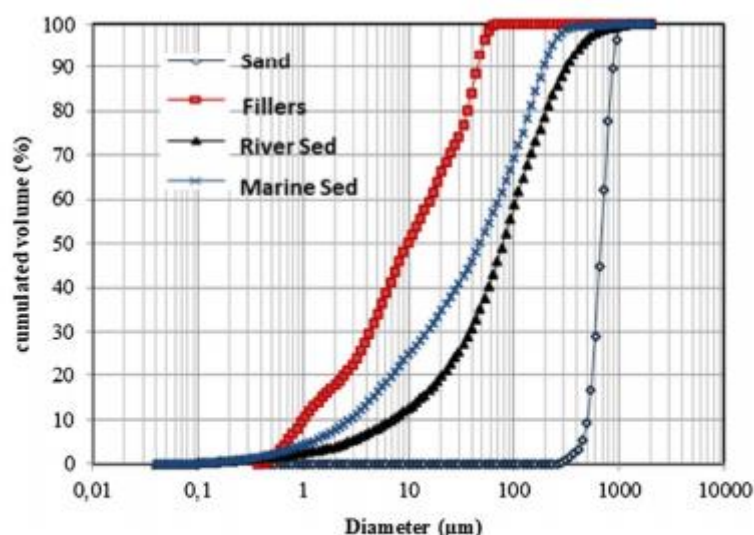


Fig. 1 Particle size distribution of materials

Table 1 Cumulative volume of particle size

	Sand	Limestone	River sediment	Marine sediment
D_{10} (μm)	0	50.02	12.46	24.61
D_{50} (μm)	0	92.89	35.18	50.22
D_{90} (μm)	0	100	52.26	64.08
D_{Max} (μm)	2000	83.89	1511	1377.2

Table 2 Physical characteristics of sediments

Characteristics	Standards	River sediment	Marine sediment
Density (kg/m ³)	NF EN 1097-7	2470	2600
Methylene blue value (g/100 g of dry matter)	NF P 94-068	1.23	0.80
Organic matter content (%) at 450 °C	XP P94-047	12.53	5.43
BET surface (m ² /g)	NF EN ISO18757	11.0079	12.0895

Mineralogical characterization of sediments

Mineralogical X-ray diffraction (XRD) characterization was performed by Siemens D5000 diffractometer. These tests identify and qualify the mineralogical nature and the crystalline phases present.

For marine sediment, the main chemical elements, shown in Figure 2, are: Calcite (CaCO_3), Quartz (SiO_2), Pyrite (FeS_2), but also elements of clay origin: Kaolinite and Illite. For river sediment the main chemical elements, in Figure 3, are: calcite (CaCO_3), Quartz (SiO_2), Orthoclase (KAlSi_3O_8), Muscovite, and Albite.

The chemical analysis consisted in determining the proportion of each chemical element (Table 3) by X-ray fluorescence (XRF). This analysis revealed the presence of oxygen (approximately 50%), silicon (approximately 16.6%), and calcium (approximately 15%) in marine sediments. For river sediments the oxygen presented (about 53.3%), silicon (about 25.9%), and calcium (about 10.6%), these values are close to those found in previous studies [33].

Chemical characterization of sediments

In order to determine the environmental quality of the dredged sediments and their potential re-use as an alternative material in the field of civil engineering, leaching tests were carried out in accordance with the European standard EN 12457-2 [34]. The leaching tests were carried out with a liquid/solid ratio (L/S) of 10 (100 g of solid in 1 l of deionized water). The mix was stirred at a rate of 60 cycles/minute for 24 hours. The liquid phase was separated from the solid by decantation and filtration (pore size: $0.45\ \mu\text{m}$) for Inductively Coupled Plasma Atomic Emission Spectroscopy (ICP-AES) measurements. The metallic trace elements were analysed by ICP-AES. Different chemical contents such as chloride, nitrate, and sulphate were measured by ion chromatography. The values obtained (Table 4) were compared with the level of inert waste (established by the French directive of 28 October 2010 relating to inert waste storage facilities); values were also used to estimate the degree of sediment pollution.

Note that the determined values were lower than the threshold values. With the exception of molybdenum (Mo), antimony (Sb), fluoride, chloride, and sulphate for marine sediments; and fluoride and antimony (Sb) for river sediments whose consultations exceeded the threshold for inert pollutants. According to French legislation, the studied sediments are classified as non-hazardous waste.

Table 4 Contaminant concentrations in leachate of raw sediments according the European standards NF EN 12457-2

Parameters	River sediment	Marine sediment	Classification of solid waste		
			Inert	Non hazardous	Hazardous
As (mg/kg)	0.052	0.16	0.5	2	25
Ba (mg/kg)	3.3	0.8	20	100	300
Cd (mg/kg)	0.008	0.01	0.04	1	5
Cr (mg/kg)	0.018	0.06	0.5	10	70
Cu (mg/kg)	0.61	0.8	2	50	100
Mo (mg/kg)	0.105	0.940	0.5	10	30
Ni (mg/kg)	0.052	0.15	0.4	10	40
Pb (mg/kg)	0.06	0.07	0.5	10	50
Sb (mg/kg)	0.108	0.14	0.06	0.7	5
Se (mg/kg)	0.073	0.05	0.1	0.5	7
Zn (mg/kg)	0.75	0.32	4	50	200
Fluoride (mg/kg)	20	30	10	150	500
Chloride (mg/kg)	36	12036.7	200	15,000	25,000
Sulphate (mg/kg)	270	5656.7	1000	20,000	50,000
Soluble fraction (mg/kg)	4300	3083	4000	60,000	50,000
pH	8.5	7.3			

Characterization Polyester resins

The resin binder used is unsaturated orthophthalic polyester which is a polymer commercially known as NORSODYNE® H 13170 provided by polynocomposites. Table 5 represents the characteristics of the used polyester resin; the mechanical and thermal properties of the resin are listed in Table 6.

Table 5 Characteristics of the used polyester resin

Characteristics	Resin
Density at 20 °C (g/cm ³)	1.12
Viscosity (dPa.S)	2.7–3.3
Appearance	Clear
Solid content (%)	60–64
Gel time (min)	6–8
Cure time (min)	21–25
Peak temperature (°C)	125–145

Table 6 Thermal and mechanical properties of the used resin

Properties	Value
Tensile modulus (MPa)	3715
Tensile strength (MPa)	57
Elongation at break (%)	2.3
Flexural strength (MPa)	98
Flexural modulus (MPa)	3630
HDT (°C)	82

2.2. Mixtures design

The packing density of a granular mixture is an important parameter for civil engineering applications, because many composite materials (such as concrete) are manufactured by granular inclusions embedded in a binder matrix. The goal is often to combine the grains to minimize porosity, in order to use as little binder as possible [35].

Optimization of the Packing density of mixture

The Packing Density Model (PDM) was used to optimize the granular skeleton of the mixtures. The PDM makes it possible to predict the real packing density of a mixture noted ϕ with several classes from the knowledge of the energy of the setting up, the packing density of each constituent and the granulometry of each mixed. This model is based on two physical notions:

The virtual packing density of the mixture Y: it is the maximum packing density that can reach a granular stack, if all the grains were stored optimally. In reality, the experimental packing density is inferior to the virtual packing density.

Clamping index (K): is a representative quantity of clamping intensity. The index is infinite so the actual mixing packing density is equal to the virtual packing density.

Once the interactions are known, the dominant class is determined. The virtual packing density of a mixture of n classes is expressed by the formula:

$$\gamma_i = \frac{\beta_i}{1 - \sum_{j=1}^{i-1} [1 - \beta_i + b_{ij}\beta_i(1 - 1/\beta_j)] y_j - \sum_{j=i+1}^n [1 - a_{ij}\beta_i/\beta_j] y_j} \quad \text{Equation 6}$$

γ_i : virtual packing density when class i is dominant,

n: number of classes in the mixture,

β_i : residual packing density of class i,

β_j : residual packing density of class j,

y_j : volume proportion of class j in the mixture with:

$$y_i = \frac{V_i}{\sum_{j=1}^n V_j} \quad \text{Equation 7}$$

a_{ij} : loosening effect exerted by a grain j in a stack of coarse grains i,

b_{ij} : wall effect exerted by a large grain i in a stack of fine grains j.

Calculations of the packing density of the fines are made by precisely fixing the amount of water in the mixtures. Measurements were made for each formulation using a Vicat device following the standard procedure specified in the standard NF EN 196-3 [36]. Depending on the water demand, the amount of added water needs to allow a needle penetration depth of 6 mm. This amount of water allows a state of normal consistency of the dough, which corresponds to the maximum filling density of the material. The relationship between the maximum packing density and the water demand of a material is given by [37]:

$$C = \frac{1000}{1000 + M_v \cdot \frac{M_e}{M_p}} \quad \text{Equation 8}$$

Where M_v is the density of the powder (kg/m³) and M_e and M_p are the masses of water and powder respectively (kg).

Furthermore, understanding the behaviour of a mixture requires the knowledge of its packing density. Indeed, there is a direct relationship between packing density and porosity. The latter significantly affects the mechanical properties, durability, and water absorption. The relationship between the maximum packing density and the porosity of a material is given by:

$$n = 1 - C \quad \text{Equation 9}$$

Where n is the porosity and C is the packing density of the mix.

Packing density of fillers and sediment and sand

Measurement of the packing density of the granular fractions is made with the shaking table, the test consists of placing a sample of aggregates in a mould under the constraint of a piston, and to apply to all the mechanical shake causing rearrangement of the grains, and thus compaction of the sample, the measurement is then that of the apparent density of the sample, which makes it possible to calculate the packing density. The packing density is calculated according to the following formula [38]:

$$C = p_a / p_{rd} \quad \text{Equation 10}$$

With

p_{rd} (g/cm³) = real density in the sense of the standard NF EN 1097-6 [39]

p_a (g/cm³) = Apparent density of the material

Tables 7 show the packing density of sediments, limestone and sand. The PDM gives us percentages of the constituents of each mixture according to the porosity of this mixture. Three mixtures were chosen: the first one, reference (PEL), being sand and limestone; the second, sand and marine (PEMSed) sediment; the third, sand and river sediment (PERSed). Figure 4 represents the variation of the packing density of the mixtures as a function of the percentage of sand. It is found that the optimal packing density for the first mixture is 0.88 to 70% of the sand and 30% of the fillers, and for the second mixture of sand and marine sediment the optimal packing density is 0.84 for a percentage of 70% sand and 30% marine sediment, and for an optimal packing density of 0.77 for the third mixture of sand and sediment fluvial. On the basis of these data the percentages of each mixing component are fixed and the percentage of binder is fixed from the highest porosity of the three mixtures, it is

the porosity of the third mixture and equal to 23%, therefore the percentage of binder. Table 8 shown the percentages of the constituents of each formulation.

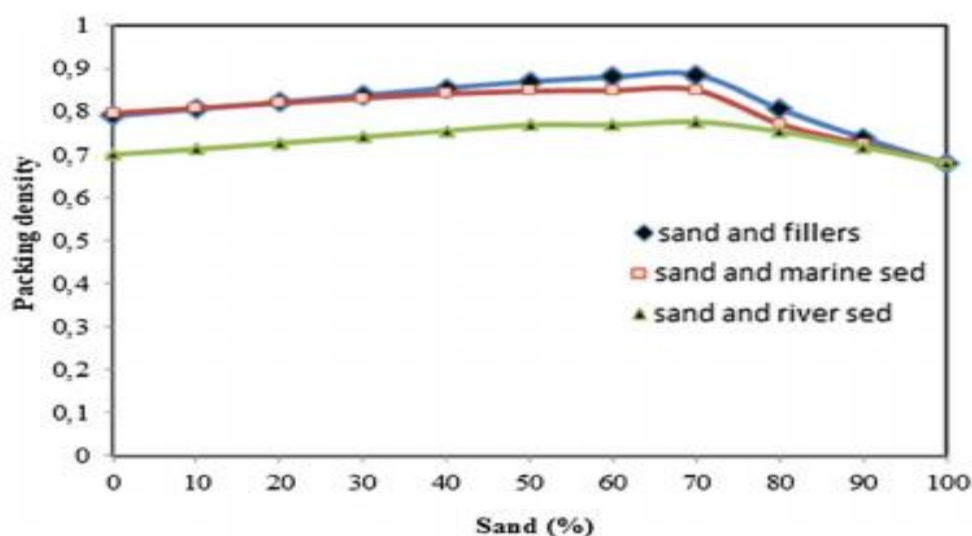


Fig. 4 Evolution of the packing density of the mixtures

Table 7 Packing density of different materials

	Sand	Limestone	River sediment	Marine sediment
Packing density	0.64	0.59	0.56	0.66

Table 8 Composition of the studied mixtures

PEL	PEMSed	PERSed
23% polyester resin	23% polyester resin	23% polyester resin
70% sand	70% sand	70% sand
30% filler	30% marine sediment	30% river sediment

The production of composite materials is carried out by first mixing the resin and the hardener at a speed of 300 rpm for 6 minutes until the production of a uniform mixture. After that, the aggregates were incorporated into the liquid mixture and mixed together at the same speed for 5 minutes. The mixtures were then poured into the mould which is then compacted using the vibrating table. The polymer concrete specimens were demoulded after 24 h. About 80% of

the 28-day compressive strength can be achieved in 7 days for polymer concrete [40]. We have fixed 7 days for the cure time in air at 25 °C to our formulations.

2.3. Experimental program

For UPEC tests compliance with certain standards is mandatory. So, we chose the UPEC tests to apply on ceramic tiles. We took this choice to compare our tiles with ceramic tiles. The UPEC tests applied on ceramic tiles are:

The density and porosity of the produced samples were measured using a Micromeritics AutoPore IV 9500 porosimeter. The principle of measurement is based on the pressure required to intrude mercury into the sample's pores, which is inversely proportional to the size of the pores. The water absorption was measured by weighing the tile samples a section of 150x150x15 mm, periodically using a 0.1g analytical balance accurately. Each test was repeated at least three times. The samples were dried at 40 °C for 48 h. Then they were totally immersed in the water for 24 hours and maintained at a constant temperature of 23 °C.

$$E = \left(\frac{Mh - Ms}{Ms} \right) * 100 \quad \text{Equation 11}$$

Where Ms is the mass of the dried sample and Mh its mass after immersion in water for 24 hours

Mechanical properties of the samples were examined by a bending test were performed on samples of 150x150x15 mm. according to the European standard EN ISO 10545-4 [41]. These tests were performed using an Instron 300 DX model testing machine to which PartnerT test software was connected.

Thermal properties of the samples were examined by determining the linear coefficient of thermal expansion for the temperature range from room temperature to 100 °C according to EN ISO 10545-8 [42]. The coefficient of linear thermal expansion, α_l , is expressed as 10^{-6} per degree Celsius ($10^{-6} / ^\circ\text{C}$).

$$\alpha_l = (1/L_0) * (\Delta L / \Delta T) \quad \text{Equation 12}$$

Another test to determine thermal properties is the thermal shock resistance of a sample (150x150x15 mm) subjected to 10 cycles during which the temperature varies between 15°C and 145°C according to EN ISO 10545-9 [43]. The visible defects on the specimens were

identified by examining them with the naked eye at a distance of 25 to 30 cm under minimal illumination.

Durability of the tiles was examined by determining the chemical resistance according to the standard EN ISO 10545-13 [44]. The test consists of depositing on the surface about 1 cm^3 of the acidic and basic solutions, it is then allowed to act, during the recommended time. At the end of the exposure time, the specimens are rinsed with water and then wiped. The test pieces are then examined, and the judgment is made visually:

- No alteration
- Slight attack
- Deep attack

To determine the abrasion resistance of the tiles by measuring the length of the groove made on the appropriate surface by means of a rotating steel disk, under conditions given according to the standard EN ISO 10545-6 [45].

To evaluate the environmental impacts of the designed mixture, the leaching tests were carried out according to the European test EN 12457-2 [46] standard for crushed sintering samples. Leaching of the tests was carried out with a liquid/solid ratio of 10. The samples with the added lixiviation liquid were stirred for 24 h under specified test conditions. The liquid has been separated from the solid by filtration (pore size 0.45 mm). The trace elements were analysed with the concentrate that is leached under the test conditions. Leachate quality threshold of the European Decision 2003/33/EC (JOCE 1601, 2003) was applied to leachate materials to evaluate leaching under mild extraction conditions. It should be noted that the threshold of the European Decision has been developed to establish the criteria and procedures for accepting waste in landfills storage facilities.

3. RESULTS AND DISCUSSION

For the percentages of porosity for each formulation, it is found that the porosity of the formulation (PEL) is equal to 1.52% which is lower by contribution to the porosity of the formulations (PERSed) and (PEMSed) respectively which are equal to 2.57% and 2.39%. These results are widely acceptable compared to the porosity of ceramic tiles, which is usually greater than 30% [47]. This difference in porosity is related to the granulometry of the mixtures. Indeed Figure 5 shows the particles size distribution of the mixtures, where it is

found that the volume of the fines for the mixture (PEL) is greater in the mixture of (PEMSed) and (PERSed). The percentage of cumulative volumes less than 80 μm , for the mixture (PEL) $D < 80 \mu\text{m}$ is equal to 29.99%, for (PEMSed) $D < 80 \mu\text{m}$ is equal to 18.84%, and for (PERSed) it is equal to 15.18%, when the fine part in the mixture increases the decreased porosity.

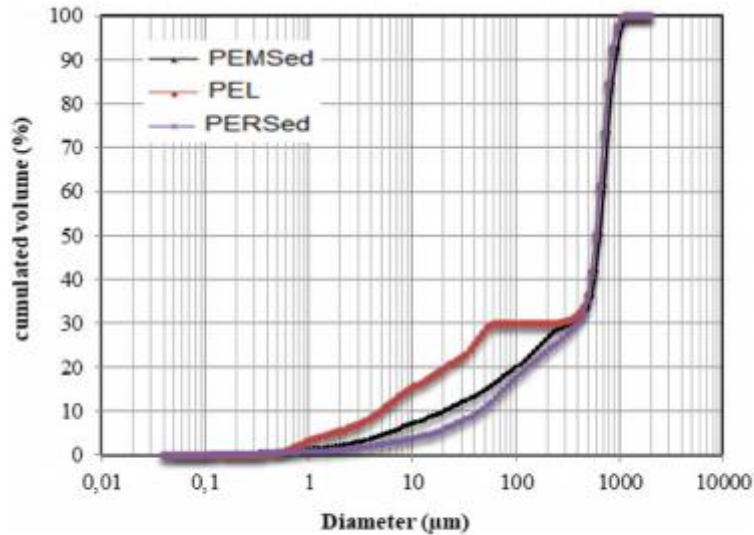


Fig. 5 Particle size distribution of the mixture

We note that the water absorption percentage of the formulation (PEL) is 0.18%, whereas the water absorption percentage of the formulation (PEMSed) is 0.39%, and the percentage formulation water absorption (PERSed) equal to 0.5%. The sediments have a relatively high water content (50% to 200%) if the charges had a higher water absorption value that could weaken the bond with the resins [48]. same observation for this result, which are widely acceptable compared to the porosity of ceramic tiles, which is usually greater than 10% [47].

Porosity is closely associated with the accessibility of water in polymer materials [49]. It is noted that the percentage of water absorption decreases when the porosity decreases, the absorption of water may be related to the porosity by a linear relationship of positive slope with a correlation $R^2=0.96$, as in Figure 6.

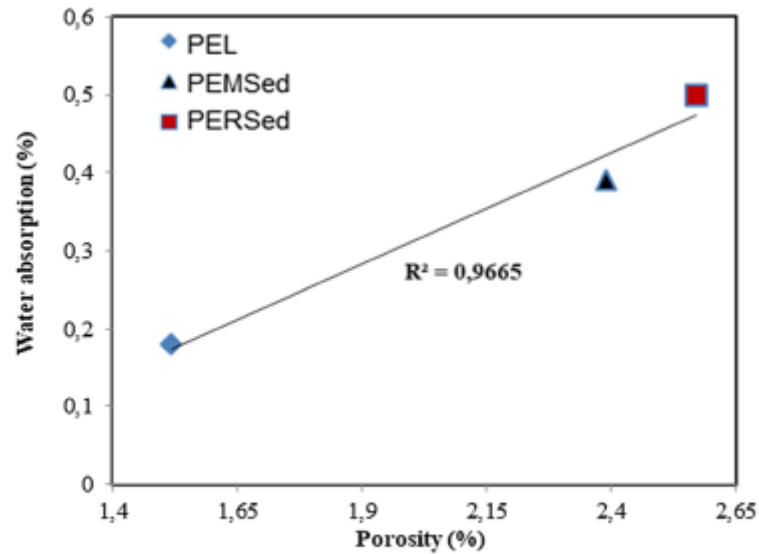


Fig. 6 Relationship between porosity and water absorption

3.1. Mechanical strength

The formulation (PEL) has a good mechanical behavior by comparing the formulations with sediments, the flexural strength for the formulation (PEL) is equal to $R_f = 42$ MPa, for the formulation (PEMSed) $R_f = 29.72$ MPa, and for the formulation (PERSed) the flexural strength is equal to $R_f = 24.3$ MPa.

From these results, a large difference is found between the bending strength of sediment-based tiles and the witness (PEL), the particle size distributions and the specific area of sediments is linked to the mixing packing density. Otherwise, the particle size distribution of sediments causes an increase in the void ratio; the mixture is not homogeneous and causes a deterioration of the mechanical properties. Results were obtained in some previous studies [50], from which it was concluded that higher amounts of finer particles allowed a thicker matrix around coarse aggregates and thus good mechanical strengths. Another study [51] showed that the porosity and the bond between the fillers and the matrix and the resistance are closely related.

From the results of the porosity and the flexural strength, we noticed that the porosity is related to the flexural strength. The flexural strength curve of three formulations is plotted according to their porosity (Figure. 7), it is noted that resistance increases as the porosity decreases. The flexural strength may be related to porosity by a linear relationship of negative slope with a correlation $R^2=0.97$. The bending strength of sediment-based polymer tiles is

higher through addition of ceramic tiles [47]. Moreover, SEM observations of mixtures presented in Figure 8 show that more porosity in the mortar that contains the sediments.

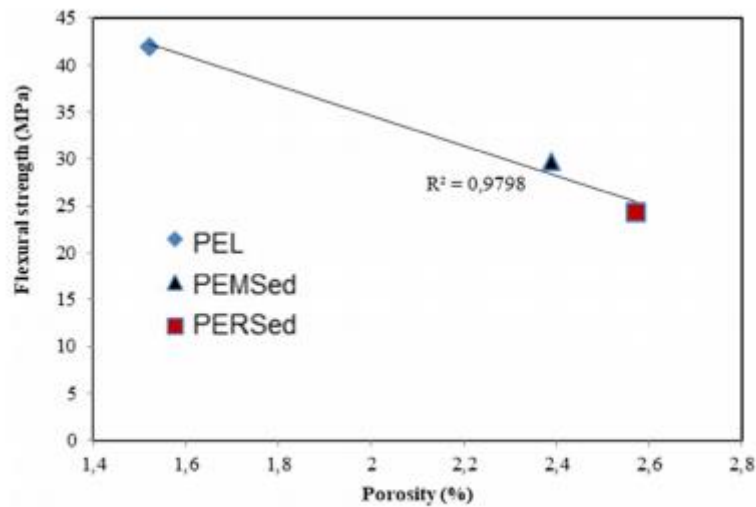


Fig. 7 Relationship between porosity and flexural strength

3.2. Thermal expansion and the thermal shock resistance

The coefficient of linear thermal expansion of the formulation (PEL) is equal to $34.5 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ the coefficient of linear thermal expansion of the formulation (PERsed) is equal to $47.6 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$, finally the coefficient of linear thermal expansion formulation (PEMSed) is equal at $12.6 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$ Comparing to the linear thermal expansion coefficient of the concrete $10 \times 10^{-6} \text{ K}^{-1}$, it is found that the coefficient of linear thermal expansion for three formulations is greater. Among the disadvantages of polymer concretes these are their behaviour at high temperatures and during fires.

For thermal shock resistance test, after 10 thermal shock cycles, no cracking or deformation or change in the three formulations was detected.

3.3. Durability

The exposure of the three formulations to the acid and base solutions for 2 h, the test pieces are then examined, the judgment is made visually; there is a slight change of colour and no change in the mass. These results can be explained by the high resistance of polymer concretes to chemical attack [52, 53].

The volume of material removed by deep abrasion for the formulation (PEL) is 143 mm³ and for the formulations (PERsed) and (PEMSed) are 170 mm³ and 204 mm³, respectively; we

note that the volume of material removed for the formulations based on sediment is higher than the volume of material removed for the formulation (PEL). This difference can be explained by the bonding of the sediment charges with the matrix.

