

# Des argiles calcinées comme substitut au ciment

Autor(en): **Scrivener, Karen / Fernandez, Rodrigo**

Objektyp: **Article**

Zeitschrift: **Tracés : bulletin technique de la Suisse romande**

Band (Jahr): **137 (2011)**

Heft 12: **Béton mon amour**

PDF erstellt am: **11.07.2024**

Persistenter Link: <https://doi.org/10.5169/seals-154199>

## **Nutzungsbedingungen**

Die ETH-Bibliothek ist Anbieterin der digitalisierten Zeitschriften. Sie besitzt keine Urheberrechte an den Inhalten der Zeitschriften. Die Rechte liegen in der Regel bei den Herausgebern.

Die auf der Plattform e-periodica veröffentlichten Dokumente stehen für nicht-kommerzielle Zwecke in Lehre und Forschung sowie für die private Nutzung frei zur Verfügung. Einzelne Dateien oder Ausdrucke aus diesem Angebot können zusammen mit diesen Nutzungsbedingungen und den korrekten Herkunftsbezeichnungen weitergegeben werden.

Das Veröffentlichen von Bildern in Print- und Online-Publikationen ist nur mit vorheriger Genehmigung der Rechteinhaber erlaubt. Die systematische Speicherung von Teilen des elektronischen Angebots auf anderen Servern bedarf ebenfalls des schriftlichen Einverständnisses der Rechteinhaber.

## **Haftungsausschluss**

Alle Angaben erfolgen ohne Gewähr für Vollständigkeit oder Richtigkeit. Es wird keine Haftung übernommen für Schäden durch die Verwendung von Informationen aus diesem Online-Angebot oder durch das Fehlen von Informationen. Dies gilt auch für Inhalte Dritter, die über dieses Angebot zugänglich sind.

# Des argiles calcinées comme substitut au ciment

**La disponibilité et le coût du béton en fait le matériau de prédilection pour répondre à la forte croissance des pays en développement. Mais comment éviter que cette dernière alourdisse son bilan écologique ? Une recherche menée conjointement entre l'EPFL et l'Université de Las Villas ouvre des pistes intéressantes par l'utilisation de ressources locales, les argiles, comme substituant au ciment. Explication.**

Contrairement à ce qu'on croit, le béton dispose de nombreux atouts pour répondre intelligemment à la forte demande de logements dans les pays en voie de développement. D'abord en raison de la large disponibilité de la roche calcaire qui sert de matière première à la fabrication du ciment. Ensuite en raison de son coût de fabrication qui reste bas comparé à celui d'autres matériaux comme le bois ou la brique.

L'impact environnemental du béton en terme de CO<sub>2</sub> peut en outre être réduit par l'utilisation de substituts. Cependant, le potentiel de substitution du ciment reste limité de par la faible disponibilité des pouzzolanes<sup>1</sup> (substituants) par rapport au volume de ciment à l'échelle mondiale. Dans les pays en voie de développement, cette carence en substituts est encore accentuée par le manque d'additifs minéraux artificiels issus des processus industriels. Un programme de collaboration entre le Laboratoire des Matériaux de Construction de l'EPFL (LMC) et le Centre de Recherche sur les Structures et Matériaux de l'Université de Las Villas à Cuba (CIDEM) s'inscrit dans cette problématique et cherche à répondre aux questions posées par cette dernière : comment fournir un béton résistant et à faible impact environnemental

tout en utilisant les ressources locales ? En d'autres termes, est-il possible de développer localement de nouvelles additions minérales pour le ciment ?

## Argiles mixtes calcinées

Entre 2005 et 2009, un premier projet<sup>2</sup> a mis en évidence que l'une des pistes les plus prometteuses réside dans l'utilisation d'argiles calcinées. Les argiles sont de fines particules (< 2 microns) qui résultent de l'érosion des roches. Elles sont constituées de plusieurs centaines de feuilles empilées les unes sur les autres. Chaque feuille est à son tour composée de différentes couches (entre 2 et 5), qui varient d'un type d'argile à l'autre mais qui sont souvent une combinaison de couches de silicate et d'aluminates (fig. 4). Leur composition chimique et leur taille leur confèrent un réel potentiel pour une utilisation en tant que pouzzolane dans le ciment.

