

Impression 3D des matériaux cimentaires : Formulation, structuration et stabilité

Ilhame HARBOUZ ^{1,2}

¹ Ecole Centrale de Nantes, Institut de Recherche en Génie Civil et Mécanique (GeM), UMR-CNRS 6183, 1 rue de la Noë, BP 92101, F-44321 Nantes, France.

² Université de Sherbrooke, Département de génie civil et de génie du bâtiment, Groupe ciment et béton, Sherbrooke, QC J1K 2R1, Canada

RESUME

Les technologies de construction modernes, telles que l'impression digitale 3D, posent de nombreux enjeux pour la rhéologie et le comportement des matériaux cimentaires. Compte tenu de la nouveauté de cette méthode de fabrication additive, il n'existe pas encore de directives pertinentes qui définissent les critères d'imprimabilité d'une formulation vis-à-vis du processus d'impression utilisé, ni les paramètres d'impression à choisir. Cette thèse a pour objectif d'établir un guide d'impression 3D par extrusion des matériaux cimentaires. Ce guide permettra d'une part, d'évaluer l'imprimabilité d'un mélange, d'adapter les paramètres d'impression et, d'autre part, de prévoir les éventuelles instabilités lors du processus d'impression. Les activités de recherche sont basées sur des approches expérimentales afin de comprendre l'évolution des propriétés des matériaux cimentaires à l'état frais et au cours de leur structuration. Les résultats de cette étude pourront être mis à profit pour formuler des matériaux cimentaires à rhéologie adaptée compatibles avec les nouvelles technologies de construction.

Mots-clefs Impression 3D, mortiers, rhéologie, structuration, stabilité

I. INTRODUCTION

Le monde connaît actuellement une très grande vague de croissance urbaine. Cette croissance entraîne d'énormes besoins en matière de logements et d'infrastructures. Par ailleurs, les préoccupations croissantes de la société en matière de durabilité favorisent l'émergence de processus de construction innovants afin de minimiser les impacts environnementaux. En particulier, des procédés de fabrication additive ont été associés à une fabrication rentable qui réduit à la fois la consommation d'énergie et des matières premières, la génération des résidus, le temps de construction et les émissions de CO₂ au cours du cycle de vie du produit (De Schutter et al., 2018). A l'encontre des méthodes de construction conventionnelles, la fabrication additive, notamment l'impression 3D, ne nécessite pas de coffrage rigide et s'appuie sur la capacité portante structurelle du matériau pour être autoportante pendant le processus de fabrication. Cela exige que le matériau passe de l'état fluide à l'état solide de manière extrêmement rapide et contrôlée (Reiter et al., 2018). Une telle technologie, encore en devenir, permet ainsi de repenser l'acte de

construire vis-à-vis de la formulation des matériaux afin de maîtriser leur rhéologie et cinétique de structuration, ainsi que leurs propriétés acoustiques, thermiques et mécaniques.

L'impression par extrusion par couches successives est le processus le plus utilisé dans le domaine de construction. Celui-ci nécessite des matériaux de construction assez fluides pour être extrudés, mais suffisamment rigides pour ne pas s'affaisser une fois déposé (Roussel, 2018). Du béton classique ne répond pas à ces exigences, notamment son incapacité à supporter son propre poids et le poids des couches successives. Le contrôle des propriétés à l'état frais du matériau utilisé est donc crucial pour assurer son imprimabilité. Ceci passe nécessairement par la réalisation de plusieurs compromis depuis la phase de formulation. L'objectif principal de cette thèse est de proposer une approche rationnelle pour la formulation des matériaux cimentaires adaptés pour une mise en place par impression 3D. En outre, une étude approfondie sera menée pour mieux comprendre l'évolution temporelle de la rigidité et des différentes phases de structuration de ces matériaux, ce qui constitue une réalité d'ingénierie des impressions 3D. Ces résultats devraient permettre d'établir une compréhension fondamentale des origines des instabilités qui peuvent se produire lors du processus d'impression et d'établir les bases nécessaires à un meilleur contrôle du processus d'impression, notamment la stabilité des matériaux imprimés.

