

Optimisation par plan de mélange de la résistance mécanique d'un liant géopolymère à partir de sédiment de dragage

Lisa MONTEIRO¹, Nadia SAIYOURI¹, Humberto YANEZ-GODOY¹ & Jacqueline SALIBA¹

¹ Université de Bordeaux, UMR 5295, Institut de Mécanique et d'Ingénierie (I2M), CNRS, Esplanade des Arts et Métiers, 33405 Talence, France.

RESUME : Le but de cette étude est l'optimisation de la résistance mécanique d'un liant géopolymère à base de sédiment de dragage à l'aide d'une analyse par plan de mélange. Différents paramètres de formulation sont étudiés : le rapport massique $\text{Na}_2\text{SiO}_3/\text{NaOH}$ et le rapport massique Activateur/Précurseur. L'effet de ces paramètres sur la résistance à la compression des liants a été évalué. Dix-neuf expériences ont été menées pour arriver à un modèle mathématique du second ordre liant la fonction de réponse aux différents facteurs et permettant un meilleur contrôle de la procédure de formulation. La résistance à la compression optimale à 28 jours d'une valeur de 3,68 MPa a été obtenue avec un rapport massique $\text{Na}_2\text{SiO}_3/\text{NaOH}$ de 1,54 et un rapport massique Activateur/Précurseur de 0,31.

Mots-clefs : Géopolymérisation, plan de mélange, sédiments de dragage, optimisation

I. INTRODUCTION

L'absence de méthode systématique de formulation pour les géopolymères représente un verrou pour leur utilisation à grande échelle. Les propriétés des géopolymères dépendent de nombreux paramètres tels que la réactivité des matières premières, leur composition et toutes les combinaisons possibles entre les réactifs alcalins et les précurseurs [1]. De plus, l'usage de sédiments marins dragués dans des matériaux géopolymérisés a été empêché dû aux importantes variations que présentent les matériaux. Une méthode prometteuse est l'analyse statistique par plan de mélange qui permet de développer et d'optimiser des mélanges dont les propriétés dépendent de la proportion des constituants [2]. Elle permet d'évaluer l'influence de chaque composés afin d'obtenir des règles d'élaboration à partir de résultats expérimentaux.

L'objectif de cette étude est de déterminer la formulation optimale d'un liant géopolymère fabriqué à partir de sédiments de dragage en utilisant la méthode statistique des plans de mélange. La formulation optimale est évaluée selon sa résistance mécanique à la compression et ses émissions de CO_2 .

II. MATERIAUX ET PLAN DE MELANGE

A. Matériaux utilisés

Les sédiments dragués non traités de l'estuaire de la Gironde sont utilisés dans cette étude en tant que précurseurs. Ils sont caractérisés par une granulométrie fine limoneuse-vaseuse et sont composés chimiquement de silice (41,38 %m) et d'alumine (14,19 %m). Une solution d'hydroxyde de sodium à 2M (pastille de NaOH avec une pureté de 98 %) et une solution de silicate de sodium ($\text{Na}_2\text{O} = 16,73\% \text{m}$, $\text{SiO}_2 = 27,7\% \text{m}$ et $\text{H}_2\text{O} = 55,57\% \text{m}$) ont été utilisés comme réactifs alcalins.