3.4. Chemical characteristics

The use of construction materials containing waste requires an investigation of their environmental impact, in particular with regard to their end-of-life cycle, where they will be stored in a specific waste storage facility. Table 9 shows the average values of a leaching test.

From the results of the table 9 it is noted that the thresholds of the ions of the formulation (PEL) are lower than the thresholds of the inert waste and the thresholds of the formulations (PEMSed) and (PERsed) are exceeded (the values of Fluoride, chloride, and sulphate) the thresholds of the inert waste, and the sediments studied were classified as non-inert waste. It is noted that the ions concentrations of the (PEMSed) and (PERsed) formulations are decreased compared to the raw sediment; these results are explained by the fact that the resin covers the sediment particles. Indeed, Jiapei Due and [54] showed that the resin stabilizes the dangerous elements.

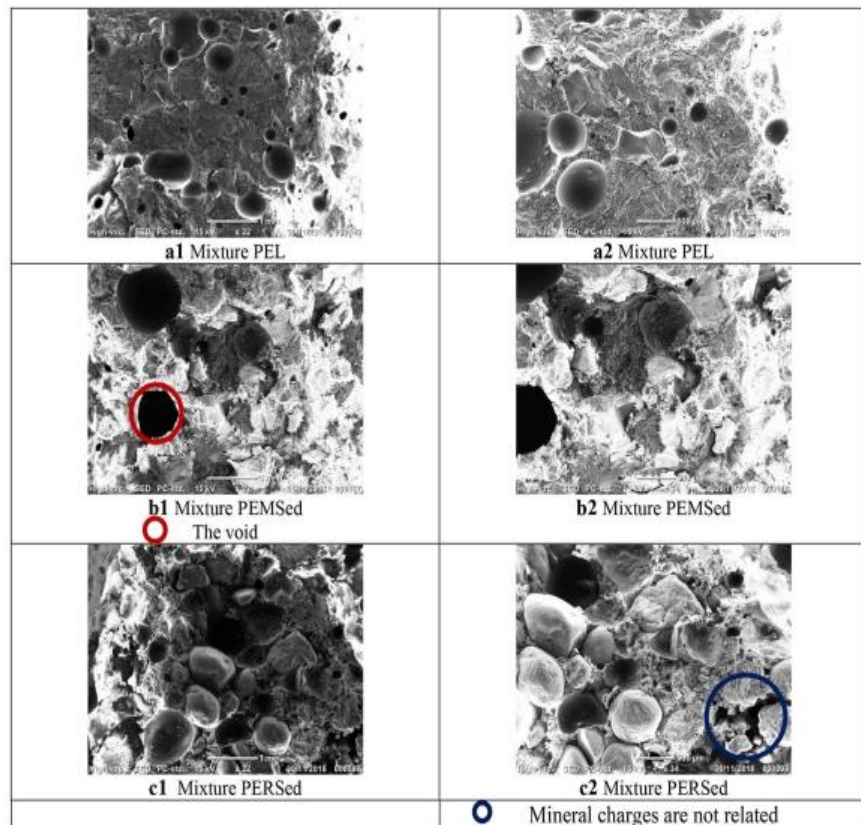
Table 9 Results of the leaching test contaminant concentrations in leachate of crushed concrete polymer according the European standards NF EN 12457-2

Parameters	PEL	PEMSed	PERsed	Classification of solid waste		
				Inert	Non hazardous	Hazardous
As (mg/kg)	0.02	0.05	0.02	0.5	2	25
Ba (mg/kg)	3	1.1	0.81	20	100	300
Cd (mg/kg)	0.0075	0.0075	0.016	0.04	1	5
Cr (mg/kg)	0.016	0.017	0.018	0.5	10	70
Cu (mg/kg)	0.025	0.48	0.025	2	50	100
Mo (mg/kg)	0.05	0.05	0.05	0.5	10	30
Ni (mg/kg)	0.017	0.060	0.043	0.4	10	40
Pb (mg/kg)	0.05	0.05	0.05	0.5	10	50
Sb (mg/kg)	0.05	0.05	0.05	0.06	0.7	5
Se (mg/kg)	0.05	0.05	0.05	0.1	0.5	7
Zn (mg/kg)	0.051	0.16	0.16	4	50	200
Fluoride (mg/kg)	8	24	19	10	150	500
Chloride (mg/kg)	14	331	2690	200	15,000	25,000
Sulphate (mg/kg)	13	348	1630	1000	20,000	50,000
Soluble fraction (mg/kg)	2600	4800	3950	4000	60,000	50,000
pH	7.1	8.4	7.6			

3.5. SEM Observation

Scanning Electron Microscopic (SEM) was performed observations have been performed on the different hardened mixtures. Figure 8 are related to the studied mixtures. The analysis of scanning electron microscope (SEM) shows that the voids between the aggregates and the matrix are clearly influenced by the replacement of sand by sediments; which are opposed to the control mixture. This void is probably due to the adherence between the polymeric matrix and the mineral charge. It can also be due to the presence of organic matter in the sediments, which prevents the bond of the matrix with the mineral charge.

Fig. 8 Scanning electron microscope (SEM) photograph from the fracture surface of different mixtures



4. CONCLUSION

The main objective of this study was to identify the essential parameters for designed polymers concrete based on the large fraction of contaminated sediments. Results obtained highlight a potential for the use of dredged marine sediments on the polymers concrete, for roof tiles according to UPEC specifications.

From this study, we can conclude that:

To attain their best behaviors, the percentages of the mixtures constituents of polymers concretes can be perfectly optimized using the packing density model.

The polymers concretes based on sediments have the same basic technical, physical and chemical characteristics as the reference formula.

The thresholds of the ions in the raw sediments decrease after the addition of resin, this is partly due to the polymer matrix which encapsulates the sediments particles and stabilized the chemical compounds present in the sediments.

According to the UPEC specifications our formulations at the base of the sediment corresponds to the code (U4P3E3C2) [55], which means that these formulations can be used for terraces.

Acknowledgments

This project was initiated in the Haut de France Region, collaboration IMT LILLE DOUAI and the company Neo Eco Recycling. This project is financed by European funds FEDER.

References

- [1] Maherzi W, Benzerzour M, Mamindy-Pajany Y, et al. Beneficial reuse of Brest-Harbor (France)-dredged sediment as alternative material in road building: laboratory investigations. *Environ. Tech.* 2018. 39:566-580
- [2] Brakni S, Abriak NE, Hequette A. Formulation of artificial aggregates from dredged harbour sediments for coastline stabilization. *Environ Tech.* 2009;30:849–854.
- [3] Achour R, Abriak N-E, Zentar R, et al. Valorization of unauthorized sea disposal dredged sediments as a road foundation material. *Environ Tech.* 1997–2007.
- [4] Millarath K, Kozlova S, Shimanovich S, Meyer C. beneficial use of dredged material 2. Columbia University in the city of New York, Department of civil engineering mechanics; second progress report 2001.
- [5] Rodella N, Bosio A, Dalipi R, et al. Waste silica sources as heavy metal stabilizers for municipal solid waste incineration fly ash. *ARAB J CHEM.* 2017; 10:S3676–S3681.
- [6] Achour R, Abriak N-E, Zentar R, et al. Valorization of unauthorized sea disposal dredged sediments as a road foundation material. *Environ Tech.* 2014; 35:1997–2007.
- [7] Walker R, Pavía S. Physical properties and reactivity of pozzolans, and their influence on the properties of lime–pozzolan pastes. *Mater Struct.* 2011; 44:1139–1150.
- [8] Lynn CJ, Dhir RK, Ghataora GS, et al. Sewage sludge ash characteristics and potential for use in concrete. *Construct Build Mater.* 2015 98:767–779.
- [9] Gastaldini ALG, Hengen MF, Gastaldini MCC, et al. The use of water treatment plant sludge ash as a mineral addition. *Construct Build Mater.* 2015; 94:513–520.
- [10] Rozière E, Samara M, Loukili A, et al. Valorisation of sediments in self-consolidating concrete: Mix-design and microstructure. *Construct Build Mater.* 2015; 81:1–10.
- [11] BENKADDOUR M, AOUAL FK, SEMCHA A. Durabilité des mortiers à base de pouzzolane naturelle et de pouzzolane artificielle. *Nat Tech J.* 41 (2009)63–73
- [12] Benzerzour M, Amar M, Abriak N-E. New experimental approach of the reuse of dredged sediments in a cement matrix by physical and heat treatment. *Construct Build Mater.* 2017; 140:432–444.
- [13] Dang TA, Kamali-Bernard S, Prince WA. Design of new blended cement based on marine dredged sediment. *Construct Build Mater.* 2013;41:602–611.
- [14] Rozière et al. Valorisation of sediments in self-consolidating concrete. *Construct Build Mater.* 2015

- [15] Gastaldini ALG, da Silva MP, Zamberlan FB, et al. Total shrinkage, chloride penetration, and compressive strength of concretes that contain clear-colored rice husk ash. *Construct Build Mater.* 2014;54:369–377.
- [16] Tironi A, Trezza MA, Scian AN, et al. Assessment of pozzolanic activity of different calcined clays. *Cement Concr Compos.* 2013;37:319–327.
- [17] Mebarkia S, Vipulanandan C. Mechanical Properties and Water Diffusion in Polyester Polymer Concrete. *J Eng Mech.* 1995;121:1359–1365.
- [18] Heidari-Rarani M, Aliha MRM, Shokrieh MM, et al. Mechanical durability of an optimized polymer concrete under various thermal cyclic loadings – An experimental study. *Construct Build Mater.* 2014;64:308–315.
- [19] Elalaoui O, Ghorbel E, Mignot V, et al. Mechanical and physical properties of epoxy polymer concrete after exposure to temperatures up to 250°C. *Construct Build Mater.* 2012;27:415–424.
- [20] Ribeiro MCS, Tavares CML, Ferreira AJM. Chemical Resistance of Epoxy and Polyester Polymer Concrete to Acids and Salts. *J Polymer Eng.* 2002; 22.
- [21] Kou S-C, Poon C-S. A novel polymer concrete made with recycled glass aggregates, fly ash and metakaolin. *Construct Build Mater.* 2013; 41:146–151.
- [22] Rebeiz KS, Serhal SP, Craft AP. Properties of Polymer Concrete Using Fly Ash. *J Mater. Civ. Eng.* 2004; 16:15–19.
- [23] Benzannache N, Bezazi A, Bouchelaghem H, et al. Statistical Analysis of 3-Point Bending Properties of Polymer Concretes Made From Marble Powder Waste, Sand Grains, and Polyester Resin. *Mech. Compos. Mater.* 2018; 53:781–790.
- [24] Bărbuță M, Țăranu, N, Harja M. Wastes used in obtaining polymer composite. *Environ Engi. Mana. J.* September/October 2009, Vol. 8, No.5, 1145-1150
- [25] Nóvoa PJRO, Ribeiro MCS, Ferreira AJM. Mechanical Behavior of Cork-Modified Polymer Concrete. *Mater Sci Forum.* 2004; 455–456:805–809.
- [26] Ribeiro MCS, Nóvoa PJRO, Marques AT, Ferreira AJM. Mechanical characterization of lightweight wood modified polymer concrete. *Revista SPM.* 2004
- [27] Lee BI, Burnett L, Miller T, et al. Tyre rubber/cement matrix composites. *J Mater Sci Lett.* 1993; 12:967–968.
- [28] Du J, Bu Y, Guo S, et al. Effects of epoxy resin on ground-granulated blast furnace slag stabilized marine sediments. *RSC Advances.* 2017; 7:36460–36472.

- [29] Association Française de Normalisation (AFNOR). Tests for mechanical and physical properties of aggregates part 7: determination of the particle density of filler — pycnometer method AFNOR; 2008. Standard No. NF EN 1097-7. Juin 2008.
- [30] Association Française de Normalisation (AFNOR). fine ceramics (advanced ceramics, advanced technical ceramics) determination of specific surface area of ceramic powders by gas adsorption using the BET method afnor; 2006. Standard No. NF EN ISO 18757
- [31] Association Française de Normalisation (AFNOR). Soils: investigation and testing — Determination of the organic matter content - Ignition method AFNOR; 1998. Standard No. XP P 94-047
- [32] Association Française de Normalisation (AFNOR). soils : investigation and testing - measuring of the methylene blue adsorption capacity of a rocky soil - determination of the methylene blue of a soil by means of the stain test. AFNOR; 1998. Standard No. NF P 94-068
- [33] T.N. Thanh, Valorisation de sédiments marins et fluviaux en technique routière, Ph.D. diss., Ecole des Mines de Douai, 2009 (In French).
- [34] Association Française de Normalisation (AFNOR). Leaching – compliance test for leaching of granular waste materials and sludges – Part 2: One stage batch test at a liquid to solid ratio of 10 l/kg for materials with particle size below 4 mm (without or with size reduction). Brussels: AFNOR; 2013. Standard No. EN 12457-2:2002.
- [35] BERNIER G. Formulation des bétons. 2004;31. Available from: [HTTPS://www.techniques-ingenieur.fr/base-documentaire/construction-et-travaux-publics-th3/les-betons-dans-la-construction-42221210/formulation-des-betons-C2210/](https://www.techniques-ingenieur.fr/base-documentaire/construction-et-travaux-publics-th3/les-betons-dans-la-construction-42221210/formulation-des-betons-C2210/).
- [36] Association Française de Normalisation (AFNOR). Methods of testing cement - part 3: determination of setting times and soundness afnor; 2017. Standard No. NF EN 196-3
- [37] Lecomte A, UMR L. indice de serrage des pâtes de consistance normale. Septième Edition des journées scientifique du regroupement francophone pour la recherche et la formation dans le domaine du béton, TOULOUSE, FRANCE, 2006
- [38] Essai de compacité des fractions granulaires à la fi à secousses: mode opératoire. Paris: Laboratoire central des ponts et chaussées; 2004.
- [39] Association Française de Normalisation (AFNOR). Tests for mechanical and physical properties of aggregates part 6: determination of particle density and water absorption AFNOR; 2014. Standard No. NF EN 1097-6

- [40] Lokuge W, Aravinthan T. Effect of fly ash on the behaviour of polymer concrete with different types of resin. *Mater Des.* 2013; 51:175–181.
- [41] Association Française de Normalisation (AFNOR). CERAMIC TILES—PART 4: determination of modulus of rupture and breaking strength. AFNOR; 2014. Standard No. NF EN ISO 10545-4
- [42] Association Française de Normalisation (AFNOR). CERAMIC TILES—PART 8: determination of linear thermal expansion AFNOR; 2014. Standard No. NF EN ISO 10545-8
- [43] Association Française de Normalisation (AFNOR). CERAMIC TILES—PART 9: Determination of resistance to thermal shock. AFNOR; 2014. Standard No. NF EN ISO 10545-9
- [44] Association Française de Normalisation (AFNOR). CERAMIC TILES—PART 13: Determination of chemical resistance. AFNOR; 2014. Standard No. NF EN ISO 10545-13
- [45] Association Française de Normalisation (AFNOR). PART 6: Determination of resistance to deep abrasion for unglazed tiles. AFNOR; 2014. Standard No. NF EN ISO 10545-6
- [46] Association Française de Normalisation (AFNOR). Leaching – Compliance test for leaching of granular waste materials and sludges – Part 2: One stage batch test at a liquid to solid ratio of 10 l/kg for materials with particle size below 4 mm (without or with size reduction). Brussels: AFNOR; 2013. Standard No. EN 12457-2:2002
- [47] Scribot C, Maherzi W, Benzerzour M, Mamindy-Pajany Y, Abriak N-E. A laboratory-scale experimental investigation on the reuse of a modified red mud in ceramic materials production. *Construct Build Mater.* 2018
- [48] Yeon K-S, Choi Y-S, Hyun S-H. Properties of Recycled Polymer Concrete Using Crushed Polymer Concrete as an Aggregate. The 2nd international conference on SM&T; 2010; Ancona, Italy. Università politecnica delle marche; PP. 1299–1308
- [49] Haidar M, Ghorbel E, Toutanji H. Optimization of the formulation of micro-polymer concretes. *Construct Build Mater.* 2011; 25:1632–1644.
- [50] Sung C-Y, Kim Y-I. Void ratio and durability properties of porous polymer concrete using recycled aggregate with binder contents for permeability pavement. *J Appl Polymer Sci.* 2012;126:E338–E348.
- [51] Tomas San-Jos J, Mechanical Properties in Resin Polyester Concrete Application to Reinforced Beams. *Sci Eng Compos Mater* 13, 271-282. 2006.

- [52] Ghorbel E, Haidar M. Durability to Chemical Attack by Acids of Epoxy Microconcretes by Comparison to Cementitious Ones. *Adv Civ Eng*. 2016; 2016:1–15.
- [53] Ribeiro M.C.S., Tavares C.M.L, Ferreira A.J.M. chemical resistance of epoxy and polyester polymer concrete to acids. *J Appl Polymer Sci*. 2002; Vol. 22, No. 1, 2002
- [54] Du J, Bu Y, Guo S, et al. Effects of epoxy resin on ground-granulated blast furnace slag stabilized marine sediments. *RSC Advances*. 2017; 7:36460–36472.
- [55] Commission chargé de formuler des avis techniques. Notice sur le classement UPEC et Classement UPEC des locaux. 2004; Available from: <http://evaluation.cstb.fr/doc/classement/upec/cahier-3782.pdf>

CHAPITRE III : FORMULATION DE COMPOSITES THERMOPLASTIQUES À BASE DE SÉDIMENTS

Sommaire

III.1 Introduction

III.2 Démarche expérimentale

III.3 Résultats de caractérisation des mortiers

III.4 Conclusion

III.5 “Production and performance of lightweight aggregates based on blended of sediments and recycled thermoplastic waste. Article soumis le 29 octobre journal dans “Construction and Building MATERIALS“

III.1 Introduction

Dans ce chapitre nous présentons les résultats de valorisation des sédiments de dragage dans des matrices thermoplastiques recyclées. Deux types de matrices thermoplastiques ont été utilisés pour la formulation de mortiers polymères: la première résine mixte à base de 50% polypropylène (PP) + 50%polyéthylène (PE) et la deuxième résine mixte issue de mélange de 50% de polyéthylène (PE) et 50% de polystyrène (PS). Les matériaux formulés ont été utilisés entant que granulats légers pour la formulation de mortiers. Les résultats obtenus avec les deux types de résines sont présentés dans l'article suivant.

Les résultats obtenus montrent la faisabilité technique et environnementale de la valorisation des sédiments de dragage dans les polymères thermodurcissables, avec un taux d'incorporation massique des sédiments égal à 70%. En effet, d'après les évaluations physicomécaniques et chimiques des granulats légers à base de sédiments et de déchets de plastiques, il s'avère que ces derniers sont conformes au cahier des charges établi par la norme EN 13055. Par ailleurs, leur utilisation dans des formulations de mortiers en substitution du sable naturel a permis également de montrer la faisabilité technique de cette application.

III.2 Démarche expérimentale

En premier lieu une étude de faisabilité technique de valoriser les sédiments marins du grand port maritime de Dunkerque et des déchets thermoplastiques, a été menée. Pour ce faire, il a été choisi deux types de déchets thermoplastiques : une première résine mixte à base de 50% polypropylène (PP) + 50% polyéthylène (PE) et une deuxième résine mixte issue de mélange de 50% de polypropylène (PP) et 50% de polystyrène (PS). La production d'agrégats légers a été réalisée par extrudeuses à double vis co-rotatives, à des températures de mélange comprises entre 200 et 230 °C. L'extrusion et la technique de fabrication en continu comprennent respectivement le transport, la fusion, le malaxage, le laminage et la compression du matériau thermoplastique entre les vis de l'extrudeuse. Ensuite, le matériau plastifié est pressé pour façonner le profil, avant d'être coupé en petites particules. Les taux massiques de la résine thermoplastiques et des sédiments utilisés étaient de 30 et 70%, respectivement.

Les essais de caractérisation des granulats légers ont été réalisés selon la norme EN 13055 : granulats légers pour bétons et mortiers.

En deuxième lieu les granulats légers ainsi formulés ont été utilisés dans la formulation de mortiers à matrice cimentaire. Les pourcentages de granulats légers et de sable ont été obtenus suite à l'optimisation du squelette granulaire à l'aide du modèle d'empilement compressible. Les pourcentages de ces derniers étaient de 30% pour les granulats légers et 70% pour le sable de la masse du squelette granulaire. Afin d'évaluer l'impact du volume de la pâte cimentaire sur les performances des mortiers formulés, les dosages en ciment ont été fixés à 300 et 400 kg/m³. Les mortiers ainsi formulés ont été caractérisés vis-à-vis des résistances à la flexion trois point et à la compression simple, le module de rigidité, la densité et l'absorption d'eau. La figure ci-dessous présente une synthèse de la démarche suivie dans ce chapitre III.

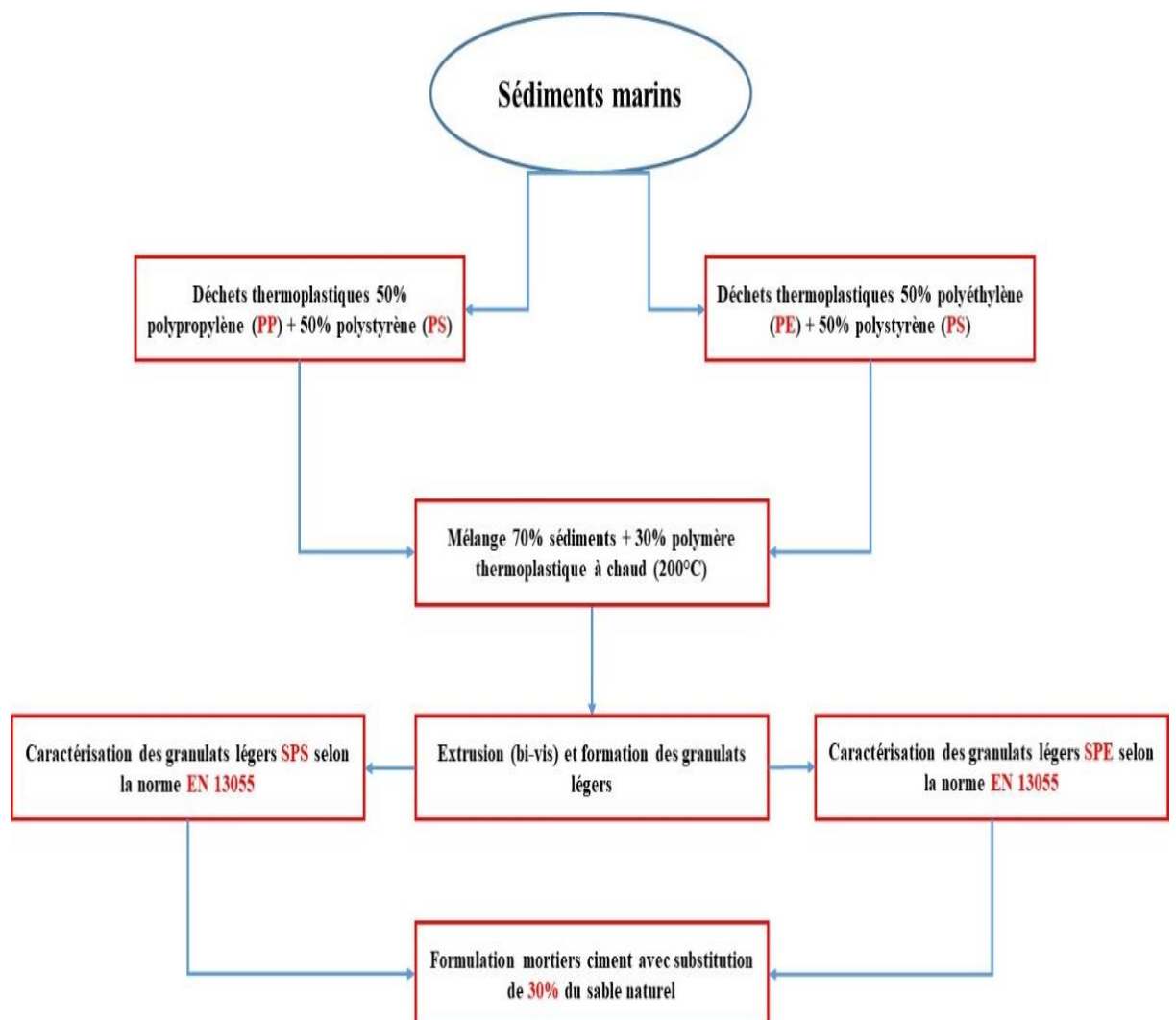


Figure 35 Synthèse de la démarche expérimentale de l'étude

III.3 Résultats de caractérisation des mortiers de polymères à base de sédiments

Suite à la caractérisation des granulats légers à bases de sédiments et polymères thermoplastiques, les principaux résultats de la démarche de valorisation sont résumés dans ce qui suit :

- **Concernant les granulats légers :**

Les caractéristiques physicomécaniques des granulats formulés sont présentées dans le tableau ci-dessous :

Tableau 12 Les caractéristiques physicomécaniques des granulats

Formulation	SPE	SPS
Absorption d'eau %	5,72	7,20
Masse volumique en vrac (Mg/m^3)	0,932	0,898
Masse volumique apparente (Mg/m^3)	1,34	1,43
Masse volumique réelle (Mg/m^3)	1,24	1,30
Résistance à l'écrasement en vrac (N/mm^2)	5,5	3,75
Coefficient Micro Duval humide M_{dE} (%)	1,52	4,49

D'après ces résultats les caractéristiques granulats légers à base de sédiments marins et de polymères thermoplastiques sont meilleures que celles des granulats standards (argiles expansées). A titre d'exemple, la porosité des granulats légers formulés est de 5,72% (SPE) et de 7.20% (SPS), sachant que la porosité des granulats légers à base d'argile expansée est de l'ordre de 20%. Il est a noté également, que les granulats légers SPS présentent les meilleurs caractéristiques comparés aux granulats légers SPE.

