

# Mousse minérale : vers un modèle rhéologique

Annabelle Phelipot-Mardelé, Christophe Lanos, Nourhan Mortada Université de Rennes, Laboratoire de Génie Civil et Génie Mécanique, France

**RESUME** Les mousses minérales sont des milieux fortement poreux dont la structure est obtenue par moussage d'une suspension concentrée de particules minérales, suivi d'une solidification de la fraction solide. Maîtriser la formation à l'état frais de telles structures poreuses requiert l'identification d'un modèle rhéologique capable d'associer la rhéologie de la mousse aqueuse à la rhéologie de la suspension concentrée. La réflexion est ici uniquement centrée sur la contrainte de mise en écoulement considérée comme une fonction couplée, faisant intervenir la structure porale, le seuil de la suspension concentrée et la porosité liée aux bulles d'air. Les mousses minérales étudiées sont des mousses de gypse obtenues par malaxage direct en présence d'un tensio-actif. Le temps de malaxage est un paramètre d'ajustement du procédé, il varie de 2 min à 20 min. Il conditionne la structure porale de la mousse minérale. La rhéologie des mousses aqueuses, des suspensions concentrées, et des mousses minérales à l'état frais, est étudiée à l'aide d'un rhéomètre équipé d'une géométrie vane. A porosité égale, un lien évident apparaît entre la contrainte de mise en écoulement et la structure de la mousse : taille et distribution des bulles. Les différents résultats obtenus permettent d'aboutir à l'identification d'un modèle rhéologique complet qui peut être utilisé pour optimiser le couple formulation – condition de moussage.

**Mots-clefs** Mousse minérale, Rhéologie, Mousse aqueuse, Suspension concentrée

## I. INTRODUCTION

Dans le contexte environnemental actuel, le secteur du bâtiment se doit d'optimiser les performances énergétiques des constructions (Huovila & al. 2009) (Andrieux & al., 2022). Dans cette perspective, l'innovation en termes de matériaux isolants et autoporteurs constitue un enjeu important. Les mousses minérales sont une solution pertinente et adaptée à différents contextes, leurs propriétés d'usages (résistance mécanique et propriétés thermo-hydriques) présentant un compromis intéressant (Mugahed Amran & al., 2015). Les mousses minérales sont des milieux fortement poreux dont la structure est obtenue par moussage d'une suspension concentrée de particules minérales, suivi d'une solidification de la fraction solide, par exemple par réaction d'hydratation ou synthèse hydrothermale.

L'étude se concentre sur les mousses minérales produites par moussage mécanique direct, l'agent tensioactif moussant étant simplement introduit dans la suspension. Le moussage, obtenu par un mélangeage énergétique, conduit à l'occlusion d'air dans la matrice fluide. Le cas de moussage par dégagement gazeux (recours à  $H_2O_2$  ou introduction d'aluminium dans un milieu alcalin) est exclu.

L'article propose un modèle rhéologique construit à partir de relations théoriques validées sur des mousses modèles (Gorlier & al., 2017), visant à relier la rhéologie de la mousse minérale à l'état frais à la rhéologie de la suspension concentrée, à la rhéologie de la mousse aqueuse associée et à la

structure porale. L'approche proposée consiste à assimiler la mousse minérale au mélange d'une suspension concentrée et d'une mousse aqueuse. La réflexion est ici uniquement centrée sur la contrainte de mise en écoulement considérée comme une fonction couplée. Le modèle est alors confronté aux caractéristiques identifiées expérimentalement sur des mousses de gypse (Mortada, 2021). La pertinence du modèle rhéologique et son exploitation dans le but d'optimiser la formulation et les conditions de moussage sont alors discutées.