B. Matrice de mélange et choix de formulation

La matrice de mélange a été modélisée par le logiciel Design-Expert selon la contrainte fondamentale des mélanges qui implique que la somme des composants, en volume ou en masse, doit être égale à 1. Le domaine d'étude choisi est un espace à quatre dimensions puisqu'on considère un mélange à 4 facteurs : Sédiments (X_{SED}), NaOH (X_{NaOH}), Na_2SiO_3 ($X_{\text{Na}_2\text{SiO}_3}$) et H_2O ($X_{\text{H}_2\text{O}}$). Les limites et les proportions volumiques des quatre composants ont été calculés selon la conception des sommets extrêmes développée par MacLean et Anderson [3] où l'on choisit des sous régions expérimentales dans lesquels le contenu des constituants est limité entre des valeurs minimales et maximales dans une plage de 0 à 1. Les limites inférieures et supérieures des constituants ont été établies sur la base d'essais préliminaires en respectant un rapport Eau/Solide de 0,5. Les facteurs d'influences choisies sont les ratios massiques suivants : (a) Le ratio Activateur/Précurseur (AA/Pré) allant de 0,30 à 0,45 et (b) Le ratio $\text{Na}_2\text{SiO}_3/\text{NaOH}$ allant de 1,51 à 2,53. Le tableau 1 présente les différentes proportions de mélange calculées en fonction des contraintes avec, pour chaque, le calcul des ratios molaires $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$, $\text{H}_2\text{O}/\text{Na}_2\text{O}$ et $\text{Na}_2\text{O}/\text{Al}_2\text{O}_3$. Les éprouvettes, de dimension $4 \times 4 \times 16 \text{ cm}^3$ ont été vibrées avec une table vibrante, démoulées au bout de 24h puis conservées dans une salle maintenue à une humidité relative et une température respective de HR=60% et T=20°C pendant 28 jours.

TABLEAU 1. Matrice de mélange et paramètres d'influence

Formulation	Proportions constituants [%m]				Ratios Molaires			Ratios Massiques	
	X_{SED}	X_{NaOH}	$X_{\text{Na}_2\text{SiO}_3}$	$X_{\text{H}_2\text{O}}$	$\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$	$\text{H}_2\text{O}/\text{Na}_2\text{O}$	$\text{Na}_2\text{O}/\text{Al}_2\text{O}_3$	AA/Pre	$\text{Na}_2\text{SiO}_3/\text{NaOH}$
1	0,593	0,074	0,173	0,161	5,86	17,62	0,78	0,42	2,33
2	0,582	0,075	0,186	0,157	5,96	17,29	0,84	0,45	2,48
3	0,613	0,075	0,115	0,197	5,49	20,23	0,56	0,31	1,54
4	0,597	0,075	0,151	0,177	5,72	18,45	0,70	0,38	2,01
5	0,601	0,074	0,128	0,197	5,58	19,46	0,61	0,34	1,72
6	0,597	0,075	0,151	0,177	5,72	18,45	0,70	0,38	2,01
7	0,582	0,075	0,146	0,197	5,71	18,66	0,70	0,38	1,95
8	0,617	0,074	0,112	0,197	5,46	20,36	0,54	0,30	1,51
9	0,617	0,075	0,132	0,176	5,58	19,31	0,61	0,34	1,76
10	0,596	0,074	0,152	0,178	5,73	18,33	0,70	0,38	2,06
11	0,583	0,075	0,156	0,185	5,78	18,25	0,73	0,40	2,09
12	0,617	0,074	0,135	0,173	5,60	19,08	0,62	0,34	1,82
13	0,604	0,074	0,138	0,184	5,63	18,95	0,64	0,35	1,86
14	0,582	0,074	0,187	0,157	5,97	17,20	0,84	0,45	2,53
15	0,582	0,074	0,147	0,197	5,72	18,54	0,70	0,38	1,99
16	0,582	0,075	0,168	0,176	5,85	17,82	0,77	0,42	2,25
17	0,601	0,074	0,128	0,197	5,58	19,46	0,61	0,34	1,72
18	0,582	0,075	0,168	0,176	5,85	17,82	0,77	0,42	2,25
19	0,607	0,074	0,162	0,157	5,78	17,96	0,73	0,39	2,19
Minimum	0,582	0,074	0,112	0,157	5,46	17,20	0,54	0,30	1,51
Maximum	0,617	0,075	0,187	0,197	5,97	20,36	0,84	0,45	2,53

III. RESULTATS ET DISCUSSIONS

A. Définition d'un mélange optimal

La figure 1 présente les résultats de la résistance à la compression à 28 jours des différents mélanges en comparaison avec leur impact écologique. Les émissions CO₂ ont été calculées sur la base de valeurs de références [4] en prenant en compte les facteurs d'émissions liés à la production d'une tonne du liant considéré. Les valeurs de résistance à la compression varient entre 1,27 MPa et 3,68 MPa. L'analyse par plan de mélange a permis de mettre en avant un optimum de formulation pour le mélange n°3. On observe aussi pour ce même mélange, l'impact écologique le plus bas, ce qui corrèle avec un ratio Na₂SiO₃/NaOH faible. Les résultats montrent une diminution de la résistance mécanique lorsque la proportion massique en Na₂SiO₃ augmente. Cette diminution peut être liée à l'augmentation de particules non réactives de sédiments dus à une quantité insuffisante de NaOH.