- **Concernant les mortiers à base des granulats légers :**

Les résultats de caractérisation des mortiers à base de granulats légers pour les deux dosages en ciment (300 et 400 Mg/m^3) montrent une amélioration de la porosité accessible à l'eau en comparaison avec les mortiers sans les granulats légers. Cependant on enregistre une baisse des résistances mécaniques de l'ordre de 15 à 30% pour les mortiers contenant les granulats légers en comparaison avec les mortiers sans granulats légers. Ceci peut être expliqué en partie par la faible adhérence entre les granulats légers et la matrice cimentaire, du principalement à l'état de surface lisse des granulats légers. En effet, lors des essais mécaniques on a constaté que la rupture des échantillons de mortiers ce fait principalement

par déchaussement aux niveaux des granulats légers. Par ailleurs, on a constaté une ségrégation des granulats pour les mortiers dosés à 400Mg/m³.

III.4 Conclusion

Dans ce chapitre on s'est intéressé à la faisabilité d'introduire des sédiments de dragage dans une matrice polymère thermoplastique. L'originalité de ce travail réside dans la mise en place de granulats légers avec une composition issue à 100% de déchets ou matériaux recyclés (70% de sédiments et 30% de déchets de polymères thermoplastiques). Il a été démontré que ces granulats présentent des propriétés physicomécaniques et chimiques acceptables pour être utilisés comme granulats légers pour mortier ou béton. Ce travail a également permis de mettre en évidence les performances physicomécaniques de ces granulats comparés avec les caractéristiques des granulats légers standards (à base d'argiles expansés, par exemple). En effet ces derniers sont caractérisés par leur faible porosité ouverte et leur bonne tenue mécanique. Par ailleurs, les mortiers produits avec ces agrégats présentent résistances mécaniques suffisantes pour des applications dans le domaine du génie civil et une perméabilité à l'eau inférieure à celles des mortiers de contrôle. Ceci ouvre de nouvelles perspectives pour l'émergence d'une nouvelle filière de valorisation et de gestion des déchets que ce soit issues des travaux d'entretien des voies navigables ou des déchets de plastiques.

III.5 “Production and performance of lightweight aggregates based on blended of sediments and recycled thermoplastic waste. Article soumis le 29 octobre dans le journal “Construction and Building MATERIALS“

Production and performance of lightweight aggregates based on blended of sediments and recycled thermoplastic waste

Abstract

The management of dredging sediments and plastic waste is of increasing environmental, societal, and economic importance. To address this, we produced lightweight aggregates composed of 70% sediment based mineral filler and 30% thermoplastic waste containing polypropylene, polyethylene, and polystyrene. When tested, the aggregates satisfied the requirements of the European Standard EN 13055-1 for lightweight aggregates and exhibited good mechanical properties and low water absorption compared to natural aggregates. Based on these results, the formulated lightweight aggregates were found to be suitable for use as a partial replacement for up to 30% of the natural sand in mortar formulations.

Keywords: Waste management, lightweight aggregates, sediment, thermoplastic, packing density model

1. Introduction

Dredged sediments are effectively waste by-products, which raises the problem of their storage, treatment and deposit at sea. To illustrate the magnitude of the problem, about 50 million m³ of sediment is dredged annually in France [1] and these large quantities have both economic and environmental impacts. For example, as a result of industrial and agricultural activity, organic (e.g. polycyclic aromatic hydrocarbon (PAH), tributyltin (TBT), etc.) and/or inorganic (trace metals) contaminants have been identified in sediment matrices. Dredged sediments are problematic because their handling must comply with existing regulations, account for the scientific profile of the sediment (characterization, evaluation), and satisfy the corresponding socioeconomic expectations [2]. With this in mind, researchers are exploring possible applications in several sectors, including road construction as a base layer or subgrade [3,4], brick manufacturing [5], landscaping developments [6], construction as cement substitute materials and/or sand in concrete [7,8,9], and in the manufacturing of lightweight aggregates [10].

Plastics have become essential materials in various strategic sectors, such as packaging, building and construction, transport, and renewable energies. In 2016, the amount of plastic produced in the world reached 335 million tons, of which 60 million tons were produced in Europe. To date, most plastic waste is sent to landfills or discharged into the oceans; however, that approach is not a viable long term solution as the time required for the plastic waste to degrade in the environment is between 100 and 1000 years, although degradation rates vary widely between landfills and terrestrial and marine environments [12]. Regardless, the effects of pollution are felt over long periods of time.

Recycling is one of several waste management strategies. From 2006 to 2016, the volume of plastic waste collected for recycling increased by 79% and landfills decreased by 43%. In 2016, more than 8.4 million tons of plastic waste was collected for recycling inside and outside the EU [11], and in that same year, more plastic waste was recycled than landfilled.

A total of 80 million tons of aggregates are consumed every year in France for the construction of buildings (20%) and 320 million tons per year are used for public works (80%), which adds up to 400 million tons per year. In other words, 7 tons of aggregates are consumed per inhabitant per year, the equivalent of 20 kg per day, of which 130 million tons (30%) are used to make concrete. Every day, more than 1 million tons of aggregates must be

produced to satisfy development demands. However, the natural raw materials normally used for producing aggregates are being depleted, and society is becoming increasingly concerned about the environmental impact of extracting natural raw materials for these purposes. Thus, interest is growing in the possibility of using sediment and plastic waste to produce artificial aggregates.

Several research studies have demonstrated the use of plastic waste as a substitute for conventional aggregates in the field of civil engineering, such as the use of recycled plastic in the manufacture of lightweight aggregates. Alqahtani et al. [13] developed new plastic based aggregates, and showed that they could replace natural aggregates in concrete. In another study Alqahtani et al. [14], have produced aggregates by heat treating plastic and fly ash. Otherwise, Liu et al. [15] showed it was possible to manufacture lightweight aggregates by incorporating shredded residual plastics into clay. Other studies have focused on replacing natural aggregates with plastic waste in manufactured concrete [16,17,18,25,26]. Several researches were interested [37,38] on the use of thermally modified plastics as aggregates in pellet form. And also, some research work and patents have described methods of exploiting plastic using thermal [19,20,21], chemical [22,23], and/or mechanical [24] means. Finally, Alqahtani et al. [13] used a thermoplastic matrix (linear low density polyethylene) that incorporated fillers: sand, quarry fines, red sand / dunes, fly ash, to produce lightweight aggregates.

In this study, we combined dredged sediment and plastic waste to form lightweight aggregates. The produced material is a composite of a thermoplastic polymer matrix and a mineral filler, which is dredging sediment. Regarding the method of manufacturing artificial aggregates, we were inspired by literature cited above and we selected the thermal approach involving a thermal process with a vacuum extruder. The aggregates thus formed have been used as a partial substitution of natural sand for the formulation of mortars.

2. Experimental program

2.1 Materials

The materials used in this study to make the aggregates were dredged marine sediments and a variety of thermoplastic waste: polypropylene (PP), polyethylene (PE), and polystyrene (PS). The marine sediments used in this study were dredged at the Dunkirk Grand Marine Harbour

(GPMD) located in the north of France at GPS coordinates 51° 02'24.8 "N 2° 22'26.0" E. Annually, the Dunkirk port extracts more than 4 million cubic meters of sediment, most of which is deposited on land because of the chemical elements contained therein. For this study, 500 kg of sediment was sampled from a storage area located in Dunkirk where sediments are deposited for settling purposes. The manufacturing requirements for using sediment as a filler in a thermoplastic matrix that will be subjected to the thermal extruder method are that the moisture content must not exceed 8% and the maximum particle size must not exceed 2 mm. To fulfil these requirements, the sediments were dried at 60° for more than 72 h to reduce the water content to 2%, after which they were crushed and sieved to 2 mm. The requirements for using thermoplastics as a binder are that the water content must not exceed 5% and the maximum particle size must not exceed 12 mm. The methods used in the processing and extrusion of the thermoplastic specimens as well as those used for measuring their properties were compliant with the requirements of the ISO 19069-2: 2016 [27], ISO 17855 -2: 2016 [28] and NF EN ISO 2897-2 [29] standards.

2.1.1 Physical characterization of sediments

The Brunauer–Emmett–Teller (BET) surface of the sediment was determined according to standard NF EN ISO 18757 [30] and the particle size of the sediment was determined by wet granulometry using a COULTER LS12330 apparatus. The organic matter was measured via a calcination test at 450 °C according to XP P94-047 [31] and a methylene blue (VBS) absorption test for evaluating the clay activity was conducted in accordance with the French standard NF P 94-068 [32]. Finally, the sediment density was assessed using a Micromeritics AccuPyc 1330 helium pycnometer as per standard NF EN 1097-7 [33]. The geotechnical properties of the sediments are listed in Table 1.

Tableau 13. Physical Characteristics of sediments

Characteristics	Standards	Marine sediments
Density (Kg/m³)	NF EN 1097-7	2600
Methylene blue value (g/100 g of dry matter)	NF P 94-068	0.80
Organic matter content (%)	XP P94-047	5.43
BET Surface (m²/g)	NF EN ISO18757	12.0895

The particle size distribution of the sediment is shown in Figure 1, where it can be seen that the cumulative volume of size class D10 (μm) was 24.61, that of D50 (μm) was 50.22, and that of D90 (μm) was 64.08. In total, these made up more than 50% of the sediment volume.

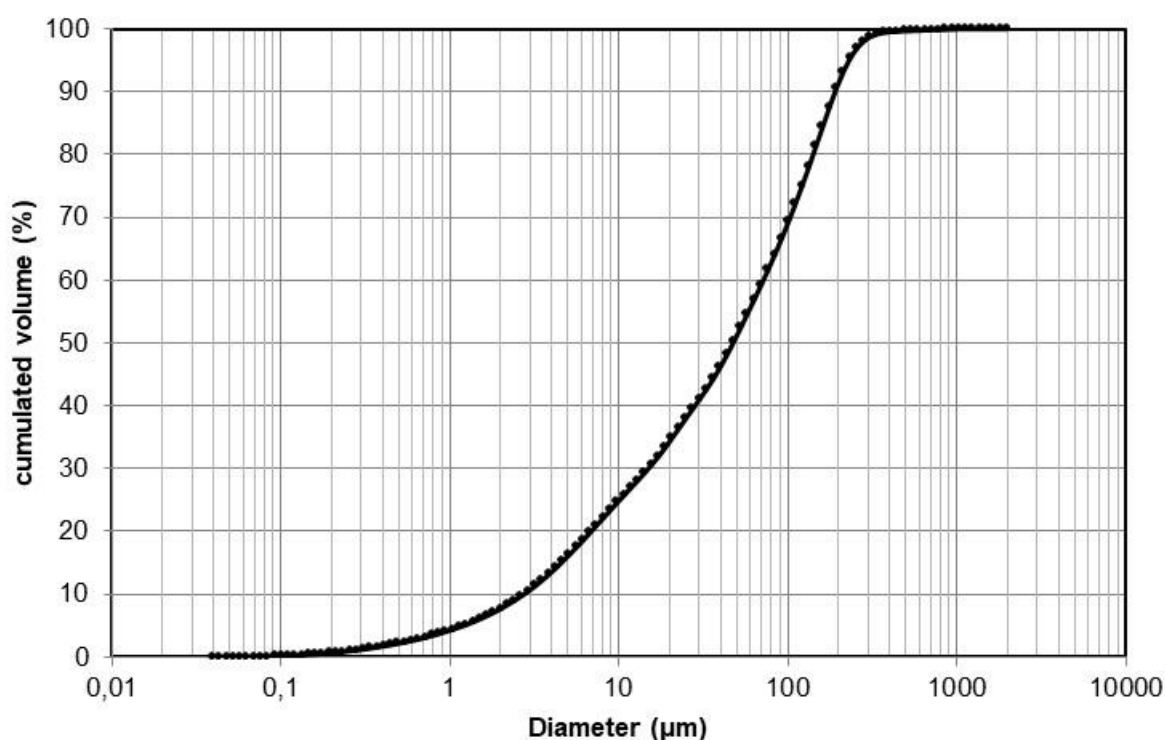


Figure 36. Particle size distribution of sediment

2.1.2 Mineralogical characterization of sediment

Mineralogical X-ray diffraction (XRD) was performed using a Siemens D5000 diffractometer to identify and qualify the mineralogical nature and crystalline phases present. The major phases in the sediments were calcite (CaCO_3) and quartz (SiO_2) and the minor phases were halite (NaCl), pyrite (FeS_2), and some clay like kaolinite and muscovite (Figure 2). The mineralogical phases of the sediments were quantified via an X-ray fluorescence analysis, the results of which were in agreement with the results of the X-Ray Diffraction analysis. Indeed, the results of this analysis found that the major phases were quartz and the oxide of calcium

(Table 2). These results are in agreement with the previous results of studies carried out on marine sediments [6].

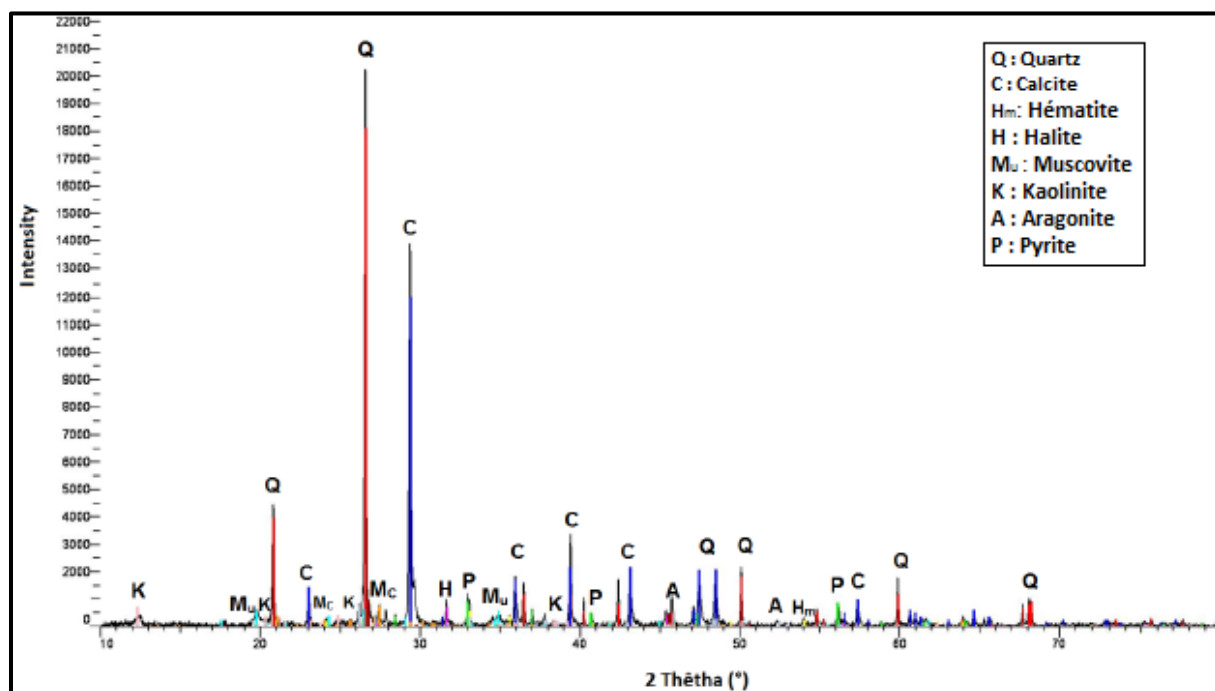


Figure 37. X-Ray Diffraction analysis of raw sediment

Tableau 14. Results of XRF analysis of raw sediments of Dunkirk

Phases	Al ₂ O ₃	CaO	SiO ₂	FeO	MgO	MnO	Na ₂ O	P ₂ O ₅	SO ₃	TiO ₂	Cl
Concentration (%)	9,64	20,99	35,51	7,08	2,49	0,13	1,48	0,46	4,49	0,5	0,9

2.1.3 Chemical analysis of sediments

Leaching tests were conducted in accordance with European Standard EN 12457-2: Characterization Of Waste - Leaching; Compliance Test For Leaching Of Granular Waste Materials And Sludges [34]. The purpose of these tests was to assess the environmental quality of dredged sediments and their re-use potential as an alternative material in the field of civil engineering. The principle of the test is to mix waste material with a maximum grain size of 4 mm with distilled water. The leaching tests were undertaken with a liquid-to-solid ratio of 10. The samples to which leaching fluid was added were agitated for 24 h under the specified test conditions, then the liquid and solids were separated using filters with a mesh size of 0.45 μ m. The obtained solution was then analysed to determine the concentrations of

the different chemical elements in the water. Finally, the leachate quality threshold from European decision 2003/33/CE (JOCE 16 01, 2003) was applied to the leachates to assess the leachability under mild extraction conditions. It should be noted that the threshold in the European decision was developed to establish the criteria and procedures for the acceptance of waste at landfills.

The results of the leaching tests are listed in Table 3, where it can be seen that the release of trace elements did not fully conform to the solid waste classification thresholds in that the values of molybdenum (Mo), antimony (Sb), fluoride, chloride, and sulphate were higher than the corresponding limit values in the classification threshold of solid waste. In contrast, the sediment was considered to be non-inert and non-hazardous.

Table 15. Results of the leaching test of raw sediments

Paramètres	Raw sediments	Classification of solid waste		
		Inert	Non Hazardous	Hazardous
As	0.04	0.5	2	25
Ba	0.81	20	100	300
Cd	0.016	0.04	1	5
Cr	0.05	0.5	10	70
Cu	0.1	2	50	100
Mo	0.1	0.5	10	30
Ni	0.043	0.4	10	40
Pb	0.07	0.5	10	50
Sb	0.1	0.06	0.7	5
Se	0.1	0.1	0.5	7
Zn	0.16	4	50	200
Fluoride	19	10	150	500
Chloride	12 036.7	800	15 000	25000
Sulfate	5 656.7	1 000	20 000	50000

2.1.4 Mix design

The porosity of materials plays an important role in civil engineering. In this case, the use of sediments in the formulation of composite materials requires the addition of some plastic binder to impart a plastic state to the pulp for extrusion purposes. However, the objective is

often to minimize the porosity so that less binder is required. The relationship between the porosity and packing density can be represented as:

$$n = 1 - C. \quad (1)$$

Calculating the packing density according to [35] requires calculating the relationship between the packing density and water demand of a material, which can be accomplished as follows:

$$C = \frac{1000}{1000 + Mv \frac{Me}{Mp}} \quad (2)$$

where Mv is the density of the sediment (kg/m^3), and Me and Mp are the masses of water and powder, respectively (kg).

The water demand is the amount of additional water needed to obtain needle penetration to a depth of 6 mm. This amount of water provides a normal dough-like consistency and corresponds to the maximum filling density of the material. The measurement of the water demand was measured using a Vicat apparatus according to the procedure specified in Standard NF EN 196-3 [36], and the sediment packing density was found to be 0.66. In terms of the packing density, the porosity between the sediment particles was almost 30%. Two organic binders based on plastic waste were formulated to fill and to bind the particles of sediment; the first of which was a 50:50 mix of polypropylene (PP) and polystyrene (PS) by weight, denoted SPS, while the second was a 50:50 mix of PP and polyethylene (PE) by weight, denoted SPE. The ratios of the components used in the mixtures are listed in Table 4.

Table 4 Composition of the tested formulations

Formulation	SPS	SPE
Ratio of the component	70% sediment and 30% binder (PP and PS mixture)	70% sediment and 30% binder (PP and PE mixture)

2.2 Manufacture of the aggregates

Aggregate production was conducted via co-rotating twin-screw vacuum extruders at mixing temperatures between 200 and 230 °C. The heart of the extruder is the screw, which is driven by a gearbox powered by a motor. Thermoplastic waste and sediments are fed into the

machine through a hopper, as shown in Figure 3. When the screw rotates, the pellets are slowly driven forward and the heat generated by an external heating unit and the friction of the rotating screw inside the tube melts the plastic material. The blended plasticized product is then extruded through a die to shape the continuous profile of the material, which is then granulated in a rotary knife granulator. The extrudate before and after granulation is shown in Figure 4. The output of the granulation stage is aggregates in the cylindrical form.

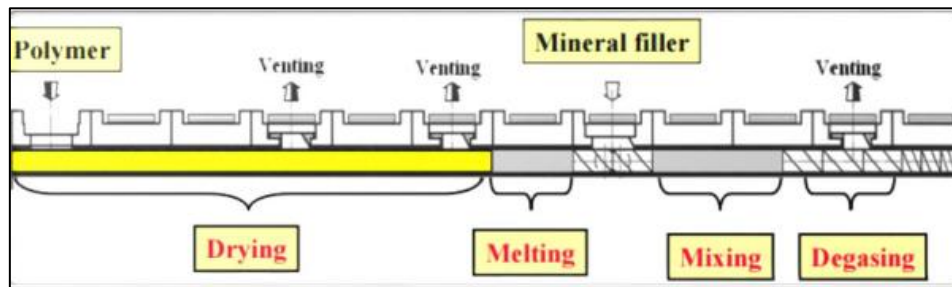


Figure 38. Schematic view of a vacuum extruder

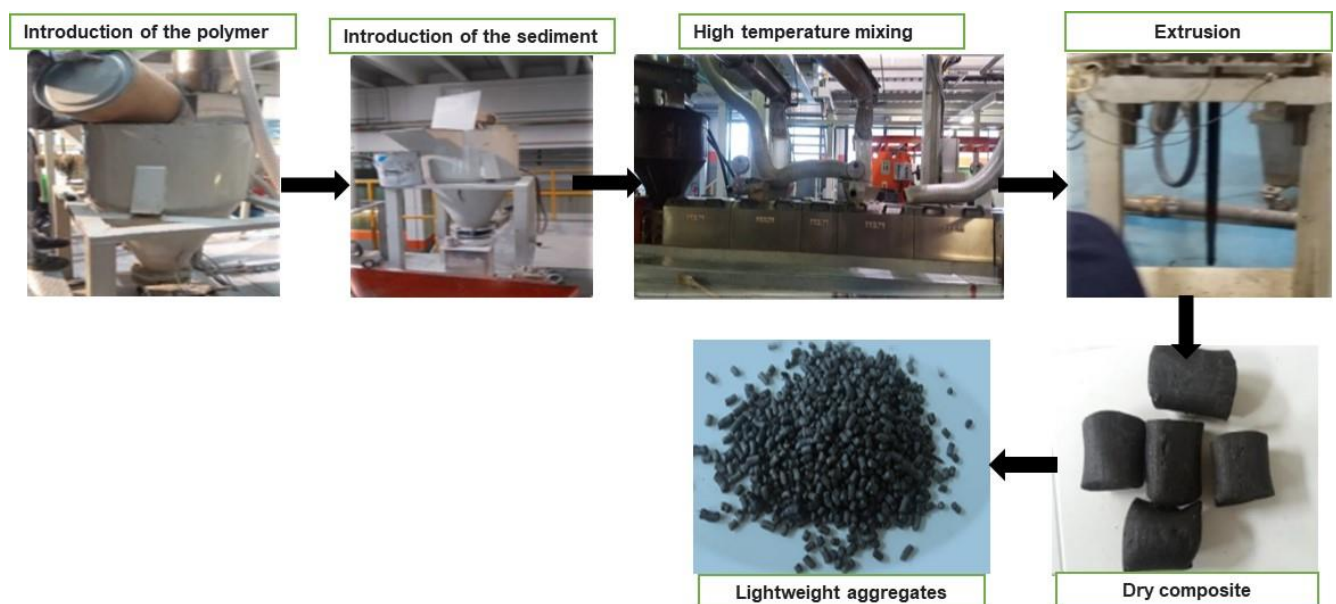


Figure 39. Manufacturing process of lightweight aggregates

2.4 Aggregate quality tests

The physical and mechanical characteristics of the manufactured aggregates were determined according to the European standard, while loose bulk density and voids were determined

according to standard NF EN 1097-3 [39]. The other standards used were NF EN 1097-6 [40] for particle density and water absorption, NF EN 1097-11 [41] for the compressibility and confined compressive strength of lightweight aggregates, NF EN 1097-1 [42] for resistance to wear (Micro-Deval), and European Standard EN 12457-2 [34] for determining the chemical characteristics of manufactured aggregates via a leaching test.

