

Fixation du CO₂ par carbonatation de granulats recyclés compactés

Yunlu HOU^{1, 2}, Pierre-Yves MAHIEUX¹, Jérôme LUX¹, Philippe TURCRY¹, Abdelkarim AÏT-MOKHTAR¹

¹Laboratoire des Sciences de l'Ingénieur pour l'Environnement (LaSIE), UMR CNRS 7356, La Rochelle Université, Avenue Michel Crépeau, 17000 La Rochelle France.

²Agence de l'environnement et de la Maîtrise de l'Énergie 20, avenue du Grésillé- BP 90406 49004 Angers Cedex 01 France.

RESUMÉ : Les granulats recyclés sont des matériaux de construction obtenus par concassage et criblage des déchets inertes du BTP sur des plateformes de recyclage. Ce sont des matériaux complexes et majoritairement composés de matière minérale, telles que les bétons de démolition. En raison de cette spécificité cimentaire, ces travaux de recherche se sont focalisés sur la capacité de fixation du CO₂ par carbonatation minérale de sable recyclé compacté. Des éprouvettes cylindriques ont été placées dans quatre enceintes à humidité relative contrôlée, incluant une condition de carbonatation accélérée (53±5% HR, 95±5% HR, 65±5% HR et 65±5% HR avec 3% de CO₂). Les résultats montrent que ce sable recyclé compacté fixe jusqu'à 58 kgCO₂ par m³ de sable recyclé compacté en 1 an et que cette capacité de fixation est d'autant plus importante que l'humidité relative est faible ou que la concentration en CO₂ est élevée. Les granulats de béton contenus dans les granulats recyclés sont donc encore en mesure de se carbonater même s'ils sont issus de la démolition.

Mots-clés granulats recyclés, granulats recyclés compactés, carbonatation, construction routière

I. INTRODUCTION

En France, le secteur du BTP est le plus grand consommateur de matériaux naturels d'origine minérale puisque chaque année plus de 300 millions de tonnes de granulats sont extraits de l'écorce terrestre pour la construction (CGDD, 2018). En parallèle, plus de 200 millions de tonnes de déchets sont produits par an dont en moyenne 80 % de déchets inertes. À travers la directive cadre de l'Union Européenne sur les déchets 2008/98, la France doit stabiliser, voire réduire, le tonnage des déchets produits par le secteur du BTP et recycler 70% les déchets inertes et non dangereux. En 2014, ces déchets inertes étaient déjà valorisés à hauteur de 61% pour l'ensemble du secteur dont environ 20 Mt transformés sous la forme de Granulats Recyclés (GR) via des plateformes de recyclage (ADEME, 2017; CGDD, 2017). Les GR sont des matériaux en mélange composés pour l'essentiel de béton de démolition et, dans une moindre mesure, de pierres, de terre cuite et de matériaux bitumineux. Leurs propriétés dépendent fortement de la nature des déchets entrants et du processus de concassage. Actuellement, ils sont surtout utilisés par le secteur des travaux routiers comme matériau alternatif aux graves naturelles (couche de forme, assises de chaussée, remblais). (Mahieux *et al.*, 2016) ont montré que les GR étaient réactifs puisque les performances

mécaniques de ces matériaux, une fois compactés, étaient évolutives et très supérieures à celles de matériaux naturels compactés dans les mêmes conditions. D'après (Vegas *et al.*, 2011), cette évolution est attribuée à l'hydraulicité résiduelle des granulats de béton. (Jitsangiam *et al.*, 2015) ont observé de nouveaux hydrates à la surface des granulats de béton après 1 an de conservation (GR compactés à 95% de compacité et conservés à 80% d'humidité relative). Si la littérature met en avant l'hydraulicité résiduelle du ciment contenu dans les granulats de béton, on peut supposer que la réactivité n'est pas uniquement pilotée par ce phénomène mais aussi par l'arrangement du squelette granulaire après compactage et par d'autres phénomènes comme la carbonatation. L'objectif de ce travail est d'étudier un de ces leviers réactionnels à travers l'évaluation de la capacité de fixation du CO₂ par carbonatation d'un Sable Recyclé Compacté (SRC).