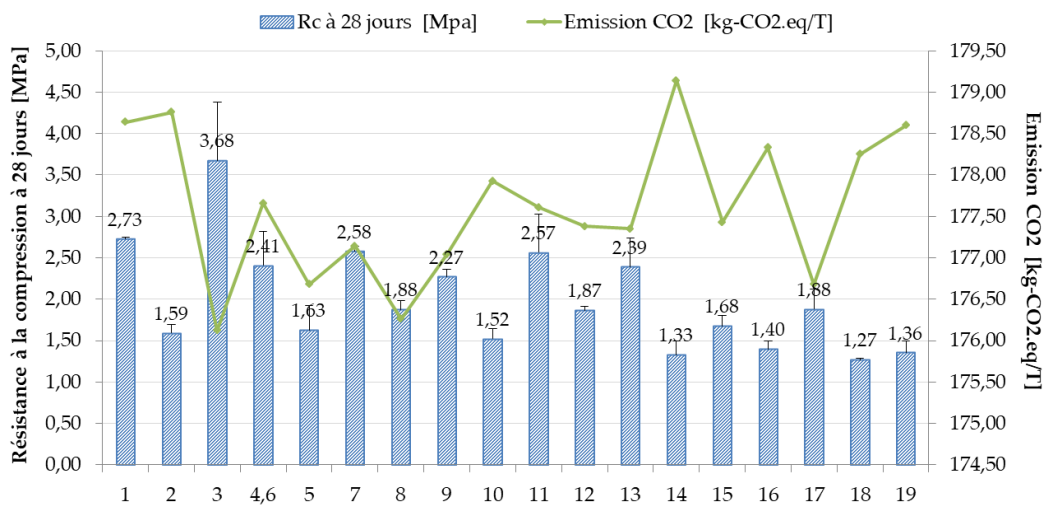


FIGURE 1. Résistance à la compression à 28 jours corrélée aux émissions CO₂ des différents mélanges

B. Modèle de prédiction de la résistance mécanique

En raison de la contrainte des mélanges et afin de prendre en compte les effets d'ordres supérieurs comme les interactions ternaires, le modèle cubique réduit de Scheffé [5] a été utilisée pour décrire la situation expérimentale. L'équation (1) montre un exemple correspondant à un mélange de trois constituants.

$$y = \sum_{i=1}^k a_i x_i + \sum_{j>1}^k a_{ij} x_i x_j + \sum_{k>j>i}^k a_{ijk} x_i x_j x_k + \epsilon \quad (1)$$

Dans cette équation, y correspond à la variable d'intérêt soit la résistance mécanique dans cette étude, x_i représente la fraction massique du composant i, a_i, a_{ij} et a_{ijk} sont les coefficients polynomiaux et le nombre de constituants de l'expérience est k. L'utilisation de ce modèle a permis de calculer un polynôme afin de représenter la résistance mécanique selon les facteurs d'influence du plan de mélange. Le modèle a été validée au vu de la valeur du R² (0,97), coefficient de détermination, du R² ajusté (0,88) et de la valeur-p de 0,016 (<0,05) qui signifie que le modèle est bien ajusté.