La calcination est une étape essentielle dans le développement d'une pouzzolane artificielle à partir d'une argile, car elle permet le passage d'une structure cristalline (un arrangement ordonné des atomes) à une structure amorphe (une structure désordonnée des atomes). Sans cette calcination



<sup>1</sup> Le terme pouzzolane vient du latin *pulvis puteolana*, désignant les sables de Pozzuoli, port italien situé au pied du Vésuve. Ce sable volcanique était déjà remarqué par Vitruve au 1<sup>er</sup> siècle avant J.-C. pour la fabrication de béton romain résistant à l'eau.

<sup>2</sup> Financé par le Fonds national suisse de la recherche scientifique (FNS), en collaboration avec la Direction du Développement et de la Coopération (DDC)

Fig. 1: Argile mixte de Manicaragua (Cuba)

Fig. 2: Principales réactions chimiques du processus de clinkérisation : décarbonatation de la roche calcaire (1), formation de silicate bicalcique (ou bélite) (2), formation de silicate tricalcique (ou alite) (3)

Fig. 3: Interactions chimiques entre ciment et pouzzolanes : réaction principale d'hydratation du ciment (1), exemples de réaction pouzzolanique (2) & (3)

(Nomenclature : S=SiO<sub>2</sub>, C=CaO, H=H<sub>2</sub>O, A=Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)

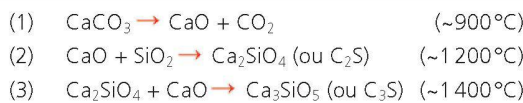
Fig. 4: Structures cristallines de trois types d'argiles (adapté de Grim, 1962)

Fig. 5: Traitement graphique d'une surface en béton (Photo AHO)

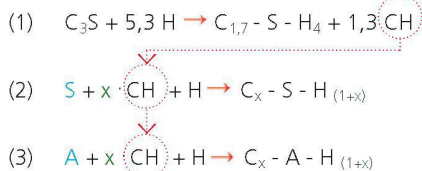
### Programme de collaboration avec Cuba

Le programme de recherche « Ecomaterials for low-cost housing »<sup>1</sup> mené conjointement entre l'EPFL et l'Université de Las Villas à Cuba, implique des ingénieurs provenant de diverses branches (matériaux, chimie et génie civil). Cette interdisciplinarité a permis de couvrir tous les aspects du développement d'un nouveau matériau de construction. Autre force de cette collaboration, la complémentarité des infrastructures de travail a permis de passer de la recherche fondamentale menée grâce aux techniques sophistiquées de l'EPFL à des tests pratiques et des applications réelles sur le terrain cubain. Lors de la première phase du projet, trois doctorants cubains ont ainsi pu se familiariser pendant quatre mois avec la caractérisation des matériaux en laboratoire à l'EPFL et plusieurs étudiants et doctorants de l'EPFL ont pu se rendre compte des enjeux de la construction dans les pays en voie de développement. Grâce à un financement supplémentaire du Fonds national suisse de la recherche scientifique (FNS), une deuxième phase a pu être lancée. L'objectif est d'atteindre des plus hauts niveaux de substitution de ciment afin de réduire toujours plus l'impact environnemental du béton. Le contexte pour des applications réelles des résultats de cette recherche est favorable, l'industrie cubaine du ciment envisageant de produire industriellement des argiles calcinées.

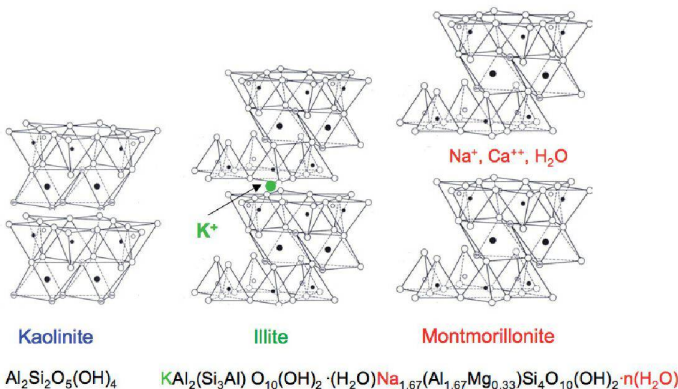
<sup>1</sup> <http://lmc.epfl.ch/page-39741-en.html>



2



3



○ oxygène ⊕ hydroxyles ● Aluminium, Fer, Magnésium ○ ● Silicium

4

ou activation thermique, les cristaux d'argiles seraient dans un état trop stable qui empêcherait toute réaction avec l'hydroxyde de calcium provenant du ciment.