The particle size distribution was determined by the sieving method specified in standard NF EN 933-1 [43]. The particle size distribution of the SPE and SPS aggregates is shown in Figure 5. It should be noted that the D_{max} for the two aggregates was equal to 5 mm and the cumulative volume at 4 mm for the SPE aggregates was 91.9%, which is larger in comparison to that of the SPS aggregates at 40.3%. The cumulative volume for a diameter of 3.15 mm was 10% for the SPE aggregates, which was twice as high as that for the SPS aggregates.

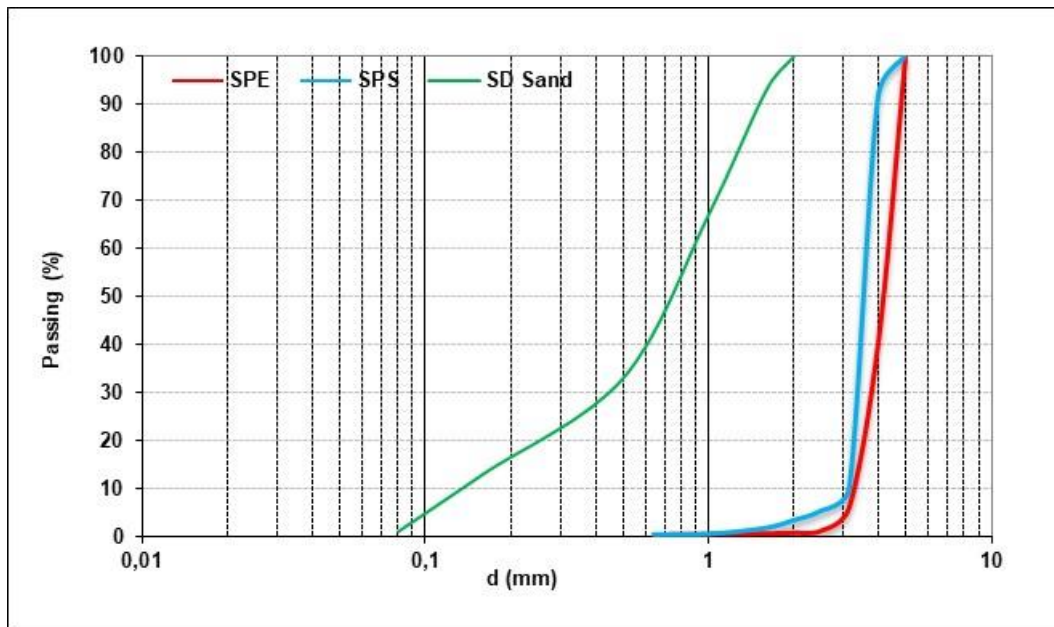


Figure 40. Particle size distribution of lightweight aggregates and standard sand

2.5 Mortar based on lightweight aggregates

2.5.1 Material

2.5.1.1 Cement

The cement employed here was a Portland cement compliant with European Standard EN 197-1 (2012). This cement had an initial setting time of more than 45 min, and after 28 d, the simple compressive strength measured according to EN 196-1 was higher than 52.5 MPa.

2.5.1.1 Sand

The natural sand was as per standard CEN EN 196-1, the largest aggregate of which was less than 2 mm ($D_{max} = 2$ mm). This sand was siliceous in nature and its particle size distribution is shown in Figure 5.

2.6 Mortar mixing proportions

The use of a packing density concept, such as the compressible packing model (CPM), to optimize mixtures of concrete was recommended by the authors of [44]. The packing density of the granular skeleton was calculated using was calculated using the Rene-LCPC software package developed at the Laboratoire des Ponts et Chaussees (LCPC) [45].

In terms of the formulation of the sand and SPE aggregates (Figure 6), the optimal packing density was obtained with between 60 to 80% of sand. In contrast, for the sand and SPS aggregates (Figure 6), the optimal settlement density was achieved with 70 to 90% sand.

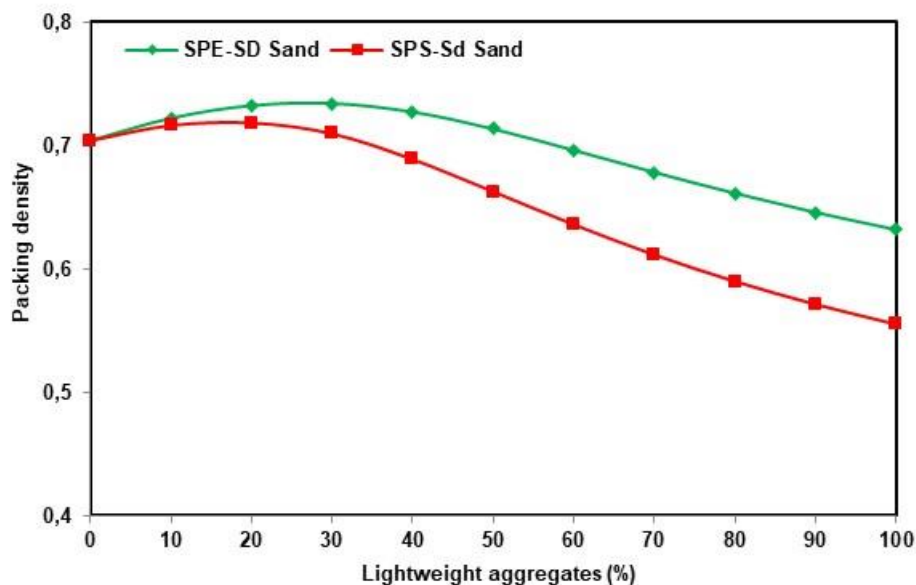


Figure 41. Evolution of the packing density for the mix naturel sand-SPS aggregates.

These results led to two different formulations. The first formulation, denoted MSPE-30%, contained the SPE aggregates and the second, denoted MSPS-30%, contained the SPS aggregates. In both formulations, the aggregates replaced 30% of the volume of sand. The reference mortar (RM) was prepared in accordance with French standard NF EN 196-1 and was composed of one part cement, three parts CEN standard sand, and a half part of water (water-to-cement ratio: $W/C = 0.5$). The mortar formulas are listed in (Table 5) and the total water-to-cement (W/C) ratio was held constant for all the formulas.

Table 5 *Compositions of the mortar mixtures.*

Formulation	RM	MSPE-1-30%	MSPE-2-30%	MSPS-1-30%	MSPS-2-30%
Cement kg/m ³	300	300	400	300	400
Water kg/m ³	150	150	200	150	200
Sand kg/m ³	2006	1531.2	1362.24	1531.2	1362.24
Aggregate kg/m ³	0	223.2	192.2	234	201.5

2.7 Mortar characterization

The properties of the aggregate mortar were evaluated as follows. The dry density of the cured mortar was measured at 28 days of cure in water. The 3-point bending and unconfined compression tests were performed on prismatic specimens according to standard EN 12390-5 and EN 196-1, respectively. The tests were conducted on mortars sample after water curing at 20°C for 7, 28, and 60 days [19]. The porosity of the mortars was studied to determine the influence of the added aggregates on the properties of the porous network. The samples were prepared in accordance with standard NF EN 18-459 [47] and the measurements were taken after saturation under vacuum. The porosity accessible to water was then calculated as:

$$P_w = \frac{M_{air} - M_{dry}}{M_{air} - M_w} * 100, \quad (3)$$

where M_w is the mass of the sample using hydrostatic weighing (g); M_{air} is the mass of the sample using simple weighing on a saturated water sample (g); M_{dry} is the mass of the sample using simple weighing on a dry sample (g); and P_w is the density of the water used for hydrostatic weighing.

3. Results and discussion

3.1 Physical and mechanical characterization

The results of the physical and mechanical characterization of the aggregates produced are listed in Table 6, where it can be seen that the bulk density was equal to 930 kg/m³ and 890 kg/m³ for the SPE granules and SPS aggregates, respectively. The real density was equal to 1240 and 1300 kg/m³ for the SPE and SPS aggregates, respectively. In comparison to the results of several previous studies [13,46,47,48], the density values of the SPE and SPS aggregates were higher than those of raw plastic aggregates, which was due to the incorporation of sediment into the plastic matrix. Despite this, and based on the data in Table 6, SPE and SPS aggregates can be considered as lightweight aggregates.

Table 16. Physical and mechanical characterization of manufactured aggregates

Formulation	SPE	SPS
Water absorption (%)	5.72	7.2
Bulk density (Mg/m³)	0.932	0.898
Apparent density (Mg/m³)	1.34	1.43
Real density (Mg/m³)	1.24	1.30
Saturated particle density (Mg/m³)	1.31	1.39
Crush resistance (N/mm²)	5.50	3.75
M_{dE} (%)	1.52	4.49

The water absorption coefficient for the SPE and SPS aggregates was found to be 5.72% and 7.2%, respectively. In contrast, the water absorption coefficient of lightweight aggregates, such as expanded clay, expanded slag, and sintered fly ash, is between 20% and 30%. The reason the water absorption coefficients of lightweight aggregates are so high is due to their cellular structure, which is a source of difficulty in the manufacture of mortar with precise ratios and a more or less constant water content. Thus, the lower water absorption coefficient of the SPE and SPS aggregates is a distinct advantage over that of conventional lightweight aggregates.

According to [6] the water absorption of the sediments is very high because of their large surface area and the presence of organic matter. As a result, the low water absorption of the formulated aggregates is attributed to the use of thermoplastic binder which acts as an envelope around and between the sediment particles.

The Micro-Deval coefficients *Mde* were measured for the SPE and SPS aggregates. Note that a higher *Mde* value indicates a lower aggregate wear resistance and more fine particles that can influence the properties of the mortar. The *Mde* value of the SPE aggregates was 1.52%, and that of the SPS aggregates was 4.49%. When compared to those of limestone (*Mde* = 35%), porphyry (*Mde* = 18%), or granite aggregate (*Mde* = 4 and 9%), the *Mde* values of the sediment-based plastic aggregates was lower.

The crush resistance of aggregates is related to several factors such as granulometry, porosity and density. In this study, it was determined that the crush resistance of the SPE aggregates was 5.5 N/mm^2 , which was higher than the crush strength of the SPS aggregates (3.75 N/mm^2). These values are two to three times higher compared to the crush resistance values of commercial lightweight aggregates based on expanded clay which are range between 1.3 and 2.5 N/mm^2 .

3.2 Chemical characterization of aggregates

The leaching results are shown in Table 7, where it can be seen that the concentration of heavy metal on leachate of aggregates are in the same range to the concentration of leachate of the raw sediments. However, it should be noted that the antimony (Sb) value of sediment and aggregates exceeded the classification threshold of inert solid waste specified in the applicable standard. The chloride values in the produced aggregates were largely lower than those in the raw sediment. This decrease in chloride concentration is greater than 50%. This can be explained as the thermoplastic matrix protected the particles of sediment by encasing it. Thus, the values of the fluoride, chloride, and sulphate were lower than the thresholds for non-hazardous solid waste. Consequently, the aggregates were considered to be non-hazardous solid waste.

3.3 Scanning electron microscope (SEM) observation of aggregates

The morphologies of the two formulated aggregates captured by SEM are shown in Figure 10. It appear clearly that sediment particles are well spread in the thermoplastic matrix for the two type of formulated aggregates (Figures 10-a; 10-d), thus good interaction between matrix and sediment particles. The complete encapsulation of sediment particles into the plastic waste matrix can be clearly seen in (Figures 10-b; 10-c; 10-e; 10-f). Also, the particles sediment were encasing in the thermoplastic matrix, which well explains the previous results of porosity and water absorption of the lightweight aggregates. That the obtained results are consistent with the results of Dhawan et al. [21] which study the incorporation of fly ash on thermoplastic waste.

Table17. Results of the leaching test of lightweight aggregates compared with the results of raw sediments

Paramètres	Raw sediment	SPE	SPS	Classification of solid waste		
				Inert	Non-Hazardous	Hazardous
AS	0.04	0.06	0.08	0.5	2	25
Ba	0.81	0.6	0.68	20	100	300
Cd	0.016	0.019	0.015	0.04	1	5
Cr	0.05	0.024	0.14	0.5	10	70
Cu	0.10	0.33	0.1	2	50	100
Mo	0.10	0.26	0.041	0.5	10	30
Ni	0.043	0.026	0.1	0.4	10	40
Pb	0.07	0.1	0.1	0.5	10	50
Sb	0.10	0.1	0.1	0.06	0.7	5
Se	0.10	0.1	0.1	0.1	0.5	7
Zn	0.16	0.065	0.11	4	50	200
Fluoride	19	9	15	10	150	500
Chloride	12 036.7	4870	5540	800	15 000	25000
Sulfate	5 656.7	4760	5990	1000	20 000	50000

3.3 Scanning electron microscope (SEM) observation of aggregates

The morphologies of the two formulated aggregates captured by SEM are shown in Figure 10. It appears clearly that sediment particles are well spread in the thermoplastic matrix for the two types of formulated aggregates (Figures 10-a; 10-d), thus good interaction between matrix and sediment particles. The complete encapsulation of sediment particles into the plastic waste matrix can be clearly seen in (Figures 10-b; 10-c; 10-e; 10-f). Also, the sediment particles were encasing in the thermoplastic matrix, which well explains the previous results of porosity and water absorption of the lightweight aggregates. That the obtained results are consistent with the results of Dhawan et al. [21] which study the incorporation of fly ash on thermoplastic waste.

3.4 Application of lightweight aggregate in mortar mixtures

The distribution of the aggregates in the MSPE1-30% and MSPE2-30% mortars are shown in Figures 7-a and 7-b, respectively. As shown, the SPE aggregates in the MSPE1-30% formulation were well distributed compared to that in the MSPE2-30% formulation, where that all aggregates were floating on surface. In contrast, the arrangement of the SPS aggregates in the cement matrix are shown in Figures 7-C and 7-D, where it can be seen that the aggregates were poorly distributed in the MSPS2-30% formulation and the majority of the aggregates were in the superior middle of the mortar section.

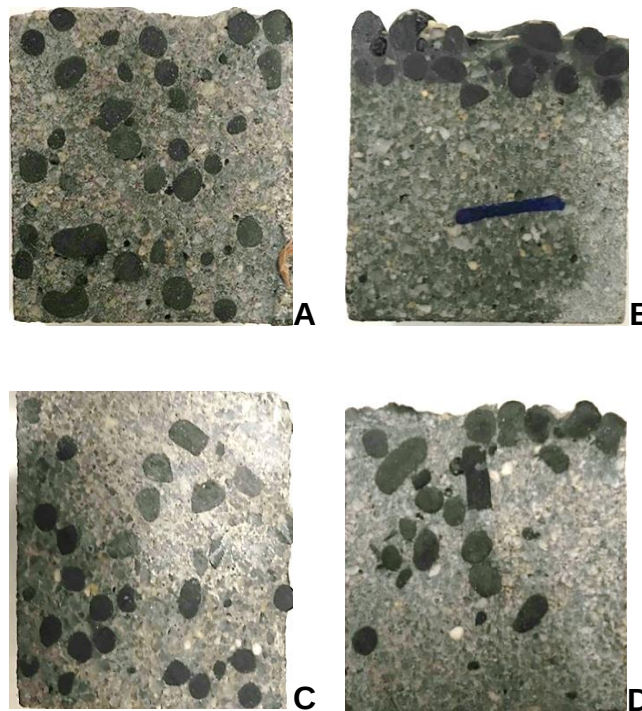


Figure 42. Cross-section of mortars based on lightweight aggregate (A: MSPE1-30%- B: MSPE2-30%- C: MSPS1-30%- D: MSPS2-30%)

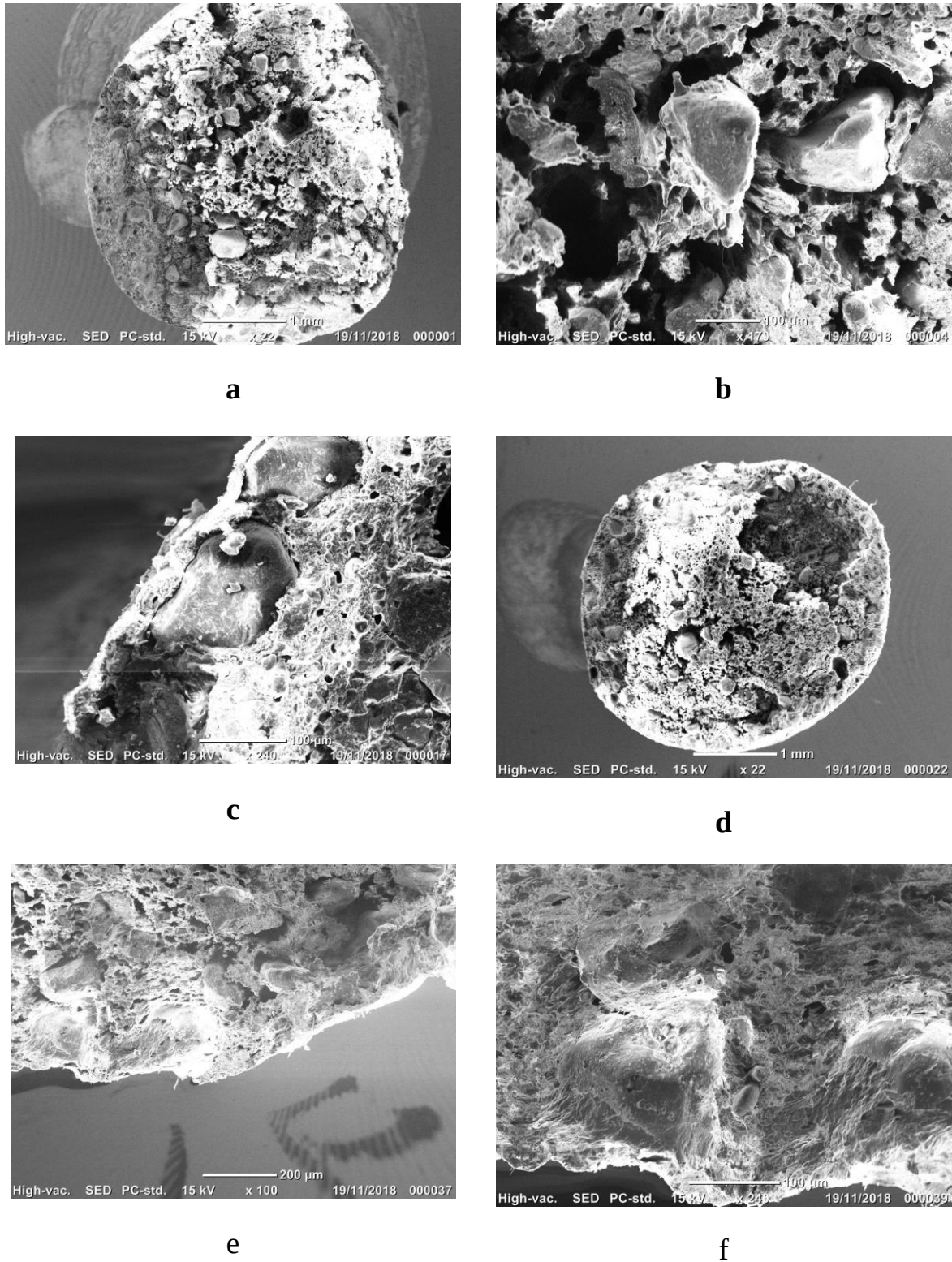


Figure 43. SEM observation of lightweight aggregates (a, b, c: SPS aggregates – d, e, f: SPE aggregates)

The homogeneity or the so-called concrete segregation of the MSPE-30% formulations is related to several factors, such as the shape, size, and density of the aggregates or the characteristics of the mortar. The primary difference between the MSPE1-30% and MSPE2-30% formulations versus the MSPS1-30% and MSPS2-30% formulations was the quantity of cement and aggregates. Upon inspection, it can be seen that larger quantities of cement paste resulted in segregation. In other words, increasing the density of the cement matrices relative to that of the aggregates caused the aggregates to rise.

3.4.1 Water porosity

The porosities of the RM, MSPE1-30%, MSPE2-30%, MPS1-30%, and MPS2-30% mortars are shown in Table 8, where it can be seen that the water porosity was the lowest for the MSPE2-30% variant at 10.58%. It should also be noted that there was a difference in the porosity between the RM and MSPS1-30% mortars of nearly 30%.

Table 8. Elastic modulus of the mortar produced using lightweight aggregates

Mix	RM	MSPE1-30%	MSPE2-30%	MSPS1-30%	MSPS2-30%
Elastic modulus (GPa)	43.23	31.78	39.91	16.29	40.93
Porosity (%)	15.78	11.40	10.58	11.14	11.68

From the table, it can be seen that the water permeability of the mortars made with aggregates (i.e. a mix of plastic and sediment) was lower compared to the reference mortar RM. These results are in agreement with those obtained by Tittarelli et al. [49], who found that incorporating dust from glass reinforced plastic in mortar decreased the amount of water absorbed. Also Silva et al. [37] used PET aggregates with different sizes and shapes in mortar and observed that the use of regularly shaped PET granules made it possible to achieve water absorption values equal to or lower than that of the mortar control. However, they found that the use of aggregates in pellet form increased the water absorption. Hannawi et al. [50] investigated the high permeability of cement mixtures based on the corresponding aggregate content in the form of a mixture of polycarbonate and PE terephthalate and found that the impermeability and smooth surface of these granules led to gaps ranging from 5 to 60 μm where free water could accumulate.

3.4.2 Flexural strength

The evolution of the flexural strength over a period of 60 d is shown in Figure 8, where it can be seen that the flexural strength for all mortar mixtures increased between 7 to 60 d. Indeed, the flexural strength of the RM, MSPE1-30%, and MSPE2-30% mortars increased by 15.55%, 8.84%, and 21.04%, respectively. The difference in the bending strength of the RM and MSPE1-30% mortars was 53.33%. The bending resistance of the MSPE2-30% mortar was 20.21% higher than that of the MSPE1-30% mortar because percentage of aggregates in the MSPE2-30% was lower. The flexural strength of the MSPE2-30% mortar was about 42.13% lower than that of the RM due to the addition of aggregates in the former.

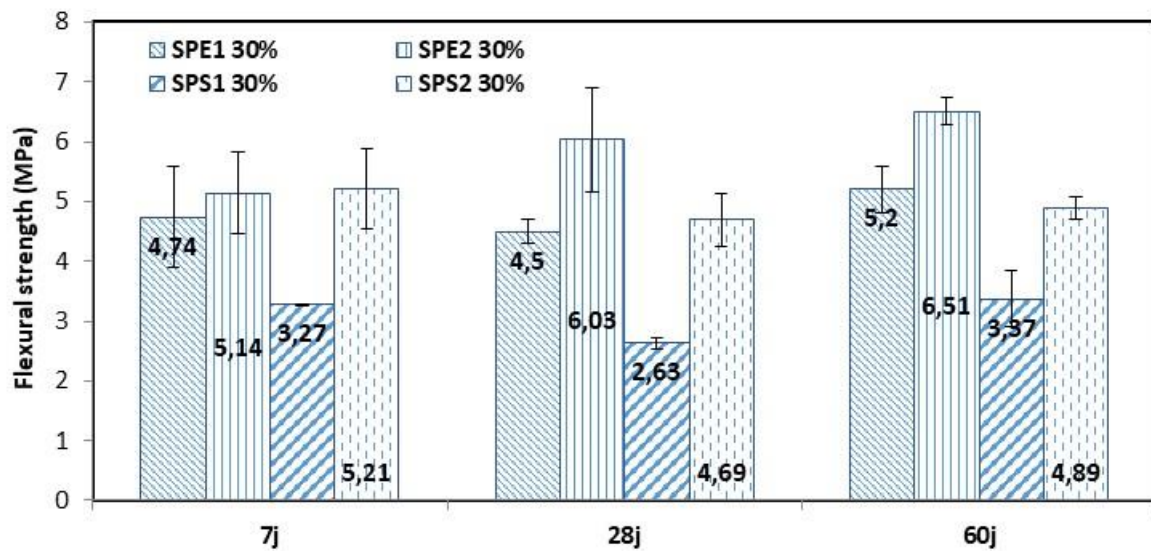


Figure 44. Evolution of the flexural strength of mortar based on lightweight aggregates

Note that the flexural strength of the MSPS1-30% and MSPS2-30% mortars decreased between 7 and 14 d by 24.33% and 11.08% for the MSPS1-30% and MSPS2-30% mortars, respectively. In contrast, the flexural strength increased between 28 and 60 d by 21.95% and 6.54% for the MSPS1-30% and MSPS2-30% mortars, respectively. When the RM mortar is compared to the MSPS1-30% and MSPS2-30% mortars, it can be seen that the bending strength decreased by 70.44% and 56.53%, respectively. This is because increasing the amount of SPS aggregates decreases the bending resistance.

