



Procédé innovant pour développement d'un béton d'argile auto-plaçant

Gnanli LANDROU, Coralie BRUMAUD, Guillaume HABERT

Article disponible dans les actes du colloque Terra 2016:

JOFFROY, Thierry, GUILLAUD, Hubert, SADOZAÏ, Chamsia (dir.) 2018, *Terra Lyon 2016: Articles sélectionnés pour publication en ligne / articles selected for on-line publication / artículos seleccionados para publicación en línea*. Villefontaine : CRAterre. ISBN 979-10-96446-12-4.

RESUME

Dans le secteur de la construction, le ciment est responsable de 8% des émissions carbone et cette valeur augmente avec la croissance de la population urbaine. Il est de ce fait urgent de développer des matériaux constructifs alternatifs. Avec des possibilités infinies de recyclage et sans nécessité de transport, le matériau terre est l'un des matériaux de construction ayant un impact environnemental quasi-nul.

Le but de cette étude est de développer un béton de terre coulé et pas cher d'utilisation avec un impact environnemental faible. Les mesures rhéologiques et de zêta potentiels effectuées montrent que le sodium silicate (NaSil) et le sodium hexametaphosphate (NaHMP) réduisent la contrainte seuil d'écoulement de la pâte de terre. Ils confèrent au matériau une meilleure maniabilité avec très peu d'eau pour pouvoir être coulé : **déflocculation**. L'adsorption des dispersants à la surface des particules d'argile augmente les forces répulsives : avec une action électrostatique pour NaHMP et une combinaison électro-stérique pour NaSil. L'ajout d'hydroxyde de calcium caractérisé par des essais rhéologiques oscillatoires permet une meilleure compréhension de la structuration des particules d'argile : **coagulation**. Le calcium présent en solution réagit avec l'argile et les dispersants pour précipiter du calcium silicate hydrate et de l'hydroxyapatite, observés par DRX.

INTRODUCTION

Avec des possibilités infinies de recyclage et sans nécessité de transport, le matériau terre est l'un des anciens matériaux de construction ayant un faible impact environnemental (Anger, Fontaine 2009). De plus, il fournit une régulation thermique très efficace des espaces de vie intérieurs. Récemment, nous observons un essor mondial de la construction en terre dû à des préoccupations environnementales.

Cependant, le développement de la construction en terre est limité de par les techniques conventionnelles de construction en terre ainsi que par la facilité d'utilisation des matériaux cimentaires (Schneider, Romer *et al.* 2011). Bien qu'un grand nombre d'études scientifiques sont menées sur le ciment et le béton enfin d'optimiser leurs performances et de réduire leur impact carbone résultant de leur production, très peu d'améliorations techniques ont été apportées au matériau terre (van Damme 2013). Toutefois, les études récentes menées par CRATerre France et l'université de Mokpo (Kang 2011) ont permis d'initier le développement de la terre coulée.

L'objectif de cette étude est d'étudier ce matériau facile à utiliser que le béton mais avec un impact environnemental négligeable et une durée de décoffrage de 24 heures en effectuant un transfert de technologie de la science des céramiques, de la technologie du béton vers la terre. Cela est possible car l'argile et le ciment jouent des rôles similaires de liant et sont analogues en termes d'interactions colloïdales et des forces d'adhérences (Pellenq, Lequeux *et al.* 2008). Dans cet article, nous nous concentrons sur le développement du béton d'argile auto-plaçant basé sur deux procédés : (i) la **déflocculation** à l'aide des plastifiants connus pour garantir une fluidité des suspensions concentrées d'argile et (ii) la **coagulation** obtenue à travers l'introduction d'ions calcium qui interagissent à la fois avec la surface des particules d'argile et avec les dispersants des argiles afin de retirer le coffrage au bout d'un jour.

1 . CONSTAT EXPERIMENTAL

Lors de cette étude, une terre commerciale provenant de Stroba® ($S_{BET} (m^2/g)=46.91$; $d_{median}=17.22 \mu m$) et de l'argile kaolinite pure d'Alberto Luisoni AG ($S_{BET} (m^2/g)=9.07$; $d_{median}=8.69 \mu m$) ont été utilisées. La composition chimique obtenue par fluorescence de rayons X(XRF) est donnée dans le tableau 1.