Le métakaolin est un exemple d'argile calcinée déjà utilisée par les cimentiers. Il est produit par calcination du kaolin, une argile qu'on trouve partout dans la croûte terrestre. Cette pouzzolane est très réactive; la substitution de 5% à 10% de ciment par du métakaolin peut augmenter sensiblement les propriétés mécaniques du béton. Le problème est que le kaolin dispose de propriétés recherchées pour d'autres types d'applications, comme les cosmétiques, l'alimentaire ou encore la porcelaine, ce qui renchérit sensiblement son prix et diminue fortement sa disponibilité pour l'industrie de la construction. Par conséquent, le métakaolin n'est aujourd'hui employé dans le béton qu'à de très faibles taux de substitution de ciment et pour des applications très spécifiques.

On a donc cherché à voir s'il serait possible de produire des pouzzolanes en calcinant des mélanges d'argiles largement disponibles. Pour ce faire, on a d'abord étudié le comportement thermique de trois des argiles des plus répandues qui sont le kaolin (ou kaolinite si on se réfère à la forme cristalline du matériau), l'illite et la montmorillonite (fig. 4). Ceci a permis de comprendre le mécanisme de décomposition thermique de diverses structures argileuses et l'influence de cette décomposition sur la réactivité pouzzolanique du matériau calciné une fois mélangé au ciment et à l'eau.

Dans un second temps, l'équipe a étudié le comportement d'une argile mixte (composée de divers types d'argile dans des proportions variables) d'origine cubaine (fig. 1) lorsqu'elle est calcinée.

Les matières premières et les produits calcinés ont d'abord été caractérisés par diverses techniques de laboratoires (diffraction des rayons x, granulométrie laser ou analyse thermogravimétrique). On a ensuite fabriqué des pâtes de ciment constituées d'un mélange de 70% de ciment et de 30% d'argiles calcinées (en masse) qui nous ont permis de suivre la réaction pouzzolanique. Les propriétés mécaniques ont ensuite été testées sur des mortiers, constitués du même mélange que les pâtes mais dans lequel est encore ajouté du sable.

### Analyse thermogravimétrique

L'analyse thermogravimétrique (DTG) est un bon exemple de caractérisation des argiles. Le principe consiste à préparer un échantillon de quelques milligrammes d'argile puis à le placer dans un appareil capable de le peser tout en le chauffant. On obtient tout d'abord une courbe de perte de masse en fonction de la température, que l'on peut dériver afin

d'amplifier visuellement la distinction des divers phénomènes physiques. Cette technique permet de suivre les principaux phénomènes de décomposition thermique des structures argileuses, comme par exemple la déshydratation, entre 20 et 200 °C (perte d'eau située entre les couches d'argile n'entraînant pas de destruction de la structure) ou la déshydroxylation entre 400 et 800 °C (perte d'eau faisant partie de la structure de l'argile entraînant une décomposition irréversible). Les résultats obtenus pour l'argile cubaine ont ainsi pu être comparés avec ceux des trois argiles pures (fig. 7).

La kaolinite se caractérise par une importante perte de masse entre 400 et 600 °C qui correspond à sa déshydroxylation. La quantité de kaolinite d'un échantillon peut alors être calculée à partir de la quantité d'eau dégagée entre 400 et 600 °C. Le fait que l'argile cubaine présente un pic de déshydroxylation dans cette plage température signifie qu'elle contient bien de la kaolinite, ceci dans une proportion de l'ordre de 45 %.

Appliquée non à des argiles mais à des pâtes de ciment comprenant des argiles, cette même technique de DTG permet de détecter la présence d'hydroxyde de calcium (CH) dont la déshydroxylation a lieu dans une plage de température allant de 450 à 600 °C. Compte tenu des réactions en jeu (fig. 2 et 3), la proportion d'hydroxyde de calcium dans l'échantillon au cours du temps sert à mesurer la réactivité pouzzolanique d'une pâte. Si le taux d'hydroxyde reste haut, seul le ciment réagit avec l'eau : l'argile calcinée n'est pas réactive. Si au contraire le taux d'hydroxyde de calcium baisse avec le temps, cela signifie que l'argile calcinée réagit en consommant de l'hydroxyde de calcium. Les résultats obtenus sur les trois argiles pures ont révélé que seule la kaolinite calcinée réagit avec l'hydroxyde de calcium. L'étude de l'argile cubaine devenait dès lors très pertinente puisqu'elle contient de la kaolinite dans une proportion non négligeable.