It can be seen that the bending resistance of the MPSE1-30% mortar was 35.19% higher than the MSPS1-30% mortar due to differences in the flexural strength, and that of the MPSE2-30% mortar was 24.88% higher than that of the MSPS2-30% mortar for the same reasons. In summary, we observed that the formulations containing SPE aggregates were more resistant in comparison to the mortars containing the SPS aggregates. This difference may be related to the distribution of aggregates in the cement matrix, which led to differences in the crush values. In this case, the crush resistance of the SPE aggregates was 31% higher than that of the SPS aggregates.

Among the researchers who performed flexural strength tests on plastic-based aggregates, Alqahtani et al. [13] found that the bending strength decreases when plastic-based aggregates are added. Also Ismail et al. [48] added lightweight aggregates based on 80% polyethylene and 20% polystyrene and found that the bending strengths of mortars containing PP and PET aggregates were lower than those of the reference mortar, and that the bending strength was related to the proportion of PET aggregates.

3.4.3 Unconfined compressive strength

The evolution of the compressive strength (UCS) of the RM, MSPE1-30%, and MSPE2-30% mortars at 7, 14, and 28 d with a water / cement ratio of 0.5 are shown in Figure 9, where it can be seen that the compressive strength of the RM mortar increased by 18.86% between 7 and 60 d. It was found that between 7 and 28 d, the compressive strength increased by 16.7% and 18.19% for the MSPE1-30% and MSPE2-30% mortars, respectively, and the compressive strength between 28 and 60 d decreased by 43.16% for the MSPE2-30% mortar and increased by 3.2% for the MSPE1-30% mortar. However, unexpected decreases were observed in the resistance to compression of the MSPE1-30% and MSPE2-30% mortars between 28 and 60 d.

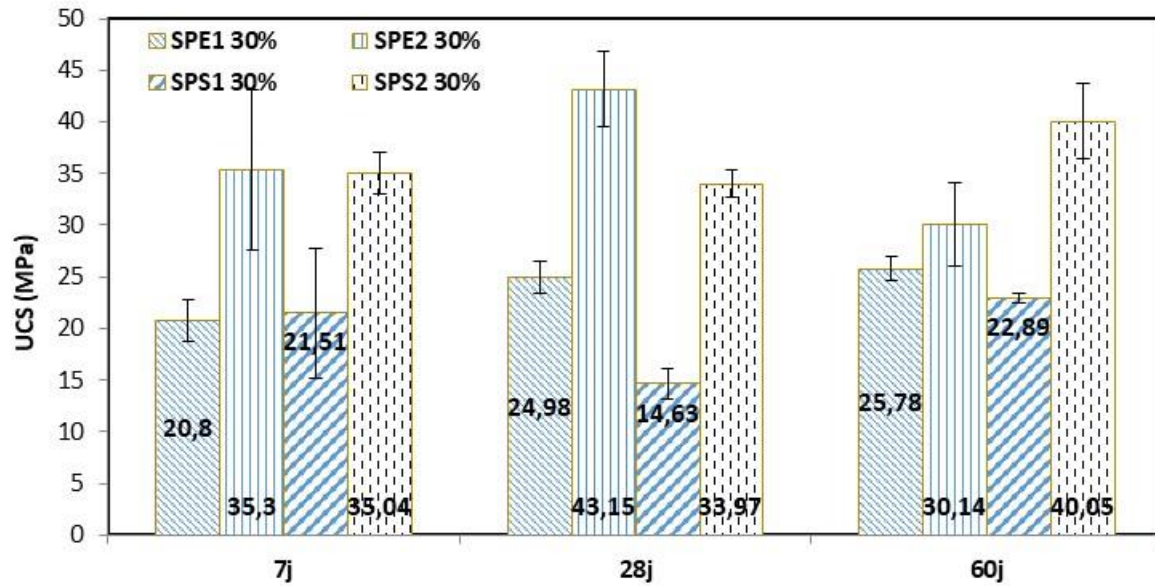


Figure 45. Evolution of the compression strength of mortar based on lightweight aggregates

By comparing the compressive strength of the RM and MSPE1-30% mortars, it was found that the compressive strength for the MSPE1-30% decreased by 59.77%. By comparing the compressive strength of the RM and MSPE2-30% mortars, it was found that the compressive strength of the MSPE2-30% mortar decreased by 52.97%. Note that the MSPE2-30% mortar was more resistant than the MSPE1-30% mortar by 14.46%. The difference in compressive strength between the MSPE1-30% and MSPE2-30% mortars was related to the proportions of cement and aggregates. It can be seen that the higher the aggregate content, the lower the compressive strength.

A compressive strength test was conducted on a mortar sample with a water / cement ratio of 0.5 and a surface bonded to aggregates; however, the results showed problems with the MSPE2-30% mortar due to the segregation of aggregates. The loss of compressive strength in this case was due to the weakness of the bonding force between the cement paste and aggregates, which was a consequence of water that accumulated around the aggregates due to their hydrophobicity.

The UCS of the MSPS1-30% and MSPS2-30% mortars decreased between 7 and 28 d by 31.98% and 3.14%, respectively. Between 28 and 60 d the compressive strength of the MSPS1-30% and MSPS2-30% mortars increased by 36.08% and 15.18%, respectively. At 60 d, the MSPS1-30% and MSPS2-30% mortars were less resistant with a difference of 64.2% and 37.5%, respectively, compared to the RM mortar. At 60 d the difference between

the UCS of the MSPS1-30% and MSPS2-30% mortars was 42.84%. Unexpectedly, the resistance between 7 and 14 d was lower due to the presence of SPS aggregates. It was found that adding aggregates to the mortar resulted in a loss of compressive strength due to the shape and nature of the aggregates and the bonding between the aggregates and the cement matrix.

Note that the UCS of the mortars containing SPE aggregates was higher by 11.21% than that of the SPS mortar. This was expected and is due to the crush resistance of the aggregates, which is linked to the compressive strength of the mortar. As shown in Table 5, the crush strength of the SPE aggregates was higher than that of the SPS aggregates. Another explanation for this difference is related to the value of the Micro-Deval test *Mde* of the aggregates. According to Table 5, the *Mde* value of the SPS aggregates was higher than that of the SPE aggregates. This is because the mass of the abrasive load varied with the granular classes, which then influenced the compressive strength of the mortars. In terms of the water absorption value of the aggregates, the SPS aggregates absorbed more water than the SPE aggregates, which affected the resistance of the mortars. The flexural strength of mortar was normally correlated with its compressive strength.

These results are in agreement with those obtained by Alqahtany et al. [13] who found a 40% to 53% reduction in the UCS of mortars when manufactured plastic granulates were included. A similar observation was reported by Jansen et al. [51] who argued that the UCS of concrete made from aggregates based on plastic matrix incorporating 80% fly ash, was 43% lower than that of control concrete. Záleská et al. [52] found that incorporating PP waste into mortars decreased mechanical strength. Also Batayneh et al. [53] investigated the use of up to 20% plastic in concrete and found that the corresponding compressive strength was lower than that of normal concrete produced using natural aggregates. Silva et al. [37] found that the use of plastic granulates (80% polyethylene and 20% polystyrene) to make concrete resulted in a 35% reduction in the compressive strength. Finally, Liu et al. [54] used recycled plastic particles (acrylonitrile-butadiene-styrene / polycarbonate copolymer) to replace 5%, 10%, 15%, and 20% of the volume of sand in concrete production and observed a decline in the compressive strength. This can be attributed to the lower bond strength between the lightweight aggregate surface and the cement paste compared with those of natural aggregates.

3.4.4 Modulus of elasticity

The elasticity modulus of the mortars based on SPE aggregates are shown in Table 8, where it can be seen that the elasticity modulus of the MSPE1-30% mortar was 31.78 GPa, which is 26.48% less than that of the RM mortar. On the other hand, the modulus of elasticity of the MSPE2-30% mortar was 39.91 GPa, which was 20.37% higher than the MSPE1-30% mortar.

The evolution of the modulus of elasticity of the RM, MSPS1-30%, and MSPS2-30% mortars is also shown in Table 8. Note that the modulus of elasticity of mortar MSPS1-30% was the lowest with a difference of 62.31% and 60.02% relative to that of mortars RM and MSPS2-30%, respectively. The difference in the modulus of elasticity between the RM and mortars containing a mixture of plastic and sediments aggregate was influenced by the bond strength between the aggregates and the cement matrix, the packing density of the mortar, and the mix design [55,56] as the distribution of aggregates as shown in Figures 6.

4. Conclusions

This study evaluated the physical chemical and mechanical properties of lightweight aggregates based on sediments and thermoplastic waste. The performance of lightweight aggregates were achieved through the requirements of the European Standard EN 13055-1 for lightweight aggregates and exhibited good mechanical properties. The incorporation of these aggregates into mortar formulations has made it possible to demonstrate the feasibility of their use as substitution of sand up to a rate of 30% by mass.

The following conclusions were drawn from this study:

- 1) New composite aggregates with a recycled plastic matrix (PP / PS and PP / PE) and mineral filler (sediment) were manufactured via the thermal method. The originality of this work was in the utilization of 70% sediment in a plastic matrix.
- 2) The packing density of the mixtures was used to determine the proportions of materials used to formulate the aggregates.
- 3) The manufactured aggregates had good physical, mechanical, and chemical properties relative to those of aggregates containing raw plastic or other commercial lightweight aggregates.

- 4) The mortars produced using these aggregates were found to have good mechanical strength and a water permeability that was lower than that of the control mortars or mortars containing natural lightweight aggregates.

Finally, to improve the mechanical properties of the mortars incorporating the aggregates formulated, it is necessary to improve the bond between the granulates formulated and the cementitious matrix it would be judicious to act on the surfaces of these aggregates, either by a chemical treatment (silane) or by mechanical action to have the rough surface.

Declarations of interest: none.

Funding: The authors thank, European Regional Development Fund (ERDF) and the Haut-de-France Region for their financial support to the project.

5. References

- [1] R. Snellings, Ö. Cizer, L. Horckmans, P.T. Durdziński, P. Dierckx, P. Nielsen, K. Van Balen, L. Vandewalle, Properties and pozzolanic reactivity of flash calcined dredging sediments, *Applied Clay Science*. 129 (2016) 35–39. doi:10.1016/j.clay.2016.04.019.
- [2] M.O. Pascal, M.D. Denis, M.J.J. Marie, M.A.N. Edine, M.A. Claude, M.D. Bruno, M.M.F. Xavier, M.B. Gérard, Soutenue le 13 mai 2004 devant la Commission d'examen, 299.
- [3] V. Dubois, N.E. Abriak, R. Zentar, G. Ballivy, The use of marine sediments as a pavement base material, *Waste Management*. 29 (2009) 774–782. doi:10.1016/j.wasman.2008.05.004.
- [4] A. Kasmi, N.-E. Abriak, M. Benzerzour, H. Azrar, Environmental impact and mechanical behavior study of experimental road made with river sediments: recycling of river sediments in road construction, *Journal of Material Cycles and Waste Management*. 19 (2017) 1405–1414. doi:10.1007/s10163-016-0529-5.
- [5] V. Cappuyns, V. Deweirt, S. Rousseau, Dredged sediments as a resource for brick production: Possibilities and barriers from a consumers' perspective, *Waste Management*. 38 (2015) 372–380. DOI:10.1016/j.wasman.2014.12.025.
- [6] W. Maherzi, M. Benzerzour, Y. Mamindy-Pajany, E.van Veen, M. Boutouil, N.-E. Abriak, Beneficial reuse of Brest-Harbor (France)-dredged sediment as alternative material in road building: laboratory investigations, *Environmental Technology*, 39 (2018) 566-580. DOI: 10.1080/09593330.2017.1308440,
- [7] S. Brakni, N.E. Abriak, A. Hequette, Formulation of artificial aggregates from dredged harbour sediments for coastline stabilization, *Environmental Technology*. 30 (2009) 849–854. doi:10.1080/09593330902990154.
- [8] H. Janfeshan Araghi, I.M. Nikbin, S. Rahimi Reskati, E. Rahmani, H. Allahyari, An experimental investigation on the erosion resistance of concrete containing various PET particles percentages against sulfuric acid attack, *Construction and Building Materials*. 77 (2015) 461–471. doi:10.1016/j.conbuildmat.2014.12.037.
- [9] T.A. Dang, S. Kamali-Bernard, W.A. Prince, Design of new blended cement based on marine dredged sediment, *Construction and Building Materials*. 41 (2013) 602–611. doi:10.1016/j.conbuildmat.2012.11.088.
- [10] Y.-L. Wei, J.-C. Yang, Y.-Y. Lin, S.-Y. Chuang, H.P. Wang, Recycling of harbor sediment as lightweight aggregate, *Marine Pollution Bulletin*. 57 (2008) 867–872. doi:10.1016/j.marpolbul.2008.03.033.
- [11] *Plastics_the_facts_2017_FINAL_for_website.pdf*,

- [12] I. Kyrikou, D. Briassoulis, Biodegradation of Agricultural Plastic Films: A Critical Review, *Journal of Polymers and the Environment*. 15 (2007) 125–150. doi:10.1007/s10924-007-0053-8.
- [13] F.K. Alqahtani, M.I. Khan, G. Ghataora, S. Dirar, Production of Recycled Plastic Aggregates and Its Utilization in Concrete, *Journal of Materials in Civil Engineering*. 29 (2017) 04016248. doi:10.1061/(ASCE)MT.1943-5533.0001765.
- [14] F.K. Alqahtani, G. Ghataora, M.I. Khan, S. Dirar, Novel lightweight concrete containing manufactured plastic aggregate, *Construction and Building Materials*. 148 (2017) 386–397. doi:10.1016/j.conbuildmat.2017.05.011.
- [15] P. Liu, R. Farzana, R. Rajarao, V. Sahajwalla, Lightweight expanded aggregates from the mixture of waste automotive plastics and clay, *Construction and Building Materials*. 145 (2017) 283–291. doi:10.1016/j.conbuildmat.2017.04.009.
- [16] M. Záleská, M. Pavlíková, J. Pokorný, O. Jankovský, Z. Pavlík, R. Černý, Structural, mechanical and hygrothermal properties of lightweight concrete based on the application of waste plastics, *Construction and Building Materials*. 180 (2018) 1–11. doi:10.1016/j.conbuildmat.2018.05.250.
- [17] L.B. Andrade, J.C. Rocha, M. Cheriaf, Evaluation of concrete incorporating bottom ash as a natural aggregates replacement, *Waste Management*. 27 (2007) 1190–1199. doi:10.1016/j.wasman.2006.07.020.
- [18] A. Badache, A.S. Benosman, Y. Senhadji, M. Mouli, Thermo-physical and mechanical characteristics of sand-based lightweight composite mortars with recycled high-density polyethylene (HDPE), *Construction and Building Materials*. 163 (2018) 40–52. doi:10.1016/j.conbuildmat.2017.12.069.
- [19] Bernardeau et al. - 2018 - Valorization of waste thermoset material as a fill.pdf,
- [20] Y. Yang, R. Boom, B. Irion, D.-J. van Heerden, P. Kuiper, H. de Wit, Recycling of composite materials, *Chemical Engineering and Processing: Process Intensification*. 51 (2012) 53–68. doi:10.1016/j.cep.2011.09.007.
- [21] R. Dhawan, B. Mohan Singh Bisht, R. Kumar, S. Kumari, S.K.Dhawana, Recycling of plastic waste into tiles with reduced flammability and improved tensile strength, *Process Safety and Environmental Protection*. 124 (2019) 299–307. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.psep.2019.02.018>
- [22] H. Tagaya, Y. Suzuki, T. Asou, J. Kadokawa, K. Chiba, Reaction of Model Compounds of Phenol Resin and Molding Materials of Phenol Resin in Supercritical Water for Chemical Recycling of Polymer Waste, *Chemistry Letters*. 27 (1998) 937–938. doi:10.1246/cl.1998.937.
- [23] Y. Suzuki, H. Tagaya, T. Asou, J. Kadokawa, K. Chiba, Decomposition of Prepolymers and Molding Materials of Phenol Resin in Subcritical and Supercritical Water

under an Ar Atmosphere, Industrial & Engineering Chemistry Research. 38 (1999) 1391–1395. doi:10.1021/ie9805842.

[24] J. Hopewell, R. Dvorak, E. Kosior, Plastics recycling: challenges and opportunities, Philosophical Transactions of the Royal Society B: Biological Sciences. 364 (2009) 2115–2126. doi:10.1098/rstb.2008.0311.

[25] Y.-W. Choi, D.-J. Moon, J.-S. Chung, S.-K. Cho, Effects of waste PET bottles aggregate on the properties of concrete, Cement and Concrete Research. 35 (2005) 776–781. doi:10.1016/j.cemconres.2004.05.014.

[26] J. Hadipramana, S.N. Mokhatar, A.A.A. Samad, N.F.A. Hakim, An Exploratory Compressive Strength Of Concrete Containing Modified Artificial Polyethylene Aggregate (MAPEA), IOP Conference Series: Materials Science and Engineering. 160 (2016) 012065. doi:10.1088/1757-899X/160/1/012065.

[27] Plastics — Polypropylene (PP) moulding and extrusion materials — Part 2: Preparation of test specimens and determination of properties

[28] Plastics — Polyethylene (PE) moulding and extrusion materials — Part 2: Preparation of test specimens and determination of properties,

[29] Plastics — Impact-resistant polystyrene (PS-I) moulding and extrusion materials — Part 2: Preparation of test specimens and determination of properties,

[30] Fine ceramics (advanced ceramics, advanced technical ceramics) determination of specific surface area of ceramic powders by gas adsorption using the bet method,

[31] Soils: recognition and testing - determination of the organic content by weight of a material - calcination method,

[32] Soils: investigation and testing — measuring of the methylene blue adsorption capacity of a rocky soil — determination of the methylene blue of a soil by means of the stain test

[33] Tests for mechanical and physical properties of aggregates part 7: determination of the particle density of filler — pyknometer method,

[34] Association française de normalisation (afnor).leaching – compliance test for leaching of granular waste materials and sludges– part 2: one stage batch test at a liquid to solid ratio of 10 l/kg for materials with particle size below 4 mm (without or with size reduction). Brussels: afnor; 2013. Standard no. En 12457-2:2002.

[35] A. Lecomte, J.-M. Mechling, C. Diliberto, Compaction index of cement paste of normal consistency, Construction and Building Materials. 23 (2009) 3279–3286. doi:10.1016/j.conbuildmat.2009.05.005.

[36] Methods of testing cement - Part 3 : determination of setting times and soundness

- [37] R.V. Silva, J. de Brito, N. Saikia, Influence of curing conditions on the durability-related performance of concrete made with selected plastic waste aggregates, *Cement and Concrete Composites*. 35 (2013) 23–31. doi:10.1016/j.cemconcomp.2012.08.017.
- [38] Saikia et de Brito - 2012 - Use of plastic waste as aggregate in cement mortar.pdf
- [39] Tests for mechanical and physical properties of aggregates - Part 3 : Determination of loose bulk density and voids
- [40] Tests for mechanical and physical properties of aggregates — Part 6: Determination of particle density and water absorption,
- [41] Tests for mechanical and physical properties of aggregates — Part 11: Determination of compressibility and confined compressive strength of lightweight aggregates,
- [42] Tests for mechanical and physical properties of aggregates — Part 1: Determination of the resistance to wear (micro-Deval)
- [43] Tests for geometrical properties of aggregates Part 1: Determination of particle size distribution —sieving method,
- [44] F. De Larrard, *Concrete mixture proportioning: a scientific approach*, London, 1999.
- [45] T. Sedran, F. de Larrard, RENÉ-LCPC: un logiciel pour optimiser la granularité des matériaux de génie civil "Un logiciel pour optimiser la granularité des matériaux de génie civil", Note technique, Bulletin de Liaison des Laboratoires des Ponts et Chaussées, N°194, NovembreDécembre, 1994.,
- [46] F. Iucolano, B. Liguori, D. Caputo, F. Colangelo, R. Cioffi, Recycled plastic aggregate in mortars composition: Effect on physical and mechanical properties, *Materials & Design* (1980-2015). 52 (2013) 916–922. doi:10.1016/j.matdes.2013.06.025.
- [47] S. Yang, X. Yue, X. Liu, Y. Tong, Properties of self-compacting lightweight concrete containing recycled plastic particles, *Construction and Building Materials*. 84 (2015) 444–453. doi:10.1016/j.conbuildmat.2015.03.038.
- [48] Z.Z. Ismail, E.A. AL-Hashmi, Use of waste plastic in concrete mixture as aggregate replacement, *Waste Management*. 28 (2008) 2041–2047. doi:10.1016/j.wasman.2007.08.023.
- [49] F. Tittareli, S. P. Shah, Effect of low dosages of waste GRP dust on fresh and hardened properties of mortars: Part 1, *Construction and Building Materials*. 47 (2013) 1532–1538. doi:10.1016/j.conbuildmat.2013.06.043.
- [50] K. Hannawi, S. Kamali-Bernard, W. Prince, Physical and mechanical properties of mortars containing PET and PC waste aggregates, *Waste Management*. 30 (2010) 2312–2320. doi:10.1016/j.wasman.2010.03.028.
- [51] D. Jansen, M. Kiggins, C. Swan, R. Malloy, M. Kashi, R. Chan, C. Javdekar, C. Siegal, J. Weingram, *Lightweight Fly Ash-Plastic Aggregates in Concrete*, Transportation

Research Record: Journal of the Transportation Research Board. 1775 (2001) 44–52. doi:10.3141/1775-07.

[52] M. Záleská, M. Pavlíková, Z. Pavlík, Properties of lightweight cement-based composites containing waste polypropylene, in: Terchova, Slovakia, 2016: p. 040030. doi:10.1063/1.4955261.

[53] M. Batayneh, I. Marie, I. Asi, Use of selected waste materials in concrete mixes, Waste Management. 27 (2007) 1870–1876. doi:10.1016/j.wasman.2006.07.026.

[54] F. Liu, Y. Yan, L. Li, C. Lan, G. Chen, Performance of Recycled Plastic-Based Concrete, Journal of Materials in Civil Engineering. 27 (2015) A4014004. doi:10.1061/(asce)mt.1943-5533.0000989.

[55] A. Shayan, A. Xu, Performance of glass powder as a pozzolanic material in concrete: A field trial on concrete slabs, Cement and Concrete Research. 36 (2006) 457–468. doi:10.1016/j.cemconres.2005.12.012.

[56] Neville, A.M., Brooks, J.J., 2010. Concrete Technology. Pearson, Harlow, United Kingdom, 460 p.

CHAPITRE IV : ÉVALUATION DE L'ACCEPTABILITE ENVIRONNEMENTALE DES MONOLITHES DE MORTIERS POLYMERES

Sommaire

IV.1. Introduction

IV.2. L'essai de lixiviation dynamique sur monolithes

IV.3. Méthodologie pour l'évaluation du potentiel de relargage des matériaux monolithiques

IV.4. "Assessment of dynamic surface leaching of inorganic chemical substances from monolithic polymer mortars including dredged sediments". Article soumis le 04-04-19 dans le journal "Environmental Science and Pollution Research"

IV.1 Introduction

Pour les produits de construction étudiés dans le cadre de la thèse, c'est l'émission des substances vers l'eau qui doit être privilégiée. Or, les émissions de substances pendant la vie en œuvre des produits de construction sont actuellement mal prises en compte dans les bases de données et dans les méthodes utilisées pour l'évaluation des performances environnementales. Dans la continuité de ce qui a pu se faire par ailleurs pour l'étude de l'acceptabilité environnementale des produits de construction soumis au Règlement européen sur les Produits de Construction et en suivant la norme CEN/TS 16637-1, des essais de lixiviation sur monolithes ont été menés dans le cadre de cette thèse selon la procédure équivalente retranscrite dans la norme française NF EN 15863 [113].