## II. PRODUCTION DES MOUSSSES AQUEUSES ET MINERALES

Les mousses minérales étudiées sont des mousses de gypse résultant de l'hydratation de particules d'hémihydrate de sulfate de calcium ( $\text{CaSO}_4 \cdot 0,5\text{H}_2\text{O}$ , plâtre Molda 3 Normal, Saint Gobain). Ce plâtre est produit à partir de gypse naturel de haute pureté. Sa masse volumique réelle est de  $2600 \text{ kg/m}^3$  (méthode du pycnomètre Le Chatelier). La masse volumique réelle du gypse, obtenue après hydratation, est de  $2320 \text{ kg/m}^3$ , mesurée avec un pycnomètre à gaz UltraPyc® 1200e.

Le tensio-actif retenu pour faciliter le moussage est l'Hostapur OSB, tensio-actif anionique (C14/16- $\alpha$ -olefin sulphonate sodium salt, Clariant Produkte®) caractérisé par une concentration micellaire critique (CMC) de 0,08 w% de l'eau. A cette concentration, la tension de surface de la solution est de  $35,7 \text{ mN/m}$  (Mortada & al., 2021).

Le moussage est obtenu par malaxage direct, l'ensemble des composants étant introduit dans un malaxeur (Heavy Duty - Kitchen Aid®) équipé d'un fouet. Le temps de malaxage est un paramètre d'ajustement du procédé. La vitesse de mélange correspond à 300 rpm.

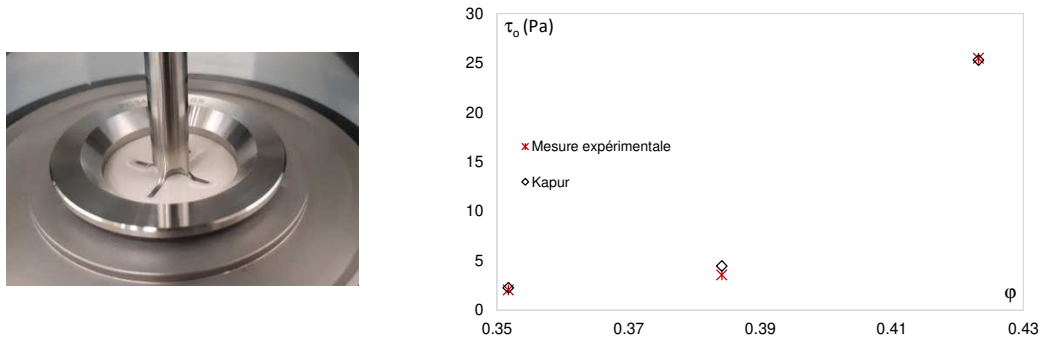
Plus de 50 formulations de mousses de gypse ont été produites (100 échantillons moulés), en variant le rapport massique eau/liant de 0,6 à 0,8 et le temps de malaxage de 2 à 20 minutes ce qui permet d'atteindre une grande diversité de masse volumique apparente ( $547$  à  $979 \text{ kg/m}^3$  à l'état frais). En raison du temps de prise rapide du plâtre (20 minutes), un retardateur de prise (retardan P® - Sika) est ajouté à la formulation (0,01% de la masse de liant) pour les temps de malaxage longs.

## III. RHEOMETRIE SUR LES MOUSSSES AQUEUSES ET MINERALES

La rhéologie des suspensions concentrées, des mousses aqueuses, et des mousses minérales à l'état frais, est étudiée à l'aide d'un rhéomètre Kinexus (Malvern®) équipé d'une géométrie vane (rayon 12,5 mm, hauteur 62 mm) placée dans un godet sablé de 35 mm de diamètre et 65 mm de profondeur.