II. PROGRAMME EXPERIMENTAL

2.1 Imprimabilité : Critères et approches de formulation

Le développement de matériaux cimentaires adaptés pour les procédés d'impression 3D par extrusion a été réalisé en se basant sur les propriétés requises selon les différentes étapes du processus. Ces étapes incluent l'acheminement du mélange à travers une pompe ou par pression d'air jusqu'à son extrusion de la buse et son dépôt par couches successives (cf. **figure 1**). Trois aspects sont proposés pour évaluer l'imprimabilité des matériaux cimentaires, à savoir : **L'ouvrabilité** (**W - Workability**), **l'extrudabilité** (**E - Extrudability**) et **la constructibilité** (**B - Buildability**).

L'**ouvrabilité** des mortiers étudiés a été évaluée par deux paramètres rhéologiques :

- Le seuil statique d'écoulement initial τ_0 , correspondant à la valeur de la contrainte de cisaillement maximale mesurée à un très faible taux de cisaillement de $0,01 \text{ s}^{-1}$. Un pré-cisaillement de 200 s^{-1} a été appliqué pour assurer une meilleure dispersion des particules et un état de référence similaire pour toutes les formulations étudiées.
- La viscosité apparente au repos η_{app} qui correspond à la viscosité mesurée à un faible taux de cisaillement de $0,01 \text{ s}^{-1}$.

Lors de la phase d'extrusion, le matériau subit un cisaillement dû à la rotation de la vis sans fin raccordé au moteur (cf. **figure 1**), ce qui affecte principalement la qualité de l'extrudât au dépôt. Ainsi, deux paramètres d'**extrudabilité** ont été définis afin d'évaluer l'effet de l'extrusion sur les propriétés à l'état frais des mélanges. Le premier paramètre concerne le coefficient de restitution de la viscosité apparente après cisaillement (**R**) et le second représente la cinétique de restructuration du module de stockage après perturbation de la microstructure (**G'r**). Les protocoles de mesure de ces paramètres sont illustrés dans la **figure 2**.

La **constructibilité** fait référence à la capacité d'une couche à retenir son poids propre ainsi que le poids des couches supérieures sans s'effondrer. Le but est de s'assurer que chaque couche

imprimée a la capacité de maintenir sa forme et de durcir lorsqu'elle est coulée, tout en restant suffisamment fluide pour adhérer à la couche qui la recouvre. Un suivi d'évolution du seuil d'écoulement revêt une importance majeure pour la constructibilité du mélange. Cette dernière a été évaluée par les cinétiques d'évolution du seuil d'écoulement statique R_{thix} et A_{thix} lors des périodes de refloculation et de structuration linéaire définis par (Kruger et al., 2019).

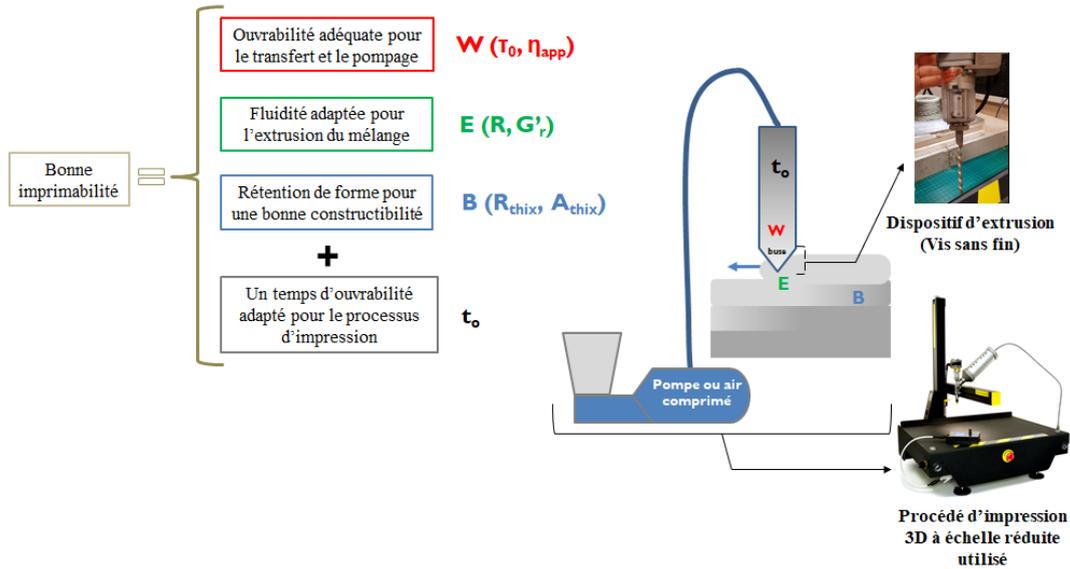


FIGURE 1 : Critères d'imprimabilité d'un mélange et les paramètres liés aux aspects de l'ouvrabilité, de l'extrudabilité et de la constructibilité (W, E, B)