IV.2 Démarche expérimentale

L'essai de lixiviation dynamique sur monolithes se déroulent sur 64 jours et suit les prescriptions de la norme NF EN 15863, le dispositif est détaillé dans la figure ci-dessous. Les essais sont menés sur des éprouvettes coupées en cubes réguliers de 4 centimètres de côté. Le milieu est renouvelé suivant les intervalles de temps décrits dans le tableau ci-dessous et chaque éluât est analysé pour pouvoir étudier le relargage cumulé sur l'ensemble de la période d'essai.

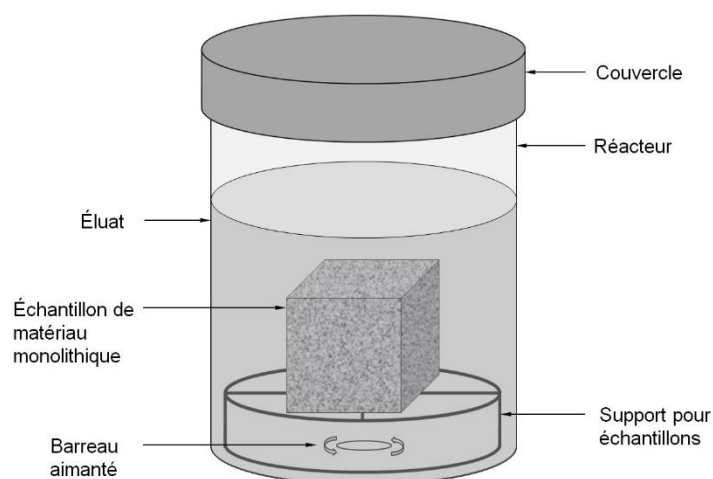


Figure 46 Dispositif expérimental pour la lixiviation sur monolithes [11] (NF EN 15863)

Tableau 18 Intervalles de temps appliqué au prélèvement et au renouvellement des éluats pour l'essai normalisé de lixiviation dynamique sur monolithes NF EN 15863

Étape/ Fraction	Durée de l'intervalle de temps	Durée à partir du début de l'essai
1	6 h ± 15 min	6 h ± 15 min
2	18 h ± 45 min	1 jour ± 45 min
3	1 jour et 6 h ± 1 h	2 jours et 6 h ± 2 h
4	1 jour et 18 h ± 2 h	4 jours ± 4 h
5	5 jours ± 6 h	9 jours ± 10 h
6	7 jours ± 8 h	16 jours ± 18 h
7	20 jours ± 24 h	36 jours ± 42 h
8	28 jours ± 24 h	64 jours ± 66 h

Contrairement à l'essai sur matériaux fragmentés, on s'intéresse ici aux substances relarguées par le matériau en fonction de la surface exposée plutôt que la masse, en conséquence, le volume de lixiviat par fraction est choisi en fonction de la surface du monolithe avec un ratio L/A (liquide/ surface) de 8 ml/cm².

IV.3 Principaux résultats

IV.3.1 Comportement à la lixiviation des mortiers

Les principales caractéristiques physiques des mortiers polymères étudiés dans l'essai de lixiviation dynamique sur monolithes sont présentées dans le tableau ci-dessous. Les essais de lixiviation sur monolithes ont permis d'évaluer le potentiel de relargage des substances chimiques inorganiques émises par des matériaux de construction typiquement utilisés en France dans les applications de revêtements de sols. Ces matériaux intègrent des pourcentages de sédiment (30 ou 50% de sédiments) et de résines époxy (12, 14, 16, 18, 20, 25%) réalistes d'un point de vue opérationnel.

Les substances chimiques inorganiques quantifiables sont relativement limitées, seuls le baryum, le cobalt, le cuivre, le vanadium et les sulfates sont systématiquement mesurés dans certaines formulations ceci étant variable en fonction du taux de sédiment incorporé. Sur les formulations incorporant 30% de sédiments, ces éléments chimiques peuvent apparaître ponctuellement dans une ou plusieurs fractions de l'essai de lixiviation dynamique sur monolithes tandis que les autres éléments (As, Cd, Cr, Mo, Ni, Pb, Sb, Se, and Zn) sont rarement quantifiables dans les fractions collectées. Ces résultats s'expliquent par le fait que l'utilisation de liants thermodurcissables est reconnue comme un procédé de traitement

limitant efficacement la porosité des mortiers composites tout en limitant les contacts entre l'eau et les granulats de la matrice. Les propriétés physiques de formulations reportées dans le tableau ci-dessus confirment cette observation et ont permis d'expliquer les variations de relargage observées en fonction du taux de résine utilisé, et les phénomènes de diffusion constatés généralement en début d'expérience.

Tableau 19 Principales caractéristiques mécaniques et physiques

quantity of aggregates	30% sediment and 70% sand						50% sediment and 50% sand					
Quantity of resin (%)	12	14	16	18	20	25	12	14	16	18	20	25
Porosity (%)	26.41	25.06	14.29	3.95	7.27	6.51	34.97	38.68	24.04	19.21	13.99	11.03
Water absorption (%)	1,2082 $\times 10^{-01}$	1,1196 $\times 10^{-01}$	7,9869 $\times 10^{-02}$	1,6002 $\times 10^{-02}$	2,8174 $\times 10^{-03}$	1,2268 $\times 10^{-03}$	2,5759 $\times 10^{-01}$	2,2216 $\times 10^{-01}$	1,5205 $\times 10^{-01}$	6,8566 $\times 10^{-02}$	3,2144 $\times 10^{-02}$	2,2751 $\times 10^{-03}$
Density g/cm ³	1556	1600	1600	1830	1890	1960	1400	1370	1450	1600	1730	1830

IV.3.2 Vérification de la conformité environnementale des mortiers

La prévision d'émissions de substances dangereuses sur le long terme est importante pour l'évaluation du comportement au relargage d'un produit de construction durant sa vie en service dans une construction. Afin d'être en mesure de prévoir le relargage par extrapolation sur le long terme, il est nécessaire de connaître le mécanisme de relargage. Toutefois, les difficultés rencontrées pour l'identification des mécanismes de relargage des éléments traces métalliques et métalloïdes à partir des résultats des essais de lixiviation dynamique sur monolithes limite les possibilités d'extrapolation à long terme. De plus, l'absence de seuils réglementaires nationaux pour le test de lixiviation dynamique sur monolithes ne permet pas à l'heure actuelle de s'assurer de l'innocuité environnementale des matériaux fabriqués. Dans d'autres pays européens comme l'Allemagne et les Pays Bas, l'utilisation de matières premières secondaires est réglementée et des seuils environnementaux existent pour l'essai de lixiviation dynamique sur monolithes. Ces seuils permettent de vérifier à un niveau national la conformité des produits de construction avant leur mise sur le marché et garantissent leur

innocuité environnementale à long terme. Le référentiel bénéficiant du retour d'expérience le plus significatif est sans doute celui mis en place par les Pays-Bas dans le cadre du Building Materials Decree (1995) puis du Soil Quality Decree (2008). Pour cette approche, les résultats des relargages cumulés sont comparés au bout de 64 jours aux seuils de conformité de l'essai de lixiviation dynamique sur monolithes du Soil Quality Decree (SQD) des Pays-Bas

Les concentrations inférieures à la limite de quantification n'ont pas été prises en compte dans le calcul du relargage cumulé sur 64 jours. Ainsi, les éléments mesurés sont tous relargués à des concentrations très inférieures aux seuils du SQD, ce qui signifie que les matériaux fabriqués à partir du sédiment fluvial correspondent aux attentes des produits de construction classiques aux Pays-Bas sur ce critère et d'un point de vue environnemental.

4.4 Conclusions

L'étude de l'acceptabilité environnementale des formulations de mortiers polymères intégrant 30 et 50 % de sédiments a permis de démontrer la bonne rétention des substances chimiques dans les matrices composites. Il apparaît que la diffusion est le mécanisme principal de relargage de nombreuses substances inorganiques en début d'expérience avant l'apparition d'un phénomène d'appauvrissement. Cela s'explique par la nature organique et les caractéristiques de la microstructure (faible absorption d'eau et porosité réduite) des mortiers de l'étude qui limite le transfert de la phase aqueuse et l'accès aux particules sédimentaires piégées dans la matrice. En l'absence de seuils nationaux pour la validation de la conformité environnementale des matériaux fabriqués, les seuils du référentiel néerlandais ont été confrontés aux concentrations cumulées après 64 jours de lixiviation. Les mesures expérimentales étant systématiquement inférieures aux seuils de référence pour les substances chimiques détectables, les matériaux fabriqués peuvent être jugés comme conformes d'un point de vue environnemental.

IV.4 “Assessment of dynamic surface leaching of inorganic chemical substances from monolithic polymer mortars including dredged sediments”.Article soumis le 04-04-19 dans le journal “Environmental Science and Pollution Research”

Ilyas Ennahal, Yannick Mamindy-Pajany, Walid Maherzi, Nor-Edine Abriak, Mahfoud Benzerzour

Institut Mines Telecom Lille Douai, LGCgE-GCE,

941 rue Charles Bourseul, 59500 Douai, France

Université Lille Nord de France, 1 bis Georges Lefèvre, 59044 Lille, France

Abstract

To check the environmental acceptability of construction materials including wastes, the release of hazardous substances into water must be assessed. In this research, we performed a diffusion test with sequential renewal of water during a 64 days period according to NF EN 15863 specifications, on polymer mortar monoliths, common construction products used in floor covering applications. Polymer mortars were prepared at laboratory scale by incorporating 30 or 50% of polluted sediment for various polymer concentrations (12, 14, 16, 18, 20 and 25%). It was shown that the release of inorganic substances is limited in these hydrodynamic conditions. Among trace elements, As, Cd, Cr, Ni, Pb and Zn are lower than quantification limits in most leachates whereas Ba, Co, Cu and V are systematically quantified at low concentration levels. This is particularly true for samples displaying the highest polymer concentration (25%) and the lowest sediment incorporation rate (30%). This is because of the low water absorption level and low porosity of polymer mortar matrices. No adverse effect is to be expected for environmental health from the leachates of these construction materials including waterways sediments, because all the measured parameters were below Soil Quality Decree limits applied in Netherlands for environmental assessment of construction products.

Keywords: Dynamic monolith leaching test; polymer mortars; dredged sediments; trace elements; construction products; epoxy-resin.

1. Introduction

Numerous investigations have highlighted that dredged sediments may be reused as major or minor components in construction industry sector. For example, in the research carried out by [1]. Sediments were incorporated into the brick-manufacturing process instead of quartz sand with a substitution rate of 15%. In addition, it has been shown that 50% replacement of natural brick-making clay by sediments allow reaching the compressive strength required for American Society for Testing and Materials (ASTM) standards [2][3]. The feasibility of using dredged sediments as partial replacement of cement in mortars was assessed by several authors [4];[5]. [4] Studied the variation of compressive strength at varying sediment incorporation rates (5%, 10%, 15% and 20% by mass of cement). The results highlighted that sediments can most suitably be substituted for 5% of the cement used. Lightweight aggregates manufactured from dredged sediments has been studied in many research works [6]; [7]; [8]; [9][10] and the results have shown their suitability for large scale production due to their availability, homogeneity, mineralogical and chemical composition.

In SEDIMATERIAUX regional framework launched in France in 2009, several innovative ways for the recycling of non-submersible sediments have been studied by the port of Dunkirk: landscape re-modelling, use in road-building as well as manufacturing of mortar blocks [11] To date, 150 000 cubic meters have been reused in the port's territory in the form of landscape re-modelling. This landscape re-modelling is designed to promote the development of biodiversity in an area of low species richness. In May 2012, the first port road was rebuilt by using dredged sediments and natural aggregates. By the end of 2013, mortar blocks including this sediment were made and used in the port's territory to strengthen defenses against the sea. Currently, the port is studying the feasibility to use sediment to produce artificial aggregates that it will use to strengthen its coast line subject to erosion. In this way, the port hopes to identify several treatment ways for recycling non-submersible dredged materials.

More recently, the industrial research project entitled « SEDIPLAST » was launched (2015-2018) in France within SEDIMATERIAUX framework to assess the feasibility of reusing waterways and harbor sediments in thermosetting and/or thermoplastic matrices in order to manufacture polymer mortars which could be used for floor covering applications. Technical

investigations have shown that sediments can be incorporated as major component of composite products and by replacement of natural aggregates with a substitution rate of 50%. Composite products were evaluated by mechanical, thermal and chemical tests according to UPEC specifications to validate their technical use as construction products in floor covering applications [12].

In European countries, it is commonly accepted that requirements for construction works include the proofs that they will not have adverse effects on human health and the environment [13]. It is meant that expected pollutant emissions in soils and waters need to be quantified during the service life of construction products. Laboratory test procedures to determine the amount of substances released from construction products were established by the CEN TC 351 “construction products: assessment of release of dangerous substances”. One of the tests—CEN/TS 16637-2:2014 was developed to investigate leaching from monolithic construction products. This test is known as the dynamic surface leaching test (DSLTL) and intends to describe diffusion-controlled leaching processes. Within the reproducibility ranges, the leaching results obtained with NF EN 15863 are expected to be equivalent to those obtained with CEN/TS 16637-2 (DMLT for construction products), because the main testing conditions are equalized in both standards. The test results cannot be used directly to derive expected environmental concentrations. Concepts for transferring results obtained under laboratory exposure conditions to service-life conditions still need to be developed or refined [14] [15]. However, the test indicates whether target substances can be leached from investigated construction products. It is also possible to compare the leachability of the target substances from different construction products or regulatory levels from Netherlands (Soil Quality Decree, 2008) or Germany. The present study is the first to assess the leaching of soluble inorganic substances from polymer mortars including waterways sediments according to the specifications recorded in NF EN 15863. We investigated the leaching behavior of several polymer mortar samples including various epoxy resin rates (12, 14, 16, 18, 20, and 25%) and two dredged sediments incorporation rates (30 and 50 % in mass).

2. Materials and methods

Epoxy-resin properties

The RECKLI EPOXI EP binder used in this research study is a two-component, solvent-free, transparent epoxy-based castable resin. It was supplied by SOCECO RECKLI. Two different

hardeners are proposed, the final results are the same but the reaction rate is changed. The hardener was selected with a reaction rate of between 40 minutes and 50 minutes. RECKLI EPOXI EP resin can be mixed with different fillers and allowed, according to the proportion of resin, to obtain mortars. Table 1 reports the main characteristics of the used epoxy resin.

Table 1 Main characteristics of the used epoxy resin

Proportions of the mixture	1 part by weight of hardener 2 parts by weight of basic solution
Density	1.1 g / cm ³
Hardness Shore D	70 – 75
Hardness of the core	70 - 75 N / mm ² at 14 days
Heat resistance	+40 ° C to +45 ° C
Operating temperature	+10 ° C to +30 ° C
Viscosity	1000 - 1200 mPa.s

Sediment sample properties

In this work, one sediment sample was used in polymer mortars, it was collected from Neufossé channel in Hauts-de-France region in France. Physical and geotechnical parameters measured on this sediment sample are reported in Table 2. The density was measured using a Micrometrics Accupycs 1330 helium pycnometer model. This test was performed in accordance with standard NF EN 1097-7: (2008). In accordance with standard NF EN ISO 18757: (2003), the BET surface area was also measured, thus enabling the fineness of the materials to be evaluated using a Micromeritics Autopore IV 9505 instrument. The evaluation of the material organic content is carried out by the fire loss test according to the standard XP P94-0447: (1998) consisting of calcination at 450 ° C for 3h and a measurement of the loss of mass. The methylene blue (VBS) absorption test for the evaluation of the clay was also carried out in accordance with standard NF P 94 - 068: (1998).

Table 2 characterization of the sediment

Characteristics	Standards	sediment
density (Kg/m ³)	NF EN 1097-7	2610
Methylene blue value (g/100 g of dry matter)	NF P 94-068	0.53%
Organic matter content (%) at 450 C 4	XP P94-047	4.2
BET Surface (m ² /g)	NF EN ISO18757	11.01

Polymer mortars preparation

Polymer mortars were prepared by mixing sand, sediment and resin by optimizing granular characteristics of the final mixing. Determination of the particle size was performed with an LS 13320 laser apparatus. The particle size distribution of sediment sample is compared to the sand particles in the figure 1. This sand is used in polymer mortars manufacturing, it is standardized sand (ISO 679 standardized sand) containing natural siliceous sand, especially in the finer fractions.

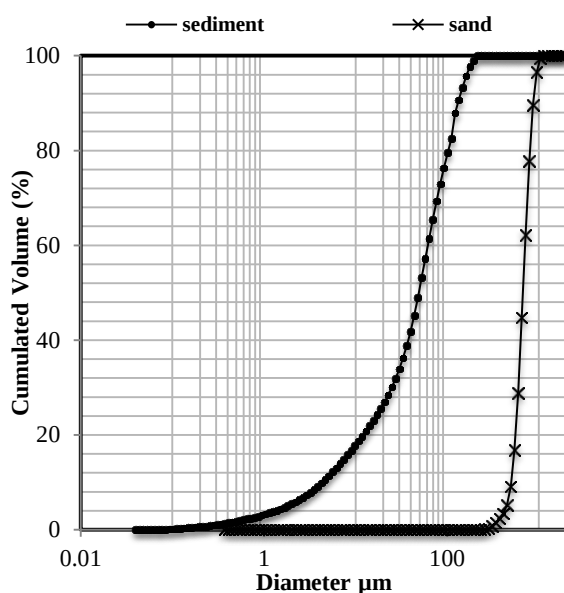


Fig 1 Comparison of particle size distribution in sediment sample and the normalized sand used in polymer mortars manufacturing

The mineralogical characterization of sediment and sand was carried out essentially by X-ray diffraction analysis (XRD or XRD = X-Ray Diffraction). The results indicate that the sediment consists mainly of quartz (SiO_2) with a low presence of calcite (CaCO_3). We also note the presence of minor mineral phases such as albite ($\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$), orthoclase (KAlSi_3O_8) and muscovite ($\text{KAl}_2(\text{AlSi}_3\text{O}_{10})(\text{OHF})_2$). The sand consists exclusively in crystallized silica (Quartz).

The resin binder manufacturing is the mixture of the base product and the hardener in a bucket for 3 minutes until a uniform mixture is obtained. In another bucket, the charges are mixed (sand and sediment). Invert the binder into a second container and knead again for 6 minutes at this point. We add the fillers in the binder in 2 parts. The molds are filled in two layers; each layer is compacted using the impact table (60 shots). The polymer mortar samples

were demolded after 24 h and cured in air at 25 ° C and 48% Relative Humidity. Composition of studied formulations are described in table 4. It can be noted that mercury porosity is linked to the quantity of aggregates and the resin binder. Indeed, when the amount of the resin increases the porosity and the water absorption decreases. The presence of sediment in the polymer mortars influence the final porosity, values measured in the formulations with 30% sediment are systematically lower than in formulations including 50% of sediment in their matrices.

Table 3 Main mechanical and physical characteristics

quantity of aggregates	30% sediment and 70% sand						50% sediment and 50% sand					
Quantity of resin (%)	12	14	16	18	20	25	12	14	16	18	20	25
Porosity (%)	26.41	25.06	14.29	3.95	7.27	6.51	34.97	38.68	24.04	19.21	13.99	11.03
Water absorption (%)	1,208 $2 \cdot 10^{-01}$	1,119 $6 \cdot 10^{-01}$	7,986 $9 \cdot 10^{-02}$	1,600 $2 \cdot 10^{-02}$	2,817 $4 \cdot 10^{-03}$	1,226 $8 \cdot 10^{-03}$	2,575 $9 \cdot 10^{-01}$	2,221 $6 \cdot 10^{-01}$	1,520 $5 \cdot 10^{-01}$	6,856 $6 \cdot 10^{-02}$	3,214 $4 \cdot 10^{-02}$	2,275 $1 \cdot 10^{-03}$
Density g/cm ³	1556	1600	1600	1830	1890	1960	1400	1370	1450	1600	1730	1830

The batch leaching test NF EN 12457-2 on granular constituents of polymer mortars

The sediment and the sand provide chemical substances in the polymer mortars which could be leached into waters. The batch leaching tests were carried out in accordance with the European standard EN 12457-2. The principle of the test consists in exposing the crushed material to an liquid extractant during 24 hours, and then analyzes the eluate obtained. Each material having a particle size less than or equal to 4 millimeters was tested in triplicate reduced to a maximum particle size of 4 mm. It applies to fragmented waste and sludge with a particle size less than 4 millimeters, the reduction of the size of the particles meeting this criterion being possible. A test portion corresponding to 90 grams (± 5 g) of dry mass is placed in a one-liter flask. The material of the flask is chosen so as to limit as much as possible the interactions with the waste tested and as a function of the substances assayed

during the analysis of the eluate (in our case, it is high density polyethylene). The lixiviate used is ultra-pure water. The amount of liquid extractant to be added is determined so that the liquid / solid ratio (L / S in L / kg of dry matter) is 10 ($\pm$ 2%). The flask is then shaken with a rotary shaker at 10 rpm for 24 hours ($\pm$ 30 min). At the end of the test, the separation of the eluate from the solid is done in 2 steps. First, the mixture is allowed to settle (for 15 minutes $\pm$ 5 min) and then the eluate is filtered through a 0.45 μ m cellulose acetate membrane. A centrifugation step can be added in case of problems. For each eluate, the pH, the conductivity and the temperature are systematically measured

Dynamic surface leaching test on polymer mortar samples

Leaching tests on mortar monoliths were conducted according to the EN 15863 standard with periodical eluate renewal. Each monolith was placed in a plastic reactor and a given volume of de-ionized water was introduced to submerge completely the monolith and reach a “volume to surface ratio” (L/A ratio) of 8 cm³/cm². The top surface of the monolith was kept at least 2 cm below the surface of water, and the distance between the surfaces of the monolith and the walls of the reactor was kept above 2 cm. At time intervals of 0.08, 1, 2.25, 8, 14, 15, 28 and 36 days, the aqueous solution was completely removed from the reactor and replaced with the same volume of de-ionized water. The pH and electrical conductivity were measured immediately. Then the leachate was filtered through a cellulose-acetate membrane of 0.45 μ m pore size, and the solution analyzed within 24 h for a number of trace (As, Ba, Cd, Cr, Cu, Co, Mo, Ni, Pb, Sb, Se, Zn) major elements (Ca, Fe, K, Mg) and anions (sulphates, chlorides and fluorides) respectively by ICP-OES and ionic chromatography.

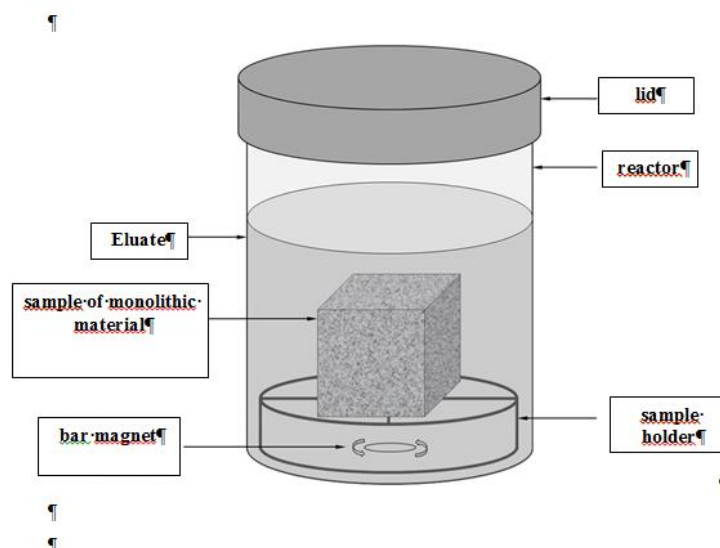


Fig 2 Experimental design for dynamic monolith leaching test applied on polymer mortar samples

3. Results and discussion

Batch leaching test results on granular constituents

Leaching parameters are reported in table 5 for both granular constituents used in the formulations of polymer mortar. For the sand, all inorganic substances are lower than the quantification limits, except for Ba which is released at 0.03 mg/kg of dried mass. This level is very low compared to regulatory levels established for inert and non-inert waste storage in Europe. The pH level around 9 suggested that carbonates minerals detected in the sand is soluble and control the final pH in leachates. This could explained the measured soluble fraction measured in this batch leaching test (398 mg/kg) which is also remained under regulatory levels for inert and non-inert waste storage. Inversely, the sediment released more chemical substances but their concentration levels are relatively low for the most parameters. All detected parameters (Ba, Cr, Cu, Mo, Ni, Pb, Sb, Se, Zn, Chlorides, Fluorides, and Sulfates) are lower than the regulatory level for inert waste storage, except of Sb which exceeded this level. It can be noted that the soluble fraction and conductivity is higher in the sediment leachate than in the sand one. This can be explained by the large diversity of minerals detected in the sediment and that can be dissolved in leachates. The pH level seem to be controlled by the carbonates minerals. Finally, the sediment is considered as non-inert materials on this basis. Inert materials are generally most difficult to reuse because environmental criteria for the beneficial reuse of waste in civil engineering are often based on inert waste storage referential. However, their use remain possible in some applications as construction products.