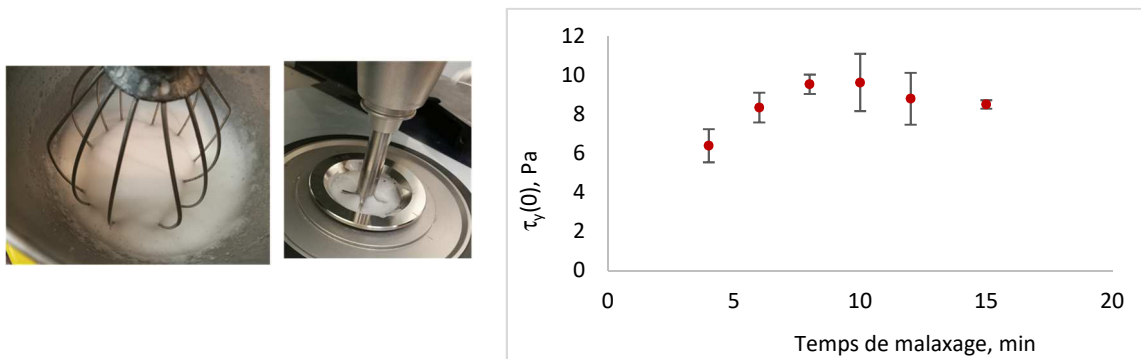
Les suspensions concentrées réalisées présentent des fractions volumiques solides comprises entre 0,35 et 0,42. Leur comportement rhéologique, identifié lors d'essais à rampe de vitesse de cisaillement imposée (méthode intégrée au logiciel prenant en compte le large entrefer), correspond au modèle de Bingham. Les seuils de mise en écoulement  $\tau_0$  évoluent de 2 à 25 Pa (Fig. 1). Un modèle de seuil en fonction de la fraction volumique solide  $\phi$  de type Kapur (Kapur & al., 1997) peut être ajusté sur ces données (Eq. (1)). On obtient ainsi une fraction volumique de packing dans la suspension concentrée de  $\phi_{\max} = 0,4338$  et un paramètre  $m = 1,5$ .

$$\tau_0 = \frac{m \cdot \phi^2}{\phi_{\max} - \phi} \quad (1)$$



**FIGURE 1.** Rhéologie des suspensions concentrées

Les mousses aqueuses (eau + tensio-actif) produites pour différents temps de malaxage présentent des seuils de mise en écoulement  $\tau_y(0)$  variant entre 6 et 10 Pa (Fig.2). Une valeur maximale est identifiée pour un temps de malaxage de 8 min, correspondant à un changement de texture de la mousse aqueuse. La mousse aqueuse stabilisée présente un rapport  $V_{\text{eau}}/V_{\text{mousse aqueuse}}$  caractéristique. Ce rapport converge vers 0,05 pour des mousses aqueuses drainées dont le volume est stabilisé (Mortada & al., 2021).



**FIGURE 2.** Rhéologie des mousses aqueuses

Les mousses minérales à l'état frais, obtenues par moussage des suspensions concentrées en présence de tensio-actif, pour différents temps de malaxage, présentent des seuils de mise en écoulement  $\tau_y(\Phi_f)$  variant entre 15 et 60 Pa (Fig. 3) où  $\Phi_f$  est la fraction volumique de suspension dans le mélange. Ce seuil est une fonction croissante du temps de malaxage présentant un plateau au-delà de 10 min de malaxage. Les suspensions les plus concentrées conduisent logiquement à des contraintes de mise en écoulement plus élevées.

La masse volumique de la mousse minérale fraîche ne varie pas significativement au début du malaxage, de 2 à 5 min, alors que le seuil de mise en écoulement évolue fortement. Un lien évident apparaît alors, à porosité égale, avec la taille et la distribution des bulles.