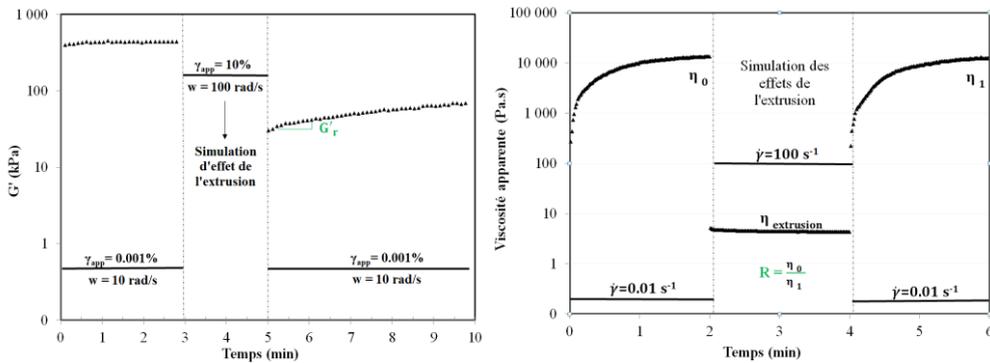


FIGURE 2 : Protocoles de mesure des paramètres d'extrudabilité ($R, G'τ$)

La première phase expérimentale de cette étude consiste à délimiter la plage d'ouvrabilité ciblée pour l'impression 3D. Plusieurs essais d'impression ont été réalisés en utilisant une imprimante à échelle réduite (cf. figure 1). Les volumes de pâte et dosages en superplastifiant (SP) des formulations ont été variés pour pouvoir adapter la rhéologie optimale pour l'impression. Ces formulations sont désignées par M_x , avec x qui représente le pourcentage volumique de la pâte cimentaire (ex. : M_{100} représente un mortier à 100% de pâte cimentaire).

Deux différentes approches de formulation ont été évaluées par la suite afin d'optimiser l'extrudabilité et la constructibilité du mortier imprimable de référence, dont sa composition est présentée dans le tableau 1. La première approche concerne l'utilisation des agents viscosants (VMA – Viscosity modifying agent) à dosages variables afin de déterminer son effet sur les différents aspects d'imprimabilité des formulations étudiées, ces mélanges sont désignés par

VMA.y, avec y qui représente le dosage utilisé en % poids du ciment. La seconde approche consiste à utiliser différentes additions minérales, tout en gardant les mêmes proportions volumiques du mélange de référence. Ainsi, les cendres volantes (CV) ont été remplacées par les fillers calcaires et la fumée de silice (FS) par la kaolinite (ex. : CV-K représente un mortier comprenant des cendres volantes et la kaolinite). Ceci a permis, d'une part, d'évaluer l'effet de la variation de l'empilement granulaire sur l'imprimabilité des mélanges et, d'autre part, de sélectionner la meilleure combinaison répondant au mieux aux exigences du procédé d'impression.

TABLEAU 1 : Composition du mélange de mortier de référence imprimable

Sable (kg/ m ³)	Ciment CEM 1 (kg/ m ³)	CV (kg/ m ³)	FS (kg/ m ³)	Eau (kg/ m ³)	SP, (% poids du ciment)	Volume de pâte (l/ m ³)
981	649	185	93	260	1.2	630

Tous les paramètres rhéologiques définis précédemment ont été mesurés par le rhéomètre à contrainte imposée DHR 2 (Discovery Hybrid Rheometer 2), avec une géométrie vanne et un entrefer fixe de 4 mm. Plusieurs essais ont été réalisés afin de vérifier la répétabilité des résultats et de valider les protocoles utilisés.