Table 4 the results of leaching of sediment and sand

Parameters	Sediment	Sand	ISDI threshold	ISDND threshold
As	< 0.1	< 0.1	0.5	2
Ba	3	0.03	20	100
Cd	< 0.01	< 0.01	0.04	1
Cr	0.02	< 0.01	0.5	10
Cu	0.6	< 0.02	2	50
Mo	0.1	< 0.05	0.5	10
Ni	0.1	< 0.04	0.4	10
Pb	0.1	< 0.02	0.5	10
Sb	0.11	< 0.05	0.06	0.7
Se	0.07	< 0.07	0.1	0.5
Zn	1.0	< 0.03	4	50
chlorides	36	< 10	800	15000
fluorides	20	< 5	10	150
sulfates	270	<10	1000	20000
soluble fraction	2837	358	4000	60000
pH	8.09	8.98	-	> 6
Conductivity (µS/cm)	264	27.75	-	-

Dynamic monolith leaching tests***Physico-chemical parameters: pH, conductivity and redox potential***

Relatively stable pH values are observed in the first three samples for the different formulations regardless of the rate of sediment incorporated. There is less variability in formulations with 50% sediment (8.5-9). In formulations containing 30% of sediments this variability is greater, the pH values varying between 8 and 9.4. Given the natural pH values measured on the raw constituents in previous leaching tests (sand and sediment), it appears that these formulated materials have a buffering capacity resulting from their mineralogical composition.

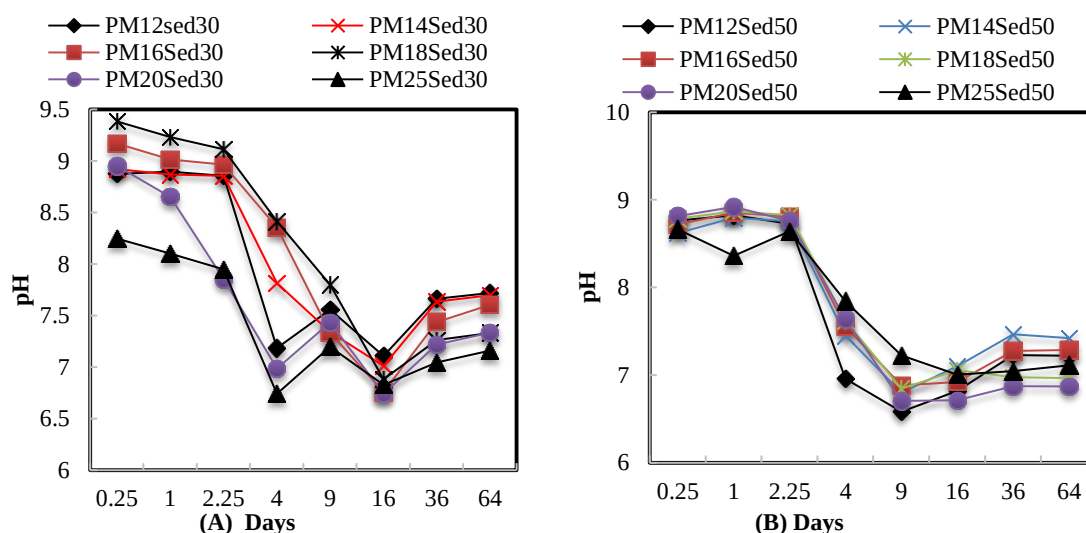


Fig 3 Evolution of pH in eluates of polymer mortar including 30% (A) and 50% (B) of sediments

The carbonates present in the sediment explain the good buffering capacity of the formulations having an incorporation rate of 50%. The sand has traces of carbonates and participates indirectly in maintaining the pH. From the 4th renewal it can be noted the drop in pH (between 1 and 2 points) to the value of 7 for the different formulations, regardless of the sediment content. The nature of the dynamic monolith leaching test makes that the renewal of the solution allows a dissolution of the stock of carbonate minerals. The presence of calcium in the leachates confirms this mechanism (Fig 4). It can be noted that calcium diffusion in leachates is strongly correlated to the resin concentration in the polymer mortar. The increase in resin concentration reduces the diffusion of calcium in leachates and therefore carbonates dissolution. On the last three renewals, the pH remains more or stable at a neutral value in the different formulations in the presence of 30 or 50% of sediments, suggesting that the resin composition (mainly alcohol groups) play an important role on the pH values.

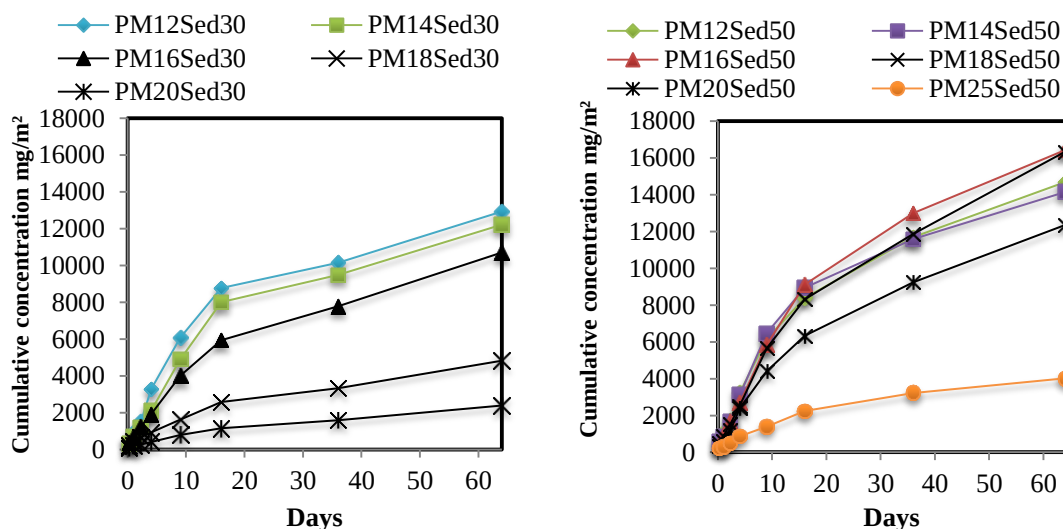


Fig 4 Evolution of cumulative concentration of iron calcium in leachates from monolithic polymer mortars containing 30% (A) and 50% (B) of sediments in their matrices

It is noted that the conductivity (Fig 5) in the first three points is stable except for the polymer mortars with 12% of quantity of the resin; the second three points the conductivity increases to the 7th point after it becomes stable. It can be also noted that the conductivity of the mortar at 50% sediment is higher than the mortar at 30% sediment; this discrepancy is related to the amount of sediment and it is noted that the conductivity decreases when the amount of the resin increases.

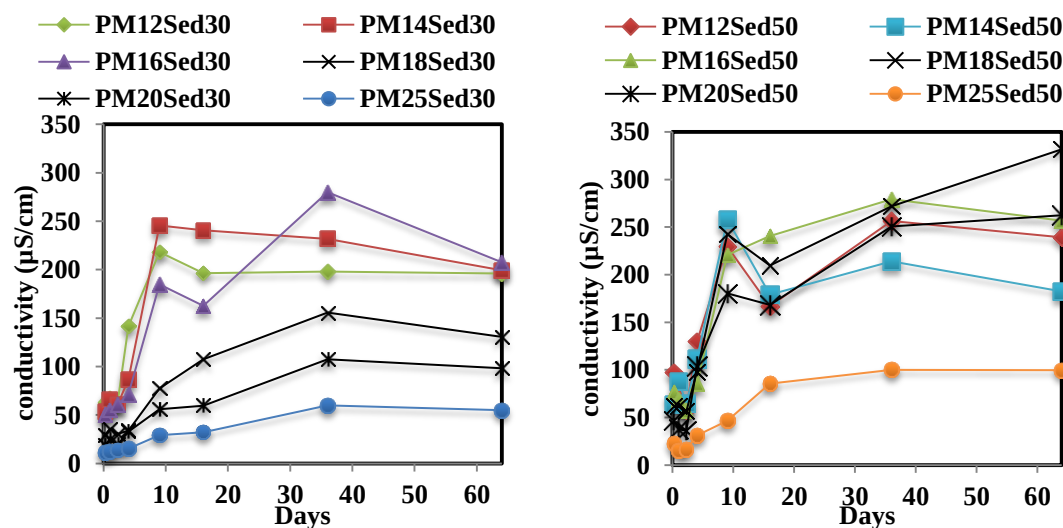
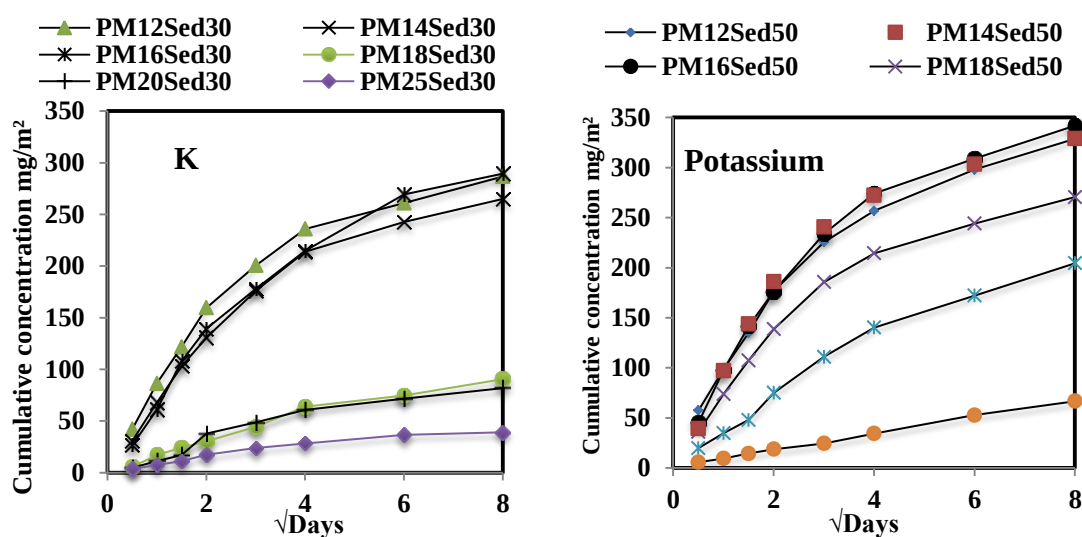


Fig 5 Evolution of conductivity in eluates of polymer mortar including 30% (A) and 70% (B) of sediments

Finally, we can be noted that conductivity values are relatively low compared to the value measured in batch leaching test for the sediment and sand. This is explain by the monolithic nature of the sample which limited the transfer of chemical substances in waters. As a matter of fact, different release mechanisms could lead to different release patterns in the

dynamic leaching test, namely: (i) solubility, (ii) diffusion from the internal porosity of the matrix to the surface, and (iii) surface wash-off (where substances concentrated at the surface of the monoliths maybe released at the first contact with water). Among them, the diffusion is clearly the most important in the case of polymer mortar because there is a strong correlation between porosity values and the level of conductivity measured in the sample.

This observation is in good agreement with pH evolution (Figure 3) and calcium leaching mechanisms in the leachates that influence positively the conductivity values. In addition, Fe, K, Mg are among the main other major elements released by diffusion through polymer mortar matrices (Figure 6). Cumulative release of these major elements are relatively similar and independent of sediments incorporation rate, suggesting that their concentration is relatively high in the polymer mortar samples. These observations can explain the low discrepancies measured in conductivity in all samples (Figure 5). This is in good agreement with other works on hydraulically bound materials where major elements are diffused in the water and control ionic background of leachates (Lecomte, 2018; Paulus et al. 2016).



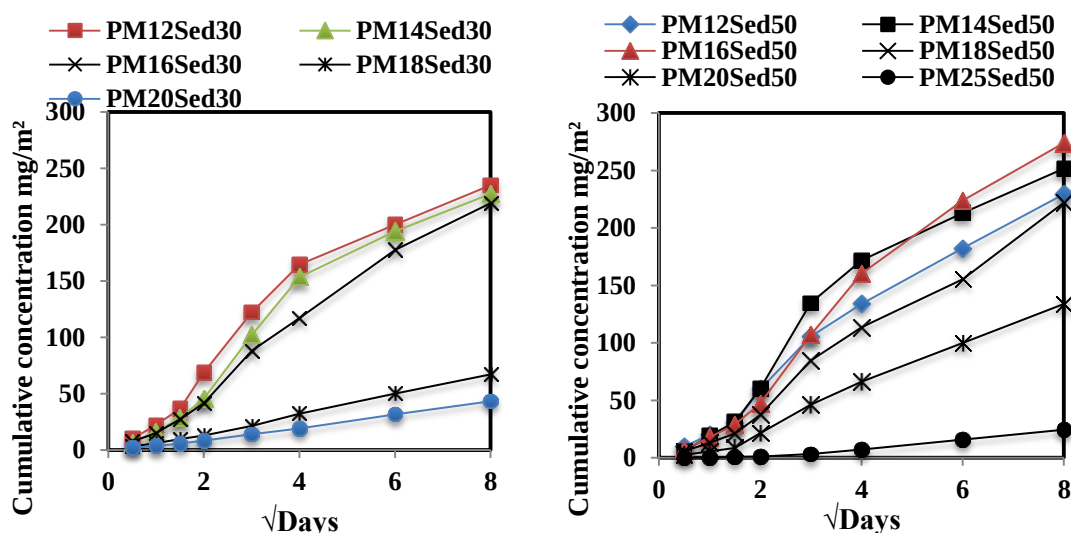


Figure 6. Evolution of cumulative concentration of iron, potassium and magnesium in leachates from monolithic polymer mortars containing 30% and 50% of sediments in their matrices.

Redox potential variations were measured in leachates for all formulations (Figure 7). The values are positive and range between 150 and 330 mV for polymer mortars including 30 and 50%. It means that the medium is oxidized and that there is no redox buffer in sediment and sans constituents. It can be noted that no difference is measured between all formulations suggesting that this parameter is strongly independent of chemical composition of polymer mortars.

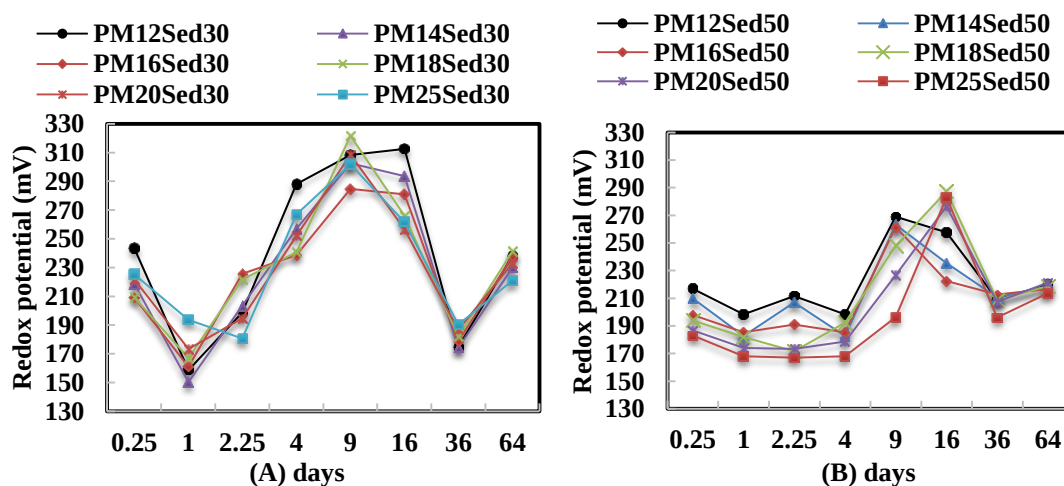


Figure 7 Evolution of redox potential in eluates of polymer mortar including 30% and 70% of sediments

Sulfates, chlorides and fluorides leaching

Concentrations in chlorides and fluorides in polymer mortar samples are below the quantification limit which is consistent with their low concentration in the sediment batch leaching test and the low porosity of materials. Figure 8 shows the sulphate concentrations in the eight eluates of polymer mortars. When the cumulative sulphate release is considered, a fast leaching was noted until 4 days of experiments, where release is dominated by diffusion. Then depletion seems to be reached. After 64 days, the average sulphate cumulative area release is not similar in all formulations. Contrary to major elements, sulphate level in leachates is strongly linked to sediment incorporation rate. The increases in sediment incorporation rate increase the diffusion of sulphates. There is no relationship between the resin concentration and sulphates diffusion level in polymer mortars. This suggest that sulphates are also released by other mechanisms such as surface leaching or dissolution process from gypsum include in sediment matrices.

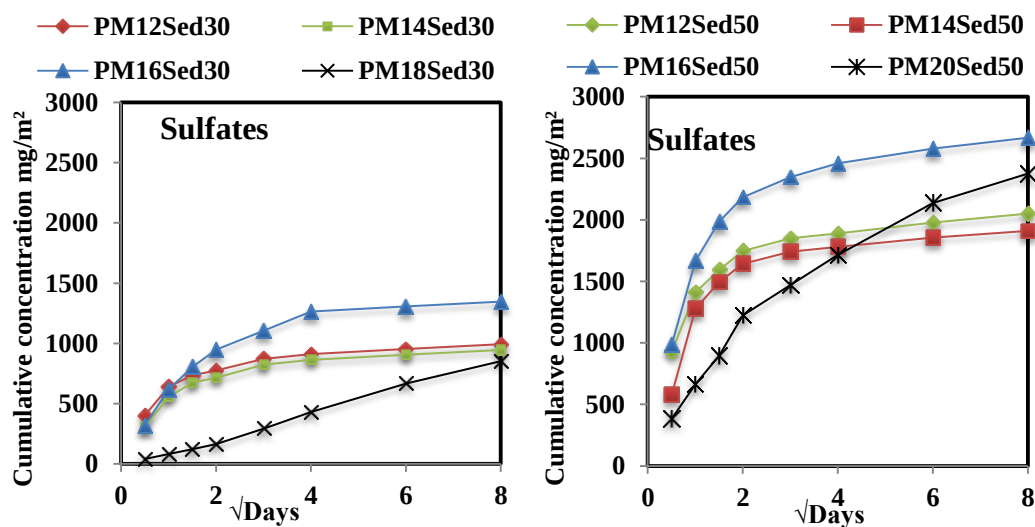


Figure 8. Evolution of cumulative concentration of iron sulphate in leachates from monolithic polymer mortars containing 30% (A) and 50% (B) of sediments in their matrices

Leaching of trace elements

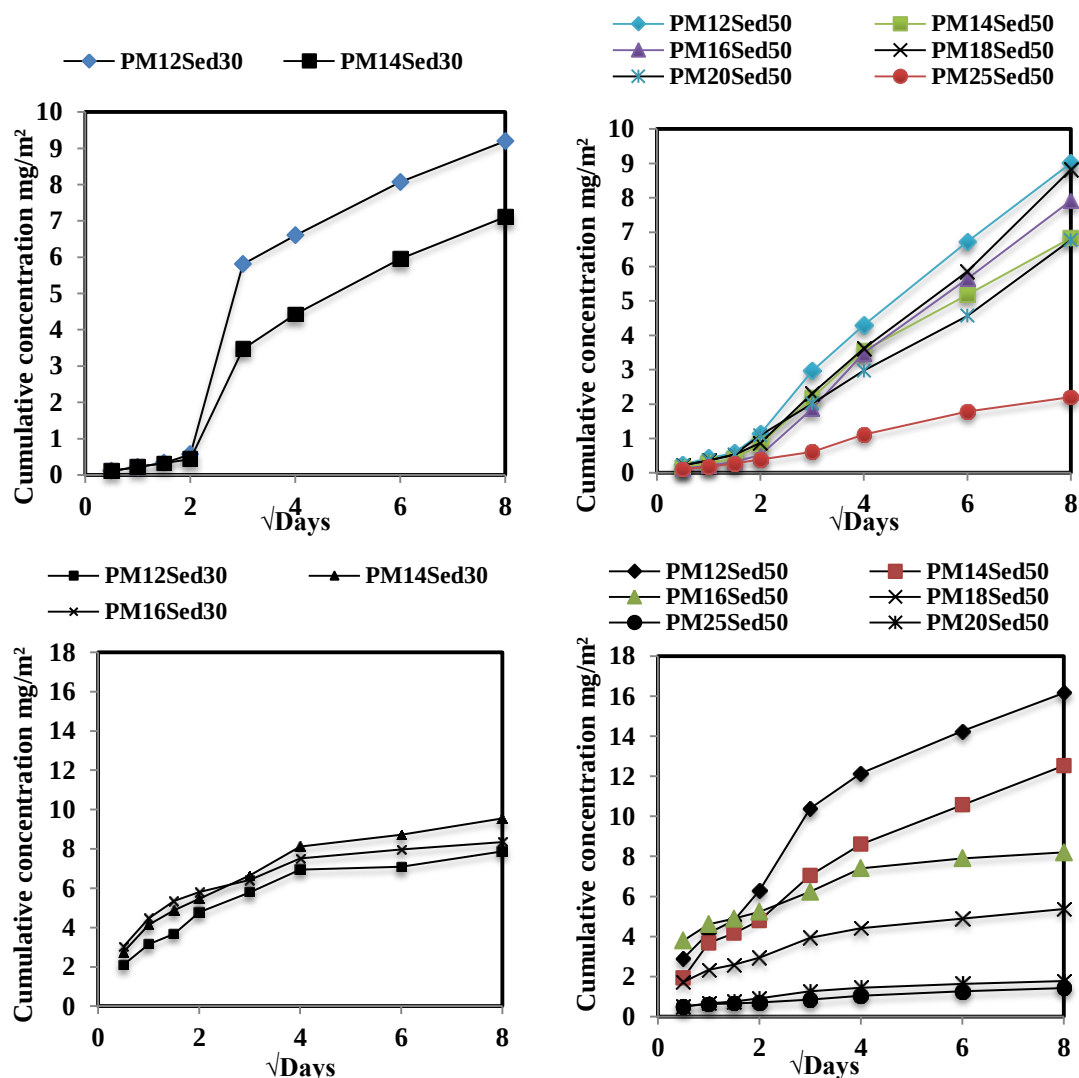
Concentrations of trace metals in polymer mortar leachates were consistently below the limits of quantification for the most elements i.e. As, Cd, Cr, Mo, Ni, Pb, Sb, Se, and Zn which was in accordance with their low mobility in the sediment and the low porosity of monolithic samples. These results are in good agreement with previous work on asphalt mortar or hydraulically bounds materials (Paulus et al. 2016; Lecomte 2018). The system

product/water is characterised by two compartments which exchange flows, i.e. the pore-water in the pores of the product and the leachate compartment. Once the product brought in contact with water the system tends towards a new equilibrium state by transport process (composition of leachate different from that of the pore-water). Different processes take place: (i) in the porous matrix: dissolution/precipitation processes, chemical reactions (acid/base, complexation, redox) in liquid phase, diffusion of soluble chemical species through the pores (from the core to the surface of the product) and transfer to the liquid; (ii) in the leachate: chemical reactions between species, dissolution/precipitation reactions at the product/leachate interface (corrosion of the material surface), transport with the leachate and possibly interaction with a gas phase. The most trace elements present in the sediment, i.e. As, Cd, Cr, Mo, Ni, Pb, Sb, Se, and Zn seem to be strongly influenced by the physical properties of resin that reduce their availability in the leachate. In addition, contrary to hydraulically bounds samples, no pH modification are observed in polymer mortar (pH near neutral) suggesting that this treatment process do not change the speciation of metals in the treated sediment, this is why the environmental risk is reduced. Figure 9 shows the evolution of cumulative concentration of Ba, Co, and Cu as a function of time. A linear relationship can be found between cumulative Ba concentrations and the time, suggesting that this chemical is main release by diffusion through polymer matrice. Sediment concentration play an important role on the availability of Ba in the leachates with very low concentrations in formulations including 30% of Sediments and the lowest resin epoxy concentrations. In formulations including 50% of sediments, Ba is detected in all formulations (from the lowest to the highest resin concentration) and a negative relationship can be found between the resin concentration and the level of Ba in leachates. This is clearly linked to the diffusion mechanism that is more significant when the porosity of polymer mortars increases and therefore the level of resin decreases. The behavior of Co is very similar, the leaching is reduced in formulations including 30% of sediments and a linear relationship is described between cumulative concentrations and the time for formulations including 50% of sediments. The diffusion process is the main mechanism for the leaching of this element from the matrix.