	SiO ₂	TiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	K ₂ O	Autres	LOI
Terre	65.80%	1.18%	14.91%	7.43%	2.38%	2.84	5.02%
Kaolin FP80	48.02%	0.33%	35.98%	0.44%	1.29%	0.24	12.41%

Tableau 1. Analyse XRF pour la composition chimique de la terre et la kaolinite étudiées

Les dispersants étudiés sont issus de l'industrie céramique: le sodium hexametaphosphate (noté ici NaHMP) et une solution de silicate de sodium(noté ici NaSil) avec une composition de 10.6% et 26.5% respectivement pour Na₂O et SiO₂. L'hydroxyde de calcium(CaOH₂) a été utilisé comme coagulant.

1.1. Déflocculation

Afin d'étudier l'effet des agents dispersants sur la pâte de terre, les mesures rhéologiques ont été effectuées sur des pâtes de terre ayant un ratio eau sur terre de 0.5(W/E=0.5), mélangé 3 min à 365 rpm à l'aide d'un agitateur mécanique. Tous les dosages de dispersants sont exprimés en pourcentage de la masse des matières solides dans le système et l'eau utilisée est dé-ionisée. Les mesures de rhéologie ont été effectuées en utilisant un rhéomètre à contrainte imposée (MCR501 Anton Paar®), équipé d'une géométrie à ailettes (géométrie Vane).

La Figure 1a) montre l'évolution du seuil d'écoulement en fonction du pourcentage de dispersant introduit. Comme attendu, en présence des dispersants, la contrainte seuil d'écoulement diminue, ce qui améliore la fluidité et donc la maniabilité de la pâte. Le comportement rhéologique des suspensions d'argile étant contrôlé par la charge de surface des particules d'argile, les dispersants modifient la charge de surface de l'argile(Andreola, Castellini et al. 2007).Par ailleurs, les mesures de ζ potentiel faite sur la suspension (8wt%) concentrée de terre avec le ZetaProbe (Colloidal Dynamics®) donnent une indication sur la charge de surface des particules d'argile en suspension. Les valeurs de potentiel ζ -mesurées (tableau 2) pour la pâte de terre de référence et celles préparées avec 0.2% NaHMP et 0,3%NaSil confirment l'action des dispersants sur les particules d'argiles en augmentant leur charge de surface par un facteur proche de deux et plus.

	Reference	0.2% NaHMP	0.3% NaSil
Moyenne ζ [mV]	-4.6	-13.4	-9.7
SD [mV]	±0.1	±0.4	±0.2

Tableau 2: Valeur du potentiel Zéta pour la terre de référence, la terre préparée avec 0.2% NaHMP et celle préparée avec 0.3% NaSil

Au vu de ses résultats, nous sommes en mesure de déterminer les dosages de NaSil et NaHMP requis pour disperser la pâte de terre tout en assurant une homogénéité et une stabilité de la suspension. De plus, ce résultat confirme le fait que ces adjuvants inorganiques dispersent les particules d'argile en augmentant les forces répulsives entre les particules.

1.2. Coagulation

Pour étudier la coagulation, le module élastique des pâtes a été mesuré au cours du temps en imposant une fréquence constante de 1Hz et en appliquant une contrainte également constante de 1Pa durant 6 heures. Ce test permet de suivre les changements structuraux qui se déroulent dans le temps dans notre système après addition des dispersants et du coagulant. L'hydroxyde de calcium $\text{Ca}(\text{OH})_2$ a été introduit dans le mélange terre dispersée afin d'étudier son effet sur la rhéologie, et sa capacité à coaguler les particules dans un délai de 24 heures. A cet effet, les dosages ont été calculés de manière à présenter la même quantité de calcium dans le système (indépendamment de la solubilité). Les rapports Ca/Si (pour NaSil) et Ca/P (pour NaHMP) sont respectivement fixés à 1,3 et 1.5. Le composé contenant du calcium a été introduit sous forme de poudre après le mélange de l'eau avec de la terre.