La partie droite de la figure 8 nous montre tout d'abord que l'argile cubaine a une réactivité pouzzolanique non négligeable puisque son taux d'hydroxyde de calcium baisse systématiquement plus avec le temps que l'échantillon de référence (100 % ciment). On peut aussi noter l'influence de la température de calcination de l'argile cubaine sur la réactivité pouzzolanique : une température de calcination trop élevée (925 °C) conduit à une fusion des particules d'argile qui réduit leur surface de réaction avec le ciment.

### Effet sur la résistance

On a ensuite étudié l'effet de l'ajout d'argiles calcinées sur la résistance en compression de mortiers. Pour avoir une référence, on a fabriqué un mortier à partir d'un filler n'ayant



### Facteur clinker et substituants

Le clinker, constituant principal du ciment, est produit industriellement par calcination jusqu'à 1 450 °C de la roche calcaire mélangée à une source de silice (de type argile ou marne). Le produit obtenu après refroidissement rapide est le clinker, qu'il convient de broyer finement avec environ 5 % de gypse ( $\text{CaSO}_4$ ) afin d'obtenir du ciment (fig. 2).

Le facteur clinker n'est autre que la proportion de clinker utilisée pour produire du ciment. Il se situe en général à 95 %. Si par contre d'autres minéraux viennent substituer une partie du clinker dans la formulation du ciment, alors le facteur clinker diminue (ce qui est avantageux sur le plan économique et écologique, moins de matière devant être cuite à haute température).

C'est donc dans la substitution du clinker par d'autres matériaux alternatifs dans la constitution du ciment que réside le plus fort potentiel de réduction de  $\text{CO}_2$ . On utilise le terme « additions minérales » pour décrire tout type de substituts pouvant provenir d'un milieu naturel ou d'autres industries, qui mélangés dans le ciment ont un effet bénéfique tant sur les propriétés de résistance mécanique que de durabilité du béton. Les cimentiers n'ont pas attendu les pressions environnementales et ont d'abord pratiqué ce genre de substitutions pour des raisons économiques. Les exemples les plus communs sont les cendres volantes, issues des usines thermoélectriques, ou les laitiers des hauts fourneaux provenant de la production de l'acier. Ces résidus industriels, par leur composition (riche en silice ou en alumine) mais aussi par le traitement thermique qu'ils ont subi, peuvent réagir avec le ciment et améliorer les propriétés du béton à travers la réaction pouzzolanique.

Une pouzzolane est donc un matériau riche en silice ( $\text{SiO}_2$ ) ou alumine ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ), qui seul ne présente pas de propriétés cimentaires mais peut, en présence d'eau, réagir avec l'hydroxyde de calcium et former des composés aux propriétés cimentaires contribuant au durcissement du mélange. La figure 3 permet d'illustrer l'interaction chimique que peuvent avoir le ciment et la pouzzolane (une attention particulière doit être portée à la nomenclature utilisée en chimie des ciments détaillée dans la légende). Un grain de ciment, principalement formé de silicate tricalcique ( $\text{Ca}_3\text{SiO}_5$  ou  $\text{C}_3\text{S}$  dans la nomenclature des cimentiers) réagit avec l'eau pour former des hydrates de type hydro-silicate de calcium (C-S-H) et hydroxyde de calcium ( $\text{Ca}(\text{OH})_2$  ou CH). La pouzzolane réagit avec l'hydroxyde de calcium produit par la réaction d'hydratation du ciment pour former davantage d'hydro-silicate de calcium ou hydro-aluminate de calcium (C-S-H ou C-A-H), ou même un mélange des deux composés (C-A-S-H). La présence de pouzzolane induit donc une consommation de l'hydroxyde de calcium au bénéfice de la formation de produits de Type C-S-H. Ce phénomène est bénéfique pour la matrice cimentaire car elle permet une meilleure répartition des hydrates de type C-S-H et une modification des pores vers des tailles plus petites, ce qui contribue à l'augmentation des propriétés mécaniques de l'ensemble.