La figure 2 représente la surface de réponse (a) et le contour (b) qui illustrent la relation entre la résistance mécanique (y) et la variation de la fraction massique des constituants : X_{SED} , $X_{Na_2SiO_3}$ et X_{H_2O} et en gardant X_{NaOH} aux valeurs du barycentre. A travers l'observation de la surface de réponse (a) il est possible de déterminer et de valider l'optimum du mélange qui correspond à une valeur de 3,68 MPa. Le contour se lit comme un diagramme ternaire avec, en triplet, les valeurs de X_{SED} , X_{H_2O} et $X_{Na_2SiO_3}$. Il permet de mettre en avant plusieurs tendances dont la diminution de la résistance mécanique à mesure que X_{SED} diminue, soit que la quantité de précurseur diminue. Cet effet peut être lié à la diminution des aluminates dans les mélanges et à la moins grande fixation du sodium dans les réactions de géopolymérisation.

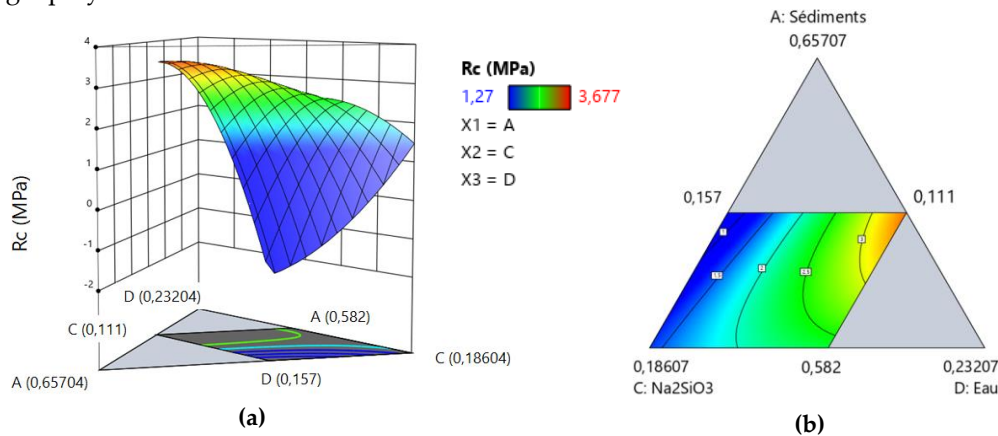


FIGURE 2. Surface de réponse (a) et contour (b) de la résistance mécanique pour le plan de mélange (les zones ombrées sont les zones interdites)

IV. CONCLUSION

L'analyse statistique de plan de mélange est une méthode appropriée pour concevoir des liants géopolymères à partir de sédiments de dragage. L'utilisation d'un modèle cubique réduit a permis de trouver une combinaison de facteurs correspondant à un profil de réponse optimale. La résistance mécanique la plus élevée a été obtenue avec un rapport massique Na₂SiO₃/NaOH de 1,54 et un rapport massique Activateur/Précurseur de 0,31. La définition d'un optimum sera bénéfique à la conception de mortier géopolymère à partir de sédiments de dragage.

REFERENCES

- [1] Ghanbari, M., Hadian, A.M. and Nourbakhsh, A.A. (2015). Effect of Processing Parameters on Compressive Strength of Metakaolinite Based Geopolymers: Using DOE Approach. *Procedia Materials Science*, 11, pp.711–716. <https://doi.org/10.1016/j.mspro.2015.11.047>
- [2] Santana, H.A., Andrade Neto, J.S., Amorim Júnior, N.S., Ribeiro, D.V., Cilla, M.S. and Dias, C.M.R. (2020). Self-compacting geopolymer mixture: Dosing based on statistical mixture design and simultaneous optimization. *Construction and Building Materials*, 249, p.118677. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2020.118677>
- [3] Maclean, G. D., Main, R.A., Anderson, T.E., 1966. Connective Tissue Ossification Presenting in the Skin. *Archives of Dermatology* 94(2), 168. <https://doi.org/10.1001/archderm.1966.01600260060007>
- [4] Turner, L. and Collins, F., 2013. Carbon dioxide equivalent (CO₂-e) emissions: A comparison between geopolymer and OPC cement concrete. *Construction and Building Materials*, 43, pp.125-130. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2013.01.02>
- [5] G.F. Piepel, A note comparing component-slop, Scheffé and Cox parameterizations of the linear mixture experiment model, *J. Appl. Statistics* 33 (4) (2006) 397–403, <https://doi.org/10.1080/02664760500449170>.