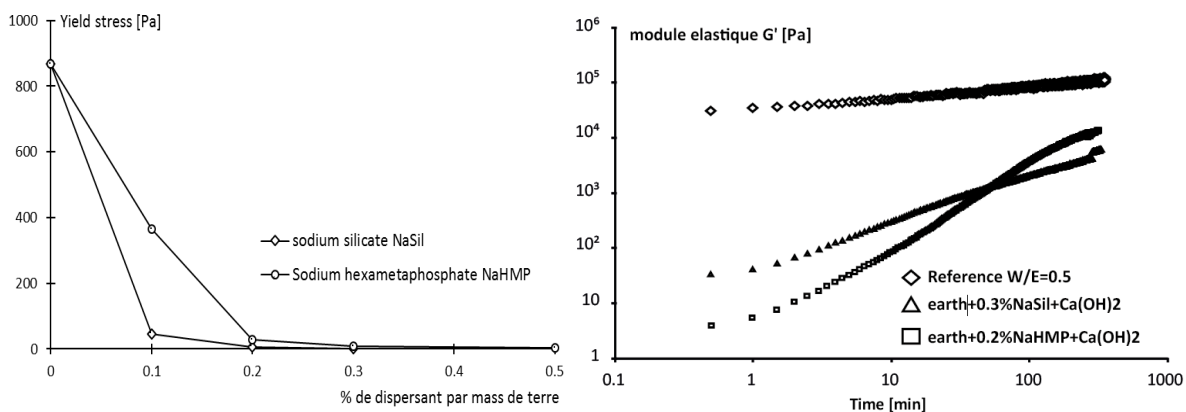


Figure 1. Effet des dispersants sur la contrainte seuil de la pâte de terre (a), évolution du module élastique en fonction du temps après addition du calcium avec 0.3% NaSil ou 0.2% NaHMP (b)

De manière générale, le module élastique augmente avec le temps (Fig1b). Ceci montre que le qu'une lorsque le calcium est ajouté au système, une coagulation différée au sein du matériau a lieu.

2 . COMPREHENSION DES MECANISMES

Les observations macroscopiques montrent que le développement de la terre auto-plaçante nécessite de disperser la terre pour une mise en forme facile. L'ajout d'hydroxyde de calcium accélère le procédé de coagulation. Bien qu'il soit possible de disperser et de coaguler la terre, il reste pertinent de comprendre les mécanismes et mode d'action des additifs afin de contrôler et d'améliorer le procédé.

2.1. Défloculation

Les mesures rhéologiques montrent que NaSil et NaHMP sont efficaces pour disperser la terre (Fig1a). Cependant, leur mode d'action reste inconnu. Pour comprendre le mécanisme de dispersion, nous nous sommes intéressés à des suspensions et des pâtes concentrées de kaolinite pure. Nous avons tracé l'évolution de la contrainte seuil d'écoulement en fonction du potentiel zêta au carré ζ^2 en prenant en compte la théorie DLVO qui prédit une évolution linéaire entre ces deux paramètres si l'interaction répulsive est électrostatique (Leong and Ong 2003). Les mesures rhéologiques et les mesures de

zêta potentiel sont réalisées aux mêmes dosages de dispersant afin de comparer les résultats.