2.2 Structuration physico-chimique

Le développement des propriétés rhéologiques et viscoélastiques au jeune âge est associé à deux mécanismes différents, l'un réversible associé au caractère thixotropique des matériaux cimentaires (Roussel et al., 2012) et l'autre irréversible relié principalement aux réactions chimiques d'hydratation. Une compréhension approfondie du comportement du matériau et de sa variation en fonction du temps dans le processus d'impression 3D est nécessaire pour optimiser les propriétés ciblées et prévoir les éventuelles instabilités. Une méthode fiable combinant à la fois des mesures rhéologiques et des mesures non destructives d'ondes ultrasoniques est réalisée dans la présente étude (Harbouz et al., 2020). Un intérêt particulier a été accordé à la cinétique de la structuration pendant les premières heures après le malaxage, correspondant à la période d'impression 3D. De plus, des mesures de calorimétrie isotherme ont été réalisées afin de relier les différentes phases de rigidification à l'avancement de la réaction d'hydratation. La rhéométrie oscillatoire a été exploitée pour suivre la cinétique de rigidification du mélange, tandis que les ondes ultrasoniques ont été utilisées pour suivre le développement des propriétés viscoélastiques (E, G), estimées à partir des vitesses de propagation d'ondes ultrasonores, dont les équations sont définies dans (Cortas et al., 2014).

2.3 Stabilité des matériaux cimentaires imprimés en 3D

Les méthodes utilisées pour évaluer la qualité d'impression ne donnent pas forcément des résultats liés à la stabilité de la structure imprimée. Cet aspect est généralement lié aux deux modes de rupture définis dans la littérature :

- Le premier mode est dû à une faible résistance d'une des couches imprimées, entraînant un affaissement de la structure (Perrot et al., 2016).
- Le second type correspond plutôt à une instabilité mécanique (flambement de la structure). Ce mode est plutôt lié à un dépassement de la charge limite de l'une des couches imprimées qui est en lien direct avec la hauteur h de l'objet imprimé (Wolfs et al., 2018). Cette hauteur dépend à la fois du moment d'inertie, de la section horizontale et du module élastique du matériau.

En réalité, plusieurs raisons peuvent provoquer la rupture de la structure imprimée, mise à part des deux modes précédents. La majorité des ruptures sont causées par des instabilités rhéologiques ou structurelles provenant principalement du comportement du matériau utilisé. Ainsi, afin de déceler les différentes origines de ces instabilités, un cylindre creux de 10 cm de diamètre, d'une épaisseur de 1 cm et d'une hauteur variable a été imprimé avec des formulations à structuration variable. Ces essais d'impression ont été réalisés à différents âges et à paramètres d'impression (hauteur de couche, vitesse d'impression et diamètre de buse) fixés.

III. RESULTATS ET DISCUSSIONS

3.1. Formulation de matériaux cimentaires imprimables

Les résultats représentés sur la **figure 3** permettent de limiter la plage des propriétés rhéologiques des formulations répondant aux exigences du processus d'impression 3D. En outre, les différentes approches évaluées ont permis de proposer différentes méthodologies d'adaptation d'une formulation non imprimable, dépendamment de l'aspect à optimiser.

Par exemple, l'ajout des agents viscosants (VMA) à un certain dosage optimal permet d'améliorer la constructibilité du mélange sans pour autant détériorer son ouvrabilité. En effet, le VMA engendre une augmentation du seuil d'écoulement et améliore la cohésion, tout en éliminant le ressuage et la ségrégation. Ceci permet ainsi d'améliorer la stabilité après impression et une meilleure adhérence entre les couches. Leur efficacité dépend de leur poids moléculaire, de leur affinité vis-à-vis de la surface du ciment, de leur type et compatibilité avec les autres adjuvants utilisés.

La combinaison de différentes additions minérales a permis de varier amplement la rhéologie des mélanges. Cependant, cette variation a eu moins d'impact sur l'aspect de constructibilité et sur le développement des résistances au jeune âge. En revanche, des déformations ont été observées lors de l'impression des mortiers comprenant de la kaolinite. Ceci est majoritairement lié à la perte d'ouvrabilité et l'extrudabilité de ces mélanges.