Aujourd'hui dans les pays industrialisés, l'utilisation d'additions minérales est une pratique très courante et parfaitement maîtrisée, ce qui permet de réduire sensiblement l'impact environnemental lié à la production de ciment. On parle alors de ciments composés par opposition au ciment Portland traditionnel.

Fig. 6 : Détail d'un mur en béton (Photo AHO)

Fig. 7 : Dérivée de la courbe thermogravimétrique (DTG) mettant en évidence la décomposition des argiles avec la température

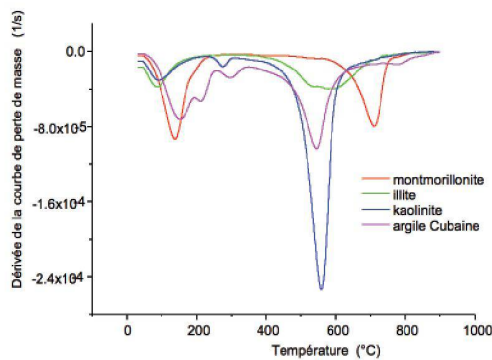
Fig. 8 : Dosage des pâtes de ciment (gauche) et leur évolution en hydroxyde de calcium (CH) dans le temps

Fig. 9 : Dosage des mortiers (gauche) et évolution de leur résistance en compression (droite)

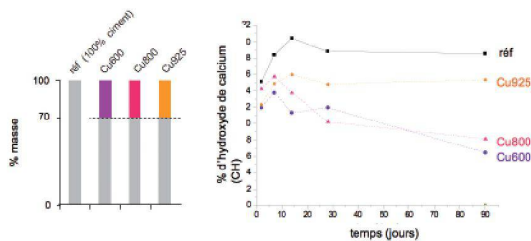
(Sauf mention, tous les documents illustrant cet article ont été fournis par les auteurs.)



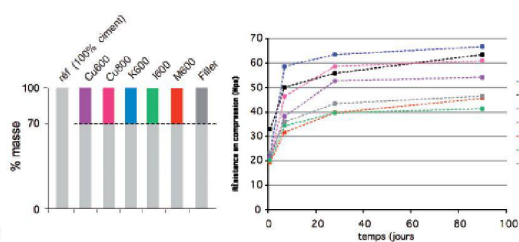
6



7



8



9

aucune propriété pouzzolannique. L'argile mixte cubaine calcinée présente des propriétés très intéressantes : à sa température de calcination optimale (800°C) et en substituant 30% de ciment, elle permet au mortier de développer des résistances en compression comparables à la référence dès sept jours. Par contre, les argiles calcinées de type illite et montmorillonite ne présente pas de réactivité pouzzolannique, étant donné que les résistances des mortiers sont en dessous du mortier incorporant le filler (fig. 9).

### Des perspectives très prometteuses

La teneur en kaolinite ainsi que sa température de calcination jouent donc un rôle déterminant dans la réactivité pouzzolannique d'une argile.

Cette étude ouvre des perspectives intéressantes pour l'utilisation d'argiles mixtes à basse teneur en kaolinite comme substituant du ciment dans la construction. Dans des contextes moins industrialisés comme certains milieux ruraux dans les pays en voie de développement, le développement d'outils simples permettant de déterminer la teneur en kaolinite des sols argileux pourraient amener une réponse à la demande toujours croissante de matériaux de constructions durables.

Karen Scrivener, professeure et directrice du laboratoire  
Rodrigo Fernandez, dr. ing. en science des matériaux (EPFL)  
Laboratoire des Matériaux de Construction (LMC-EPFL)  
EPFL STI IMX LMC, Station 12, CH-1015 Lausanne

### Références

- [1] JAMES K. MITCHELL, *Fundamentals of soil behaviour*, 3<sup>rd</sup> edition, John Wiley & Sons, Inc., 2005
- [2] VANGIPURAM S. RAMACHADRAN, *Handbook of thermal analysis of construction materials*, Noyes publication, 2002
- [3] G.W BRINDLEY, M. NAKAHIRA, The Kaolinite-Mullite Reaction Series 1: II, Metakaolin, *Journal of the American ceramic society*, p. 314-318, 1959
- [4] R. FERNANDEZ, *The origin of the pozzolanic activity of calcined clay minerals : A comparison between kaolinite, illite and montmorillonite*, Cement and Concrete Research, Vol. 41, Jan. 2011, p. 113-122