At 64 days the amount of the cumulative cobalt concentration of the polymer mortar with 30% sediment for the 12%, 14% and 16% mass fractions of the binder almost equal to that of the polymer mortar with 50% of the sediment.

Figure 10 reports the leaching of V as a function of time for polymer mortars including 50% of sediments. As observed previously, there is a strong correlation between the

resin concentration and the leaching rate measured. The diffusion mechanism observed in the first renewal (until 36 days) is more significant when the resin incorporation rate decreases. For Ba, Co, Cu, and V the main mechanism controlling the release at the beginning is the diffusion after some renewal the mechanism changes due to their solid phase speciation and water accessibility to sediment particle entrapped in the polymer matrices. The amount of epoxy binder affects the cumulative concentration, this can be explained by the porosity and water absorption of the polymer mortars when the porosity is low the cumulative concentration is reduced. Chemical parameters are strongly influenced by sediment incorporation rate. Overall, the low leached content of polymer mortar materials is linked to their low hydraulic conductivity and the low polarity of the polymer binder, which prevent water from permeating through the specimens and solubilize chemical substances.



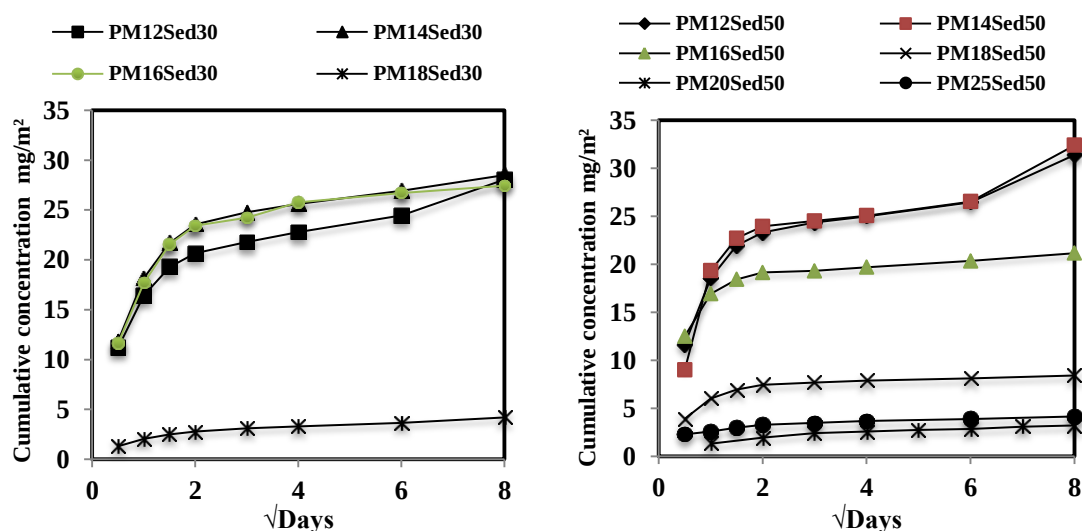


Figure 9. Evolution of cumulative concentration of iron, Ba, Co and Cu in leachates from monolithic polymer mortars containing 30% and 50% of sediments in their matrices

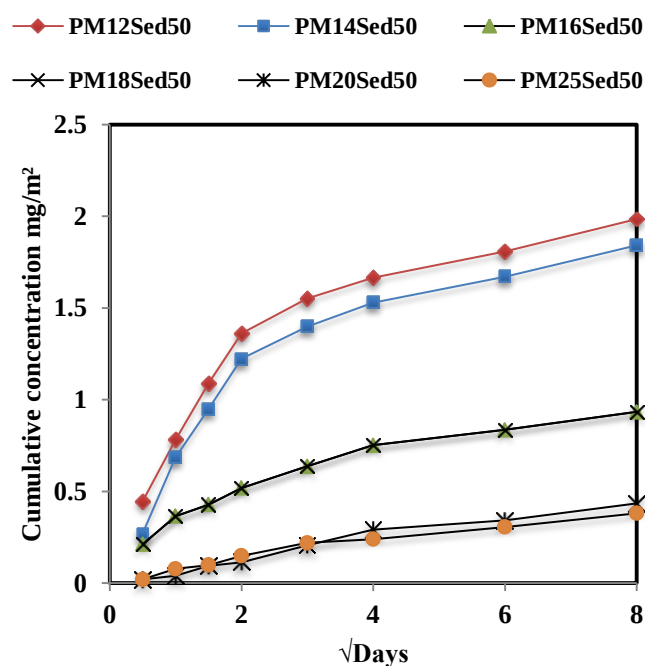


Figure 10. Evolution of cumulative concentration of iron Vanadium in leachates from monolithic polymer mortars containing 50% of sediments in their matrices

Conformity of construction products

The results of standardized release tests can be directly compared to limit values stated in some countries (e.g. Austria, the Flanders region of Belgium, Denmark, Finland, France,

the Netherlands, and soon also Germany). These limit values are mostly for granular mineral products in civil engineering works. Some apply to all construction materials, (the Netherlands), while others stipulate limit values for certain materials in specific constructions (Germany, Denmark and Finland). In Netherlands, the “Soil Quality Decree” sets limit values for all stony construction materials, granular or monolithic, and for contaminated soils. Metals and salts have limit values for their leaching from construction materials, organic pollutants have limit values for total content (Regeling Bodemkwaliteit 2007). The Dutch Decree does not separate between products and secondary raw materials. Furthermore, the regulation includes an obligation to remove the material after its service life has ended. Leaching tests results highlight that highly soluble chemicals such as Ba, Co, Cu, V and sulphates are systematically detected in all leachates (for some formulations) while some other elements may occur only punctually for polymer mortars including the lowest percentage of sediments. The amounts of chemical substances released from all materials comply with the limit values for monolithic construction materials proposed by Netherlands in their Soil Quality Decree. Such results are of course satisfactory from the point of view of the environmental quality of the products because no adverse effect is to be expected for human and environmental health. The strong trapping of the most hazardous substances such as metallic and metalloid elements within sediment matrices can be explained by the fact that the use of polymer is recognized as a treatment process that effectively reduces their environmental availability of contaminated wastes by physical trapping.

Table 6 Comparison of cumulative release of Ba, Co, Cu, V and sulfates (mg/m²) at 64 days in the monolith leaching test with regulatory leaching limits established in Netherlands within the Soil Quality Decree (SQD).

Formulations		30% sediment and 70% sand						50% sediment and 50% sand						
Quantity of resin (%)		12	14	16	18	20	25	12	14	16	18	20	25	SQD leaching limits *
Parameters	Ba	9.19	7.108	7.108	-	-	-	9.01	6.83	7.92	8.82	6.77	2.2	1,500
	Co	7.87	9.54	8.35	1.5	1.8	1.7	16.16	12.53	8.2	5.37	1.77	1.43	60
	Cu	28.06	28.51	27.45	4.21	11.2	4.2	31.41	32.41	21.16	8.43	3.22	4.14	98
	V	-	-	-	-	-	-	1.99	1.84	1.15	0.93	0.43	0.38	320
	sulfate	994	954	1.346	853	-	-	2.050	1.911	2.669	2.569	2.376	-	165.000

4. Conclusion

The present study assessed the release of inorganic substances from polymer mortar samples including dredged sediment as replacement of sand fraction, these construction products are typically used for floor covering in Europe. A diffusion test with sequential renewal of water was performed in lab conditions for different resin epoxy concentration and sediment incorporation rate. This test was conducted according to specifications described in the standard NF EN 15863. It can be concluded that release of soluble substances is very limited in these hydrodynamic conditions. It is particularly true for high epoxy resin concentration leachates where no trace element, except small quantities of barium, cobalt, copper, and vanadium, are quantified. Their leaching is mainly controlled by diffusion in the first renewal steps and then the depletion is observed for all formulations. This is because of the low hydraulic conductivity (low porosity and water absorption) and the low polarity of the polymer binder of these specimens. The percentage of sediment include in polymer mortars play an important on the leaching of sulphates and major elements (Ca, Fe, K, Mg) by improving their diffusion/dissolution/surface leaching at the highest incorporation rate (50%). No adverse effect is to be expected for environmental health from the leachates of these polymer mortars, because all the measured parameters were below Soil Quality Decree limits established in Netherlands. These data about environmental performances of road construction materials including dredged sediments are the first to be published, and may serve as a basis for identifying the amounts of hazardous substances that such construction products may release in waters. They are of great interest for potential users of secondary raw materials and required for CE-marking procedure of construction products. Finally, it seems that pollution of runoff water is more related to chemical products applied on the polymer mortars than to materials themselves. However, extrapolation of these results to field conditions must be done with great caution because very different hydrodynamic conditions (L/A ratio, leachate renewal ...) and evolution of the construction materials under climatic changes (degradation, oxidation of polymer matrix ...) may be observed during floor covering use. Moreover, further experiments should be performed on a larger panel of dredged sediments to gain a better knowledge of their potential to release substances to water.

5. Acknowledgements

This research was launched within the framework SEDIMATERIAUX in Hauts-de-France region in France by IMT Lille Douai and NEO-ECO Recycling company. The research project called “SEDIPLAST” was financed by FEDER funds between 2015 and 2018.

6. Reference

- [1] M. Samara, Z. Lafhaj, C. Chapiseau, Valorization of stabilized river sediments in fired clay bricks: factory scale experiment, *J. Hazard. Mater.* 163 (2009) 701–710. doi:10.1016/j.jhazmat.2008.07.153.
- [2] A. Mezencevova, N.N. Yeboah, S.E. Burns, L.F. Kahn, K.E. Kurtis, Utilization of Savannah Harbor river sediment as the primary raw material in production of fired brick, *JOURNAL OF ENVIRONMENTAL MANAGEMENT*. 113 (2012) 128–136.
- [3] I. Said, A. Missaoui, Z. Lafhaj, Reuse of Tunisian marine sediments in paving blocks: factory scale experiment, *Journal of Cleaner Production*. 102 (2015) 66–77. doi:10.1016/j.jclepro.2015.04.138.
- [4] F.K.A.- Benslafa, D. Kerdal, M. Ameer, B. Mekerta, A. Semcha, Durability of Mortars Made with Dredged Sediments, *Procedia Engineering*. 118 (2015) 240–250. doi:10.1016/j.proeng.2015.08.423.
- [5] M. Amar, M. Benzerzour, N.-E. Abriak, Y. Mamindy-Pajany, Study of the pozzolanic activity of a dredged sediment from Dunkirk harbour, *Powder Technology*. 320 (2017) 748–764. doi:10.1016/j.powtec.2017.07.055.
- [6] K. Hamer, A. Hader, T. Muschalla, J. Schröter, G. Timmer, Light Weight Aggregates made from Dredged Harbour Sediments, *J Soils & Sediments*. 3 (2003) 284. doi:10.1065/jss2003.04.077.
- [7] M.-F. Hung, C.-L. Hwang, Study of fine sediments for making lightweight aggregate, *Waste Manag Res.* 25 (2007) 449–456. doi:10.1177/0734242X07077615.
- [8] H.-J. Chen, M.-D. Yang, C.-W. Tang, S.-Y. Wang, Producing synthetic lightweight aggregates from reservoir sediments, *Construction and Building Materials*. 28 (2012) 387–394. doi:10.1016/j.conbuildmat.2011.08.051.
- [9] Y.-L. Wei, J.-C. Yang, Y.-Y. Lin, S.-Y. Chuang, H.P. Wang, Recycling of harbor sediment as lightweight aggregate, *Marine Pollution Bulletin*. 57 (2008) 867–872. doi:10.1016/j.marpolbul.2008.03.033.
- [10] H.Y. Wang, Y.N. Sheen, M.F. Hung, Performance characteristics of dredged silt and high-performance lightweight aggregate concrete, *Computers and Concrete*. 7 (2010) 53–62. doi:10.12989/cac.2010.7.1.053.

- [11] Y. Mamindy-Pajany, Contribution à la gestion environnementale des sédiments marins non-immérgeables provenant de sites portuaires : Approche couplée (Géo) chimie - Ecotoxicologie - Génie Civil, 2018.
- [12] I. Ennahal, W. Maherzi, Y. Mamindy-Pajany, M. Benzerzour, N.-E. Abriak, Eco-friendly polymers mortar for floor covering based on dredged sediments of the north of France, *Journal of Material Cycles and Waste Management*. (2019). doi:10.1007/s10163-019-00843-3.
- [13] Report from the commission to the European Parliament and the Council on the implementation of Regulation (EU) No 305/2011 of the European Parliament and of the Council of 9 March laying down harmonised conditions for the marketing of construction products and repealing Council Directive 97/106/EEC, (2016),
- [14] R.T. Eikelboom, E. Ruwiel, J.J.J.M. Goumans, The building materials decree: an example of a Dutch regulation based on the potential impact of materials on the environment, *Waste Management*. 21 (2001) 295–302. doi:10.1016/S0956-053X(00)00103-3.
- [15] P. Suer, O. Wik, M. Erlandsson, Reuse and recycle — Considering the soil below constructions, *Science of The Total Environment*. 485–486 (2014) 792–797. doi:10.1016/j.scitotenv.2014.03.044.

CONCLUSION GÉNÉRALE

Les travaux de cette thèse s'inscrivent dans une démarche de développement durable, avec pour objectif de fournir des réponses à la problématique de la gestion des sédiments de dragage au travers le développement de nouveaux traitement pour la valorisation de ces matériaux dans le domaine du génie civil. A ce jour, la plupart des travaux de recherche réalisés dans le domaine de la valorisation des sédiments se sont focalisés sur l'optimisation des méthodes et techniques visant à substituer des matériaux nobles par du sédiment dans des matrices cimentaires. Cependant, la nature et la complexité de la composition chimique des sédiments constituent des facteurs limitant pour une valorisation pérenne de ces matériaux.

Les travaux menés dans le cadre de cette thèse ont pour objectifs d'étudier différentes possibilités de valorisation des sédiments non inertes non dangereux (marins, fluviaux) dans des matrices polymères thermodurcissables (époxy, polyester) ou thermoplastiques (issus du tri des déchets). Ceci dans l'optique de mettre en place une nouvelle méthode de traitement des sédiments de dragage et de curage en vue de leur réutilisation. Dans son contenu, ce travail porte plus particulièrement sur les points suivants :

- L'optimisation des formulations de mortiers polymères, à travers la maîtrise des volumes de la matrice polymère et de l'arrangement granulaire ;
- L'identification des facteurs essentiels qui influencent les propriétés des mortiers polymères contenant des sédiments ;
- L'évaluation de la conformité technique et environnementale des formulations via des essais physico-mécaniques, thermiques et chimiques.

Le premier chapitre a été consacré, dans un premier temps, à l'étude bibliographique sur les origines, les compositions, les filières de valorisation des sédiments ; dans un deuxième temps, une étude détaillée sur les matériaux à matrice polymère a été réalisée, en mettant l'accent sur les facteurs qui jouent un rôle déterminant sur les propriétés et performances des mortiers/bétons polymères. D'après cette étude bibliographique, il s'avère que les performances des mortiers/bétons polymères dépendent de la nature de la résine, de son taux d'application dans les formulations et des conditions de cure des matériaux formulés. Par exemple, il s'avère que les résines époxy permettent d'avoir de meilleures performances que les résines polyester. Aussi, les performances des mortiers/bétons dépendent de la nature et de

la forme des granulats. En effet, l'utilisation des granulats de forme arrondie ou sphérique, comme les cendres volantes permet d'avoir de meilleures performances.

Le deuxième chapitre est constitué de deux études sur la formulation de mortiers polymères à matrice thermodurcissables. La première partie était consacrée à l'étude de l'influence du taux de la résine époxy et de sédiments fluviaux dans les formulations. Les résultats des essais physiques montrent que la densité apparente du mortier témoin est plus grande par rapport au mortier à base de sédiments. Les résultats des essais mécaniques montrent que les propriétés mécaniques liées à la quantité de la résine, type et quantité de la charge, la résistance du mortier témoin augmente lorsque la quantité de résine augmente jusqu'à atteindre un optimum autour de 20%. Par contre les résistances des mortiers de sédiments sont proportionnelles au taux de résine dans les formules. La porosité des mortiers à base de sédiments diminue lorsque la quantité de la résine augmente. Par ailleurs, on note que l'absorption d'eau augmente lorsque le pourcentage de sédiment augmente et que la fraction massique du liant diminue pour toutes les formulations. La résistance aux chocs thermiques a été observée juste sur les formulations où la quantité de résine est de 12%. Les concentrations des éléments chimiques des mortiers à base de sédiments sont inférieures ou égales à celles des sédiments bruts utilisés dans les formulations.

La deuxième partie de l'étude dans ce chapitre présente les résultats de caractérisation des mortiers polymères à matrices polyester (marines et fluviaux) pour une application en revêtements de sols selon le référentiel UPEC. Pour les pourcentages de porosité des matériaux formulés, on constate que la porosité de la formulation témoin est égale à 1,52%, alors que pour les formulations à base de sédiments fluviaux et marins elles sont de 2,57 % et 2,39%, respectivement. Ce paramètre est corrélé positivement à l'absorption d'eau des mortiers polymères. Concernant le comportement mécanique, les résistances diminuent avec l'introduction des sédiments dans les formulations mais restent supérieures à celles classiquement observées sur des mortiers à matrices cimentaires.

Le troisième chapitre reporte les résultats de l'étude de formulation des sédiments marins et fluviaux dans une matrice thermoplastique. L'application visée est celle des granulats légers composites pour mortiers/bétons hydrauliques. La charge minérale correspond aux sédiments et le liant est de nature thermoplastique. La production des granulats légers a été réalisée par extrusion via un système bi-vis co-rotative à des températures comprises entre 200 et 230°C. Les résultats de la caractérisation physico-mécanique indiquent que ces granulats présentent des performances équivalentes voire plus intéressantes que des agrégats naturels de calcaire,

de porphyre, de granite ou encore de granulats légers d'argiles expansées. Pour ce qui est de l'utilisation de ces granulats dans des mortiers en remplacement de sables naturels, les résultats montrent une ségrégation des granulats pour le mortier formulé avec un dosage de 400 Mg/m³ de ciment. Concernant les résistances mécaniques une baisse a été enregistrée dans les mortiers hydrauliques incorporant les granulats légers. Ceci a été justifié par le manque d'adhérence entre les granulats légers et la matrice cimentaire mais qui pourrait être potentiellement améliorée par des traitements de surface.

Le dernier chapitre de la thèse aborde la question de l'acceptabilité environnementale des matériaux fabriqués dans le cadre du Règlement Européen sur les Produits de Construction (RPC). Contrairement à l'essai sur matériaux fragmentés, on s'intéresse ici aux substances relarguées par le matériau en fonction de la surface exposée plutôt que la masse, en conséquence, le volume de lixiviat par fraction est choisi en fonction de la surface du monolithe avec un ratio L/A (liquide/ surface). Les substances chimiques inorganiques quantifiables sont relativement limitées, seuls le baryum, le cobalt, le cuivre, le vanadium et les sulfates sont systématiquement mesurés dans certaines formulations ceci étant variable en fonction du taux de sédiment incorporé. Ces résultats s'expliquent par le fait que l'utilisation de liants thermodurcissables est reconnue comme un procédé de traitement limitant efficacement la porosité des mortiers composites tout en limitant les contacts entre l'eau et les granulats de la matrice. Enfin, la confrontation des données de relargage avec les seuils du référentiel de conformité environnementale développé aux Pays-Bas dans le cadre du « Soil Quality Decree » a permis de valider l'ensemble des formulations intégrant 30 et 50% de sédiments.

Afin d'approfondir et de valider les pistes exposées dans ce mémoire, il serait nécessaire d'optimiser les conditions et les techniques de mise en forme, de cure et de définir un modèle numérique de prédiction du comportement mécanique des mortiers polymères. Par ailleurs, il est aujourd'hui possible de passer à une production à grande échelle de matériaux de construction à matrices polymères et leur commercialisation (industrielle ou semi-industrielle). Pour ce faire une étude économique semble indispensable pour envisager sereinement le développement de cette nouvelle filière de valorisation.

RESUME

Valorisation des sédiments de dragage dans des matrices polymères

En France, les volumes de sédiments de dragage générés chaque année pour la maintenance des ports et des voies navigables sont estimés à environ 50 millions de mètres cubes. La gestion de ces sédiments représente un enjeu économique, social et environnemental pour les gestionnaires. Aujourd'hui, l'une des solutions privilégiées est le développement de la gestion à terre de ces matériaux, qui consiste à les réutiliser comme matières premières secondaires en substitution partielle ou totale de matières nobles. De nombreux travaux de recherche ont été effectués sur la problématique de la valorisation des sédiments de dragage et de curage et de nouvelles filières sont actuellement toujours à l'étude (ciments, enrochements pour travaux maritimes et fluviaux, bétons cellulaire, granulats artificiels, etc.). Ce travail de thèse s'inscrit dans un contexte d'économie circulaire et vise à permettre le développement d'une gestion durable et responsable des ressources naturelles non renouvelables. Ceci à travers la réutilisation des sédiments de dragage dans la formulation de matériaux composites traités par des liants thermodurcissables ou thermoplastiques. Ainsi, après un travail de synthèse bibliographique sur les principales propriétés des sédiments de dragage, les méthodes de formulation des mortiers polymères et les modalités d'intégration des matériaux alternatifs dans ces matrices ont été décrites. Les expérimentations portent plus particulièrement sur la formulation de matériaux à partir de polymères thermodurcissables (résines de type Epoxy ou Polyester) et thermoplastiques (plastiques recyclés issus du tri des déchets). La validation des performances techniques des formulations optimisées pour chacun des traitements a été effectuée pour des usages en revêtements de sols ou en granulats légers dans des bétons hydrauliques. Enfin, la dernière partie de la thèse a été consacrée à l'étude de l'acceptabilité environnementale des nouveaux matériaux à travers la réalisation des essais de lixiviation dynamique sur monolithes. Les travaux menés ont permis de démontrer la faisabilité technique et environnementale de la valorisation des sédiments en tant que charge minérale dans des matrices polymères, avec des taux d'incorporation de sédiments significatifs pouvant atteindre jusqu'à 80%. Ce qui confirme l'intérêt de cette typologie de traitement pour la valorisation des sédiments de dragage.

Mots Clés : Sédiments de dragage, Valorisation, Liant thermoplastique recyclé, Liant thermodurcissable, Compacité granulaire, Acceptabilité environnementale

ABSTRACT

Valorization of dredged sediments in polymers matrix

In France, the volume of dredged sediments generated each year through maintenance of ports and waterways, is estimated at around 50M cubic meters. The management of these sediments represents an economic, social and environmental stake for the managers of the waterways. Today, one of the solution is the onshore management of these sediments, which consists on their reuse as secondary raw materials in partial or total substitution of natural materials for civil engineering applications such as sub-base road materials, embankments, concrete, bricks/tiles, and cement production.

In this context this study was initiated in order to define a long-term value chain for dredging sediments for a sustainable and responsible management of natural resources. This through the valorization of dredged sediments in polymer matrix mortar formulations. Indeed, this research presents an innovative solution that preserves natural resources by promoting the use of local resources, such as dredged sediments. In order to achieve this objective, the study included several phases: the first part is devoted to the state of the art concerning dredged sediments, polymer mortars and the recovery of waste in polymer mortars.

In the second part, we studied recovery of sediment in thermosetting matrix polymers (Epoxy-Polyester). In the third part we studied the possibilities of incorporating sediments in recycled thermoplastic matrix. The materials from this combination have been used as lightweight aggregates for mortar formulation. Finally, in the last part was devoted to environmental monitoring of new formulated materials. This is done through leaching tests carried out on crushed samples and monoliths, to ensure the environmental safety of these materials. The results obtained with the different formulations tested, show the technical and environmental feasibility of valorization of sediments as mineral filler in polymer mortars, with sediment incorporation rates range between 50 and 80%. Indeed, the use of a polymer matrix makes it possible to have better physico-mechanical and chemical results compared with cementitious matrix mortars.

Keywords : Sediment dredging, Valorization, Recycled thermoplastic binder, Thermosetting binder, Granular compactness, Environmental acceptability