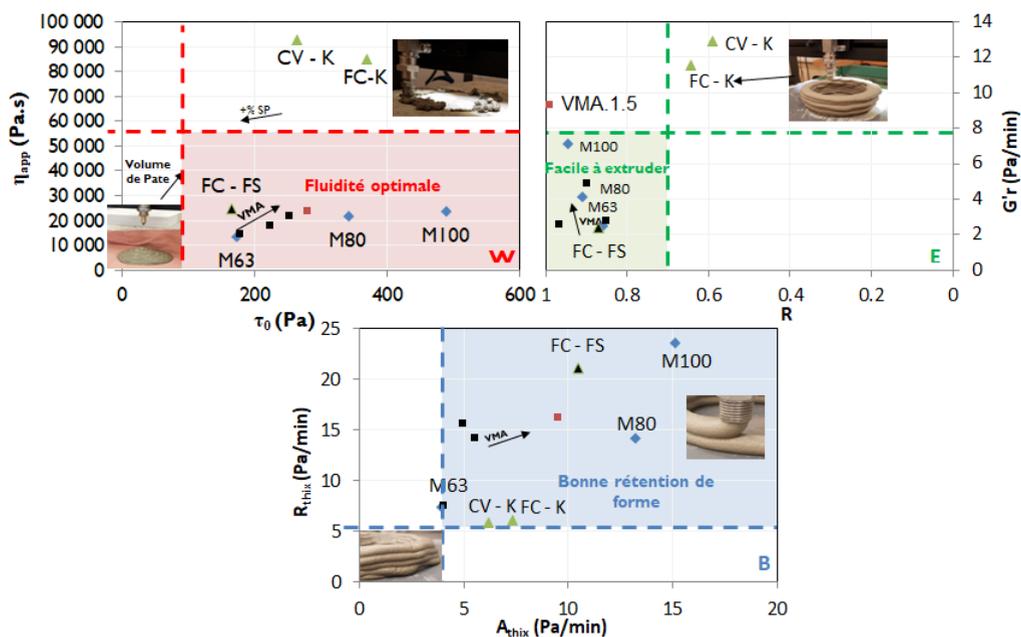


FIGURE 3 : Paramètres d'imprimabilité des différents mélanges testés selon les aspects WEB

3.2. Phases de rigidification des mortiers imprimables

Les résultats de suivi des modules élastique et de cisaillement obtenus à partir des vitesses de propagation des ondes ultrasoniques, ainsi que le module de stockage mesuré à partir de la rhéologie oscillatoire, ont été corrélés avec l'avancement de la réaction d'hydratation obtenu à partir de la calorimétrie isotherme (cf. **figure 4**). La **figure 4** illustre les différentes phases de rigidification, qui peuvent être divisées en trois phases. La première région est caractérisée par une légère augmentation des modules de stockage, élastique et de cisaillement précédant la phase d'accélération de la réaction d'hydratation. En effet, durant les premières heures suivant la fin de la séquence du malaxage, les particules peuvent flocculer en raison des forces d'attraction de Van der Waals. Par conséquent, un réseau d'interaction de particules et de floccs se forme, ce qui induit une augmentation linéaire des modules comme le montre la **figure 4** (phase A). Cette évolution est accompagnée d'une augmentation du nombre de pseudo-points de contact entre les particules flocculées au repos, entraînant une cinétique de structuration plus élevée. Ceci conduit à la formation de chemins de percolation successifs interconnectés, constituant une phase de transition (phase B) pour atteindre un état stable (phase C) (Mostafa and Yahia, 2016). Immédiatement après la période d'induction, un seuil de percolation est atteint et des chemins continus d'hydrates peuvent être observés dans la microstructure de la pâte de ciment. Par conséquent, la cinétique d'hydratation s'accélère, et une structuration non linéaire se produit. La troisième région coïncide généralement avec la fin de la prise, après la formation d'une structure stable durcie.

Lors des processus d'impression 3D, deux approches de formulation peuvent être utilisées afin de contrôler la constructibilité des matériaux cimentaires imprimables. La première approche concerne l'accélération de la stabilité de la microstructure à l'état frais (phases I-B et I-C) en utilisant des agents viscosants ou de thixotropie. La seconde approche porte sur l'accélération du durcissement en incorporant des accélérateurs de prise (phases II et III).