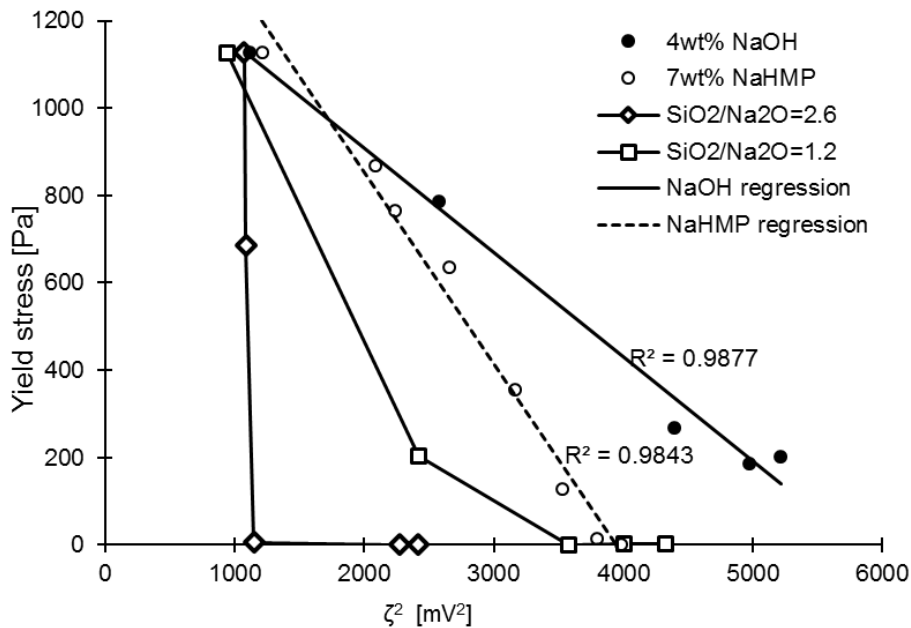


Figure 2 : Relation entre la contrainte seuil et le potentiel zêta au carré pour une suspension (8wt%) de kaolinite

Les résultats de ces expériences réalisées sur la kaolinite (Fig 2) montrent une évolution linéaire lorsque NaOH et NaHMP sont utilisés en tant que dispersant, ce qui n'est pas le cas lorsque NaSil est introduit. Ceci suggère que NaOH et NaHMP, selon la théorie DLVO, dispersent l'argile par un effet électrostatique alors que NaSil montre un effet combiné stérique/électrostatique qui dépend du rapport SiO₂/Na₂O.

2.2. Coagulation

Pour identifier les produits de réaction à l'origine de la coagulation, NaSil et NaHMP préalablement dissous dans l'eau sont mélangés avec Ca(OH)₂. Les produits de réaction sont séchés à l'étuve (60°C, 50mbar). La composition minéralogique des produits de réaction formés a été déterminée par diffraction des rayons X (DRX) sur des échantillons de poudre.

L'identification des pics des diagrammes de DRX (Fig. 3) montre la précipitation de deux phases principales : formation de plombiérite (quand Ca(OH)₂ mélangé avec NaSil), élément de structure du silicate de calcium hydraté (C-S-H)(Nonat 2004), et la formation de l'hydroxyapatite (HA) (mélange Ca(OH)₂ avec NaHMP) faisant partie de la famille de calcium phosphate. Des phases résiduelles de carbonate de sodium, de carbonate de calcium et d'hydroxyde de calcium sont obtenues provenant principalement de la méthode de séchage.

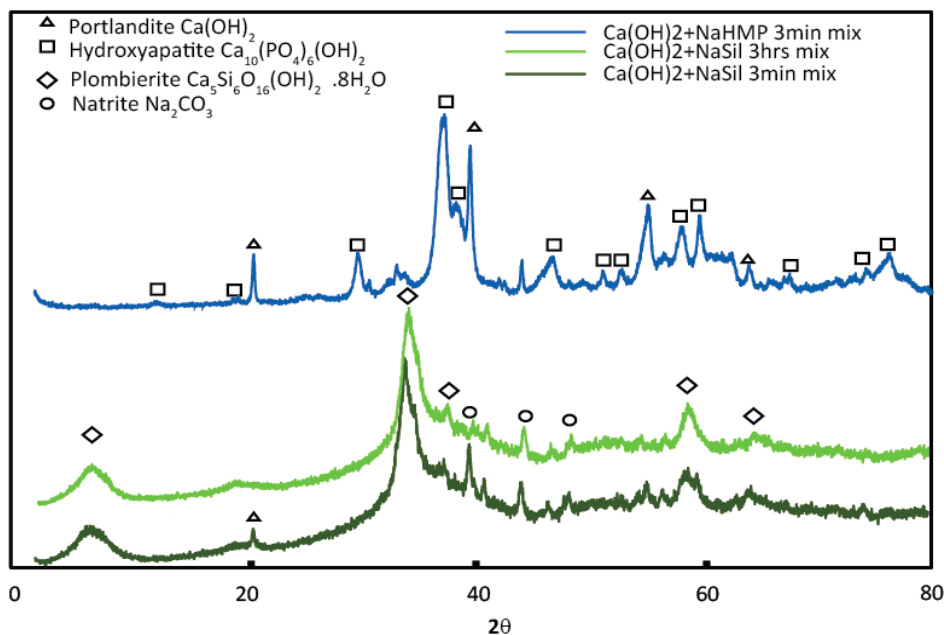


Figure 3 : Diagramme DRX des produits précipités en mélangeant Ca(OH)_2 avec NaSil ou NaHMP