II. PROGRAMME EXPERIMENTAL

Le sable recyclé de fraction granulaire 0/6 mm (SR 0/6) est produit sur une plateforme de recyclage à La Rochelle. Ce sable est composé à 83% de granulats de béton de démolition, 16% de granulats naturels et 0.1% de terre cuite et enfin 0.6% de verre (essai de tri réalisé sur la fraction 4/6 du sable recyclé selon la norme (NF EN 933-11)). Des éprouvettes cylindriques de Sable Recyclé Compacté (SRC), de dimensions $\phi 5 \times h 5 \text{ cm}^3$ (soit 98.2 cm^3), ont été fabriquées à l'aide d'un moule en acier et d'une presse hydraulique de 100 kN. Pour chaque éprouvette, 170 g de sable recyclé séché à 105°C ont été humidifiés à raison de 10% de teneur en eau et ont été compactés en visant une compacité de 68%. Cette formulation a été optimisée pour atteindre une résistance initiale en compression axiale de 1 MPa. Plus de 240 éprouvettes de SRC ont été ainsi confectionnées et placées après compactage dans quatre enceintes climatiques (TABLEAU 1). D'abord, trois enceintes dites de « carbonatation naturelle » à différentes humidités relatives servent à matérialiser un environnement sec (HR 53%), très humide (HR 95%) et un environnement a priori favorable à la carbonatation naturelle (HR 65%). Dans la dernière enceinte dite de « carbonatation accélérée », la concentration en CO₂ est augmentée de ~0.05% à 3% dès lors que la masse des éprouvettes de SRC est stabilisée à 65% d'humidité relative, soit après une trentaine de jours.

TABLEAU 1. Conditions de conservation des éprouvettes de SRC

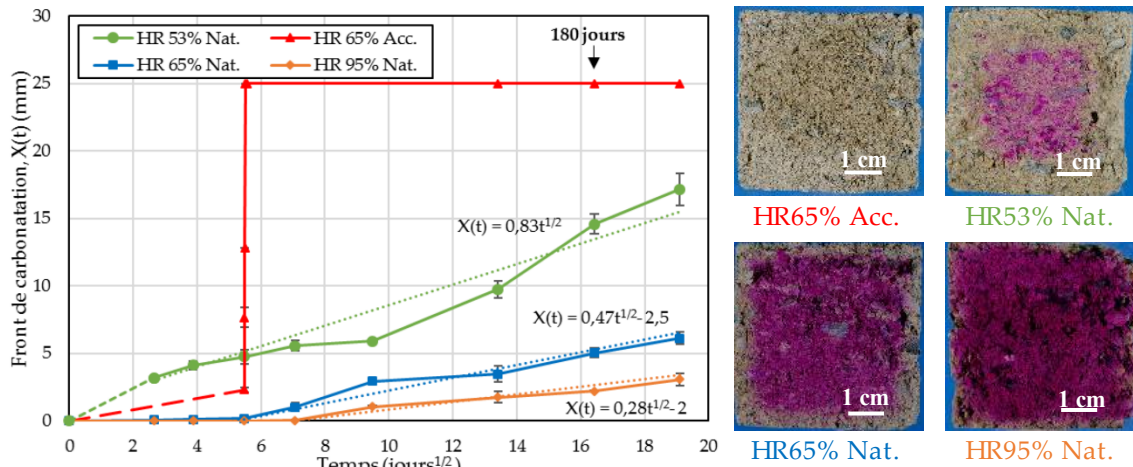
Conditions	Désignation	HR (%)	Concentration en CO ₂	Schéma enceinte climatique
Carbonatation naturelle (a)	HR 53% Nat.	53.5 ± 5	~ 0.05%	
	HR 65% Nat.	65 ± 5		
	HR 95% Nat.	95 ± 5		
Carbonatation accélérée (b)	HR 65% Acc.	65 ± 5	0.05% puis 3%	