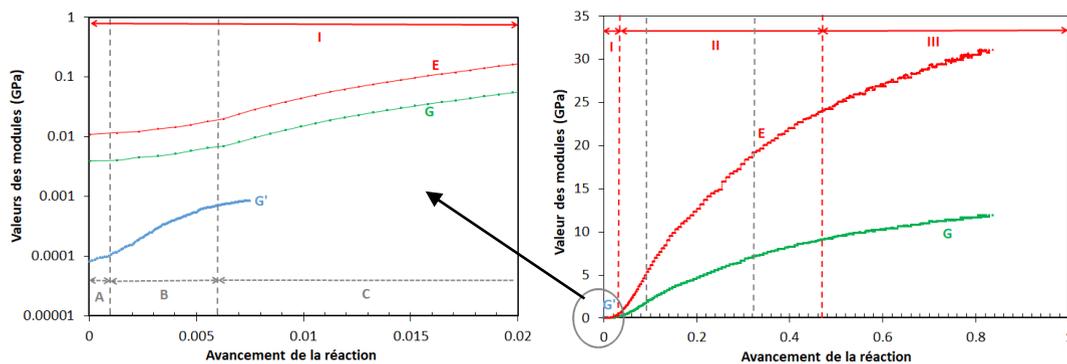


FIGURE 4 : Evolution des modules élastique, de cisaillement et de rigidité en fonction de la réaction d'hydratation (Harbouz et al., 2020)

3.3. Stabilité des matériaux cimentaires

Les essais expérimentaux ont permis d'identifier trois paramètres clés qui induisent des déformations inadmissibles provoquant l'instabilité de la structure imprimée. Le premier paramètre concerne le temps d'ouvrabilité du mélange. Ce paramètre affecte principalement la période de pompage. Un changement notable de la texture est visualisé au cours de l'impression (cf. **figure 5**). Ce temps correspond au début de l'évolution exponentielle du seuil d'écoulement statique (Perrot et al., 2016). Les deux autres paramètres sont reliés aux cinétiques d'évolution des seuils d'écoulement statique (A_{thix}) et dynamique, en comparaison avec le taux de chargement

vertical appliqué sur la première couche. La **figure 6** récapitule les différents cas de figure qui peuvent se présenter.



FIGURE 5 : Test d'impression réalisé à $t \sim t_c$ du mélange

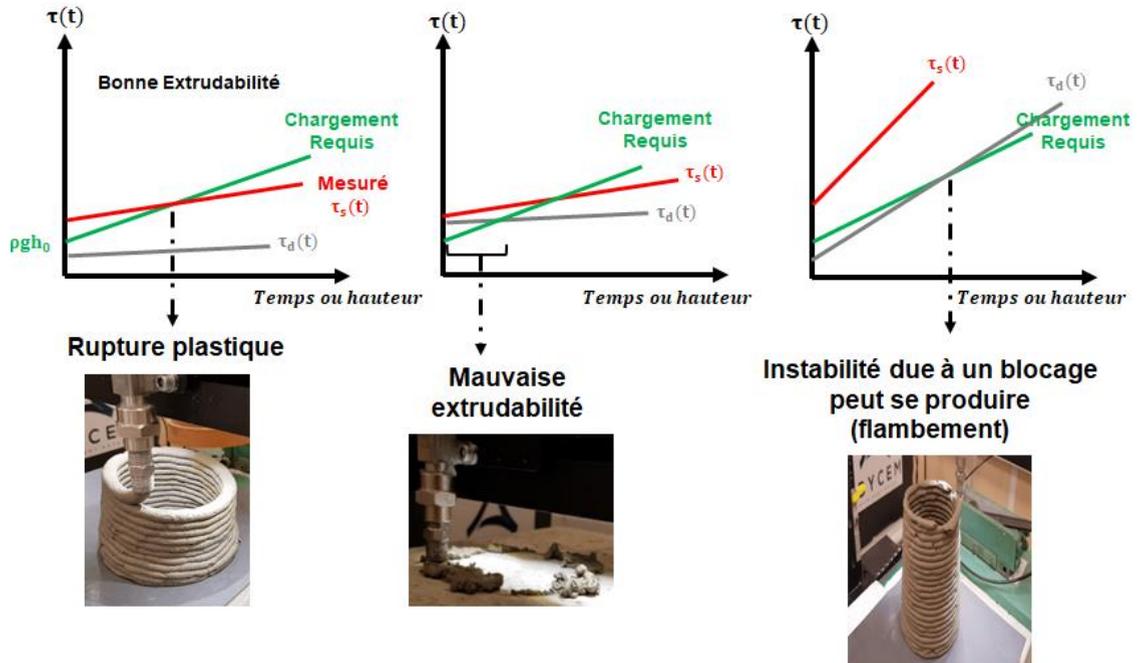


FIGURE 6 : Différents cas de figure de stabilité basés sur les cinétiques d'évolution des seuils d'écoulement