En mélangeant du Ca(OH)_2 avec du NaSil, le diagramme DRX montre qu'au bout de 3 minutes, des pics de Ca(OH)_2 peuvent encore être identifiés, mais après 3 heures de mélange, les pics de Ca(OH)_2 ont disparu et les pics C-S-H sont plus dominants. Par contre l'utilisation de NaHMP montre une précipitation rapide d'hydroxyapatite (HA). Ces résultats confirment le mécanisme de la coagulation de la terre par addition d'un minéral à base de calcium. En outre, le processus implique un couplage de la dissolution de la portlandite et la précipitation du C-S-H et HA, ce qui retarde le processus de coagulation donnant le temps ouvert pour couler la pâte de terre dans le coffrage.

Sur la Figure 4, l'évolution du module élastique en fonction de la déformation de la pâte de terre montre que la déformation critique en présence du NaSil est de l'ordre de 15% alors que pour la pâte de référence et la terre défloculée puis coagulée, la déformation critique est de l'ordre de 1%.

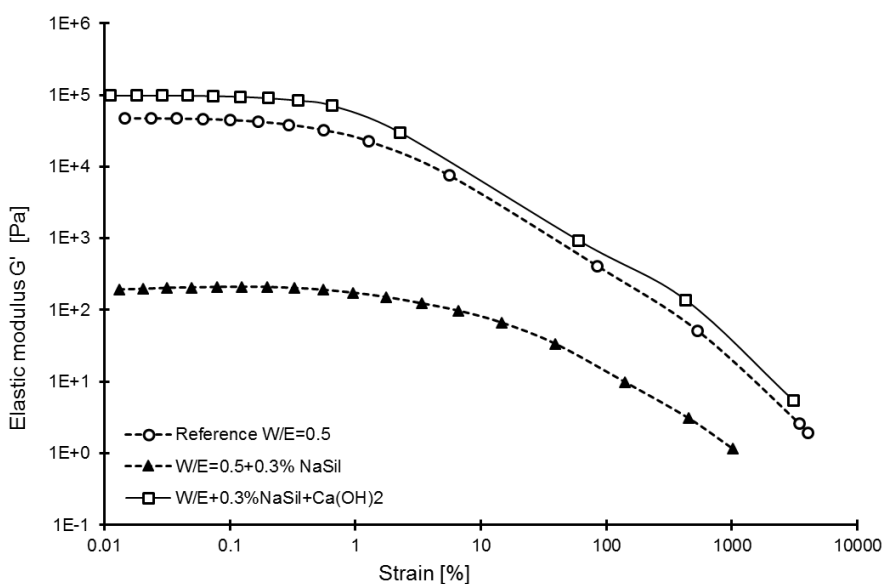


Figure 4. Evolution du module élastique en fonction de la déformation pour différent mixes

L'ordre de grandeur de la déformation critique met en évidence la capacité du réseau de structure de se déformer sous contrainte, et définit la nature des interactions. La Figure 4 montre deux choses : premièrement, le dispersant adsorbé à la surface des particules d'argiles est à l'origine de forces répulsives stériques mesurées. L'addition de NaSil éloigne les particules d'argile entre elles. Deuxièmement, l'addition de $\text{Ca}(\text{OH})_2$ permet de retrouver le même comportement que la terre de référence. Ceci suggère que la précipitation de C-S-H permet de retrouver le même état de coagulation : même module élastique et déformation critique. Étant donné que l'état initial est récupéré, la structure interne et le type d'interactions de la matière ne sont pas modifiés. L'hydroxyde de calcium joue le rôle d'anti-plastifiant et annihile l'effet du dispersant en solution.