La carbonatation des SRC a été évaluée par pulvérisation de phénolphthaléine sur des sections transversales d'éprouvettes fendues et par analyse thermogravimétrique ATG (quantification du

CaCO₃ contenu dans les SRC sur une plage de température entre 600 et 975°C). D'autres méthodes de caractérisation ont également été utilisées (suivi de masse, essais de diffusion gazeuse).

III. ANALYSE DES RESULTATS

La Figure 1 présente l'évolution des fronts de carbonatation dans les éprouvettes de SRC conservées dans les quatre ambiances en fonction du temps (jusqu'à 365 jours). Les quatre photographies complémentaires montrent les fronts de carbonatation sur sections transversales après pulvérisation de l'indicateur coloré à 180 jours.



À partir de la 1^{ère} Loi de Fick, l'évolution du front de carbonatation peut s'exprimer sous la forme $X(t) = A_c t^{1/2}$

Où A_c est le coefficient de carbonatation et peut s'exprimer sous la forme $A_c = \sqrt{\frac{2D_{CO_2}\Delta[CO_2]}{Q_{CO_2}}}$ (Kropp,1995);

Avec D_{CO_2} : Coefficient de diffusion effectif du CO₂; Q_{CO_2} : Quantité de produits carbonatables; $\Delta[CO_2]$: Différence de concentration en CO₂ entre l'air ambiant et le front de carbonatation.

FIGURE 1. Profondeurs de carbonatation en fonction de la racine carrée du temps d'exposition (gauche) ; Coupe transversale des échantillons après pulvérisation de la solution de phénolphthaléine à 180 jours (droite)

La figure 1 montre que, quelle que soit l'humidité relative dans les enceintes de carbonatation naturelle, le CO₂ diffuse dans le réseau poral des SRC, se dissout et acidifie la solution interstitielle. Les évolutions des fronts de carbonatation sont conformes au modèle « classique » de carbonatation (rappelé figure 1) puisqu' ils progressent en fonction de la racine carrée du temps. Les coefficients de carbonatation A_c , estimés à 0.28 mm/j^{1/2}, 0.47 mm/j^{1/2} et 0.83 mm/j^{1/2} respectivement pour une HR de 95, 65 et 53%, sont dépendants à la fois des coefficients de diffusion du CO₂, de la concentration en CO₂ ambiante et des quantités de phases minéralogiques carbonatables présents dans le sable recyclé. Si l'on considère que ces deux derniers paramètres sont constants pour les trois enceintes en carbonatation naturelle, le coefficient de diffusion du CO₂ est impacté par le degré de saturation en eau des SRC. Les coefficients de diffusion de CO₂ déterminés à l'aide d'une cellule de diffusion développée par (Gendron, 2019) le confirment puisque l'on relève 10.9·10⁻⁸ m²/s, 2.9·10⁻⁸ m²/s, 2.5·10⁻⁸ m²/s respectivement pour 53, 65 et 95% HR, après mise à l'équilibre hydrique dans ces trois ambiances.

Un décalage à l'origine significatif est même observé à 65% et 95 % HR. Le séchage des SRC est d'autant plus rapide que l'humidité relative est faible. Avec un degré de saturation élevé juste après compactage (S=80%), le CO₂ ne peut donc que difficilement diffuser à court terme. Cet effet est

d'autant plus visible à 65 et 95% HR compte tenu de l'état d'équilibre initial des SRC et de la périodicité de la mesure (1^{ère} mesure à 7 jours).