VI. CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

L'imprimabilité d'une large gamme de matériaux cimentaires destinés pour une mise en place par impression 3D est évaluée dans cette étude. Les résultats obtenus ont permis, d'une part, d'identifier les propriétés rhéologiques requises en termes d'ouvrabilité, d'extrudabilité et de constructibilité et de proposer d'autre part des approches d'adaptation nécessaire pour améliorer l'imprimabilité. Des études paramétriques seront réalisées vis-à-vis des paramètres d'impression et du processus utilisé afin de valider cette zone d'imprimabilité proposée.

Le suivi de la cinétique de rigidification a permis d'identifier les différentes phases de structuration. Les résultats obtenus mènent à une meilleure compréhension de la transition des propriétés de l'état frais à l'état durci. Ceci peut être mis à profit pour un contrôle active de prise afin d'optimiser le temps d'impression des éléments imprimés.

En plus des modes de rupture identifiés dans la littérature, plusieurs instabilités peuvent avoir lieu à cause de la perte d'ouvrabilité provenant principalement d'une évolution exponentielle des propriétés rhéologiques ou d'une évolution rapide du seuil dynamique d'écoulement.

REFERENCES

- Cortas, R., Rozière, E., Staquet, S., Hamami, A., Loukili, A., Delplancke-Ogletree, M.-P., 2014. Effect of the water saturation of aggregates on the shrinkage induced cracking risk of concrete at early age. *Cement and Concrete Composites* 50, 1–9. <https://doi.org/10.1016/j.cemconcomp.2014.02.006>
- De Schutter, G., Lesage, K., Mechtcherine, V., Nerella, V.N., Habert, G., Agusti-Juan, I., 2018. Vision of 3D printing with concrete – Technical, economic and environmental potentials. *Cement and Concrete Research* 112, 25–36. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2018.06.001>
- Harbouz, I., Roziere, E., Yahia, A., Loukili, A., 2020. Physico-Chemical Characterization at Early-Age of 3D Printed Mortar, in: Bos, F.P., Lucas, S.S., Wolfs, R.J.M., Salet, T.A.M. (Eds.), *Second RILEM International Conference on Concrete and Digital Fabrication*, RILEM Bookseries. Springer International Publishing, Cham, pp. 272–279. https://doi.org/10.1007/978-3-030-49916-7_28
- Kruger, J., Zeranka, S., van Zijl, G., 2019. An ab initio approach for thixotropy characterisation of (nanoparticle-infused) 3D printable concrete. *Construction and Building Materials* 224, 372–386. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2019.07.078>
- Mostafa, A.M., Yahia, A., 2016. New approach to assess build-up of cement-based suspensions. *Cement and Concrete Research* 85, 174–182. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2016.03.005>
- Perrot, A., Rangeard, D., Pierre, A., 2016. Structural built-up of cement-based materials used for 3D-printing extrusion techniques. *Materials and Structures* 49, 1213–1220. <https://doi.org/10.1617/s11527-015-0571-0>
- Reiter, L., Wangler, T., Roussel, N., Flatt, R.J., 2018. The role of early age structural build-up in digital fabrication with concrete. *Cement and Concrete Research* 112, 86–95. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2018.05.011>
- Roussel, N., 2018. Rheological requirements for printable concretes. *Cement and Concrete Research* 112, 76–85. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2018.04.005>
- Roussel, N., Ovarlez, G., Garrault, S., Brumaud, C., 2012. The origins of thixotropy of fresh cement pastes. *Cement and Concrete Research* 42, 148–157. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2011.09.004>
- Wolfs, R.J.M., Bos, F.P., Salet, T.A.M., 2018. Early age mechanical behaviour of 3D printed concrete: Numerical modelling and experimental testing. *Cement and Concrete Research* 106, 103–116. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2018.02.001>