3. CONCLUSION

Les stratégies qui ont été testées sont prometteuses et permettent le développement d'un béton d'argile auto-plaçant aussi simple à mettre en œuvre que le béton de ciment mais avec un impact environnemental négligeable. Grâce à une modification des propriétés des argiles avec des dispersants inorganiques et un minéral contenant du calcium, il est possible de disperser et retarder la coagulation de la pâte de terre. L'utilisation de NaSil et de NaHMP comme agents dispersants conduit à une réduction considérable de la contrainte seuil due à des interactions répulsives électro-stériques pour l'un et électrostatiques pour l'autre. De plus, l'addition d'hydroxyde de calcium à la terre dispersée induit la coagulation des particules d'argiles. Grâce à la dissolution lente du calcium hydroxyde qui libère des Ca^{2+} dans la solution interstitielle, la coagulation est retardée ce qui laisse un délai pour mettre en œuvre le produit final. Lors du processus de coagulation, les ions calcium libérés réagissent avec les argiles et dispersants pour former du C-S-H ou du HA qui annulent l'effet dispersant de NaSil et NaHMP sans toutefois changer le comportement de la terre.

Toutefois, il reste nécessaire de poursuivre le développement d'un béton d'argile auto-plaçant. En effet, ce processus permet de conserver le même matériau initial, mais pas d'améliorer sa cohésion interne et sa résistance. Par conséquent, une élimination supplémentaire de l'eau serait nécessaire afin de parvenir à une plus grande résistance.

REFERENCES

- Andreola, F., E. Castellini, G. Lusvardi, L. Menabue and M. Romagnoli (2007). "Release of ions from kaolinite dispersed in deflocculant solutions." *Applied Clay Science* **36** (4): 271-278.
- Anger, R., L. Fontaine (2009). *Bâtir en terre: du grain de sable à l'architecture*.
- Kang, N. H., H (2011). study on high strengthening of an earth wall using earth and high performance lime In: Heyzoo Hwang HG, and David Gandreau. *2011 International conference on earth architecture in Asia*. . T. 2011. Mokpo, Republic of Korea.
- van Damme H., (2013). "La terre, un béton d'argile" *Pour la Science - n°423, Physico-chimie*: 50-57
- Leong, Y. K. and B. C. Ong (2003). "Critical zeta potential and the Hamaker constant of oxides in water." *Powder Technology* **134** (3): 249-254.
- Nonat, A. (2004). "The structure and stoichiometry of C-S-H." *Cement and Concrete Research* **34** (9): 1521-1528.
- Pellenq, R. J. M., N. Lequeux and H. van Damme (2008). "Engineering the bonding scheme in C-S-H: The ionic-covalent framework." *Cement and Concrete Research* **38** (2): 159-174.
- Schneider, M., M. Romer, M. Tschudin and H. Bolio (2011). "Sustainable cement production—present and future." *Cement and Concrete Research* **41** (7): 642-650

BIOGRAPHIE

Diplômé de l'Université de Limoges avec un Master en Physique et Chimie des Matériaux Hautes Performances, **Gnanli Landrou** a rejoint la Chaire de Construction Durable de l'ETH Zürich pour effectuer un doctorat sur le développement d'un béton d'argile auto-plaçant à travers l'étude des propriétés des argiles.

Avant de rejoindre l'ETH Zürich pour étudier la rhéologie des argiles et travailler sur le développement de matériaux alternatifs pour la construction, **Coralie Brumaud** a effectué son doctorat sur la rhéologie des suspensions cimentaires au LCPC à Paris et travaillé en tant qu'ingénieur de recherche au sein de Saint-Gobain Recherche.

Après l'obtention d'un doctorat en Géologie structurale, **Guillaume Habert** a intégré le LCPC à Paris en tant que Chargé de Recherche. Ses travaux sur l'évaluation environnementale des matériaux de construction et sur le développement de nouveaux liants tels que les géopolymères l'ont mené à la direction de la Chaire de Construction Durable au sein de l'ETH Zurich.