Pour l'enceinte de carbonatation accélérée, on relève deux cinétiques distinctes de carbonatation. La première est assez proche de celle dans l'enceinte de carbonatation naturelle, puisque les conditions (concentration en CO₂ et HR) sont identiques pendant les 30 premiers jours. Néanmoins, les ventilateurs placés dans l'enceinte de carbonatation accélérée pour homogénéiser l'air accentuent la cinétique de séchage et donc la cinétique de carbonatation. La seconde cinétique est bien plus rapide puisque les SRC se sont totalement carbonatés en moins de 8 heures dès lors que la concentration en CO₂ passe de 0.05% à 3%. Dans cette partie, c'est le gradient de concentration qui pilote en grande partie la carbonatation.

Cette campagne expérimentale montre qu'un sable recyclé fixe du CO₂ après compactage. Ce résultat est d'autant plus intéressant que le béton de démolition contenu dans le sable recyclé s'est très probablement carbonaté au cours de sa « vie en œuvre » et pendant la période de stockage après concassage et criblage sur la plateforme de recyclage. Les ATG confirment cette carbonatation puisque qu'après 180 jours, les proportions de CaCO₃ dans les zones carbonatées sont augmentées de 3.1%, 4.7%, 5.5%, 8.2% respectivement pour les ambiances HR 95%, 65%, 53% Nat et 65% Acc. Au final, le SR fixe jusqu'à 58 kg de CO₂ par m³ de matériau compacté.

IV. CONCLUSION

L'étude présentée met en avant un aspect de la réactivité d'un granulats recyclés compactés. Composé à plus de 80% de béton de démolition, il est intéressant de constater que ce matériau est encore en mesure de fixer du CO₂ par carbonatation. Comme dans le cas des bétons de construction, cette carbonatation dépend de l'environnement dans lequel il est placé. Il s'agit maintenant d'évaluer si cette carbonatation permet de cimenter les grains entre eux et donc d'améliorer les propriétés mécaniques du matériau compacté.

Remerciements : Ce travail est financé par l'Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie (ADEME) et par la Région de Nouvelle Aquitaine en France.

REFERENCES

- ADEME, 2017. Déchets du bâtiment. ADEME. <https://www.ademe.fr/dechets-batiment>.
- CGDD, 2018. Le recyclage des déchets produits par l'activité de BTP en 2014. <https://www.statistiques.developpement-durable.gouv.fr/>.
- CGDD, 2017. Entreprises du BTP : 227,5 millions de tonnes de déchets en 2014.
- Jitsangiam, P., Boonserm, K., Phenrat, T., Chummuneerat, S., Chindaprasirt, P., Nikraz, H., 2015. Recycled Concrete Aggregates in Roadways: Laboratory Examination of Self-Cementing Characteristics. *J. Mater. Civ. Eng.* 27, 04014270. [https://doi.org/10.1061/\(ASCE\)MT.1943-5533.0001245](https://doi.org/10.1061/(ASCE)MT.1943-5533.0001245)
- Gendron, 2019. Thèse de doctorat intitulée : « Carbonatation des matériaux cimentaires - Étude de la diffusion du CO₂ », LaSIE, La Rochelle Université, 2019.
- Kropp, 1995. Relations between transport characteristics and durability, RILEM - Technical Committee 116-PCD – Performance Criteria for Concrete Durability, Report n° 12, 97-137, 1995.
- Mahieux, P.-Y., Turcry, P., Lux, J., Audo, M., Hamdoun, H., Nelfia, L.O., Aït-Mokhtar, A., 2016. Déchets inertes du BTP : Vers de nouvelles voies de recyclage. CNRIUT 2016 : 8-9 Juin 2016, NANTES
- NF EN 933-11, 2009. Essais pour déterminer les caractéristiques géométriques des granulats - Partie 11: essai de classification des constituants de gravillons recyclés.
- Vegas, I., Ibañez, J.A., Lisbona, A., Sáez de Cortazar, A., Frías, M., 2011. Pre-normative research on the use of mixed recycled aggregates in unbound road sections. *Construction and Building Materials* 25, 2674–2682. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2010.12.018>