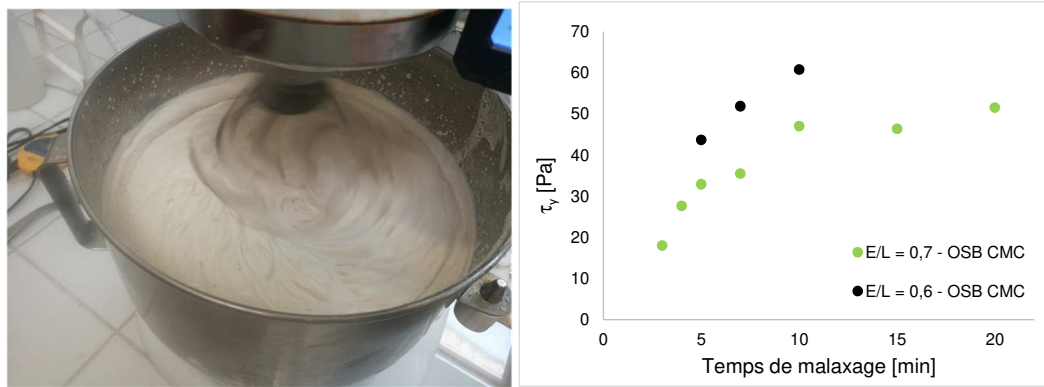


FIGURE 3. Rhéologie des mousses minérales

#### IV. MORPHOLOGIE DES MOUSSES AQUEUSES ET MINERALES

La granulométrie des bulles dans la mousse aqueuse est déterminée via un analyseur de mousse DFA100 de KRÜSS. Les rayons moyens vont de 0,05 à 0,50 mm selon l'état du drainage (Fig. 4).

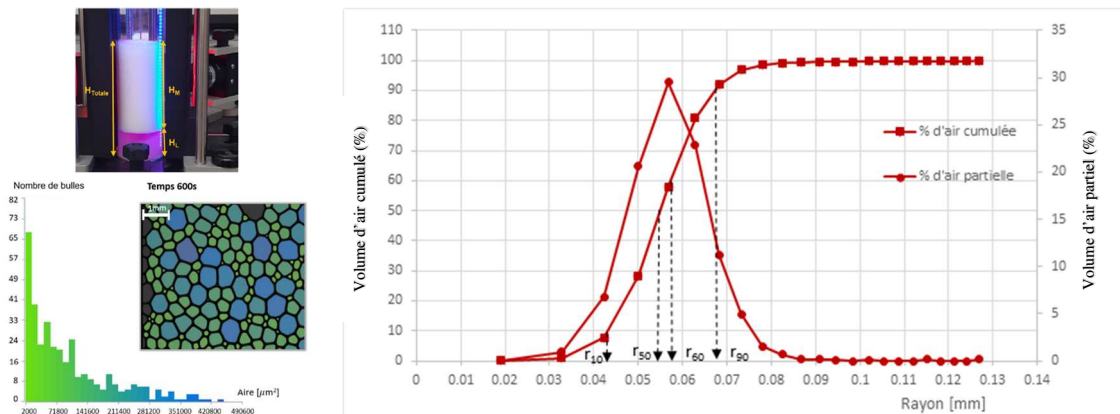


FIGURE 4. Distribution des tailles de bulles dans les mousses aqueuses (OSB, CMC)

La structure porale des mousses minérales est étudiée sur les échantillons durcis à l'aide d'un scanner 3D de résolution 0,1 mm (HandySCAN3D Black Series Elite, Creaform). Il émet puis reçoit les rayons réfléchis par la surface de l'échantillon. La suite logiciel associée (VXElements) conduit à une procédure d'acquisition, de fusion et de réparation des scans. Les tailles des bulles sont ainsi identifiées sur une surface d'échantillon représentative (2,55 cm<sup>2</sup>) en ajustant des sphères correspondant aux bulles. L'évolution de la distribution des tailles de bulle est analysée en fonction du temps de moussage et de la formulation.

Les distributions de tailles de bulles sont assez centrées (voir Fig. 5) et une taille moyenne de bulle est identifiée. La taille de bulle est décroissante avec le temps de malaxage, la décroissance étant marquée au tout début du malaxage.

Pour des durées de malaxage importantes, on constate au nettoyage du bol, une ségrégation d'une partie de la suspension concentrée qui se dépose en fond de bol, le mélange pouvant alors

poursuivre son moussage. Ce phénomène évoque une démixion induite par des conditions de cisaillement trop intenses. Dans ce domaine de démixion, la taille des bulles du mélange ne semble pas évoluer fortement alors que la consistance du mélange diminue sensiblement. Le moussage se traduit par une augmentation de la fraction de mousse aqueuse dans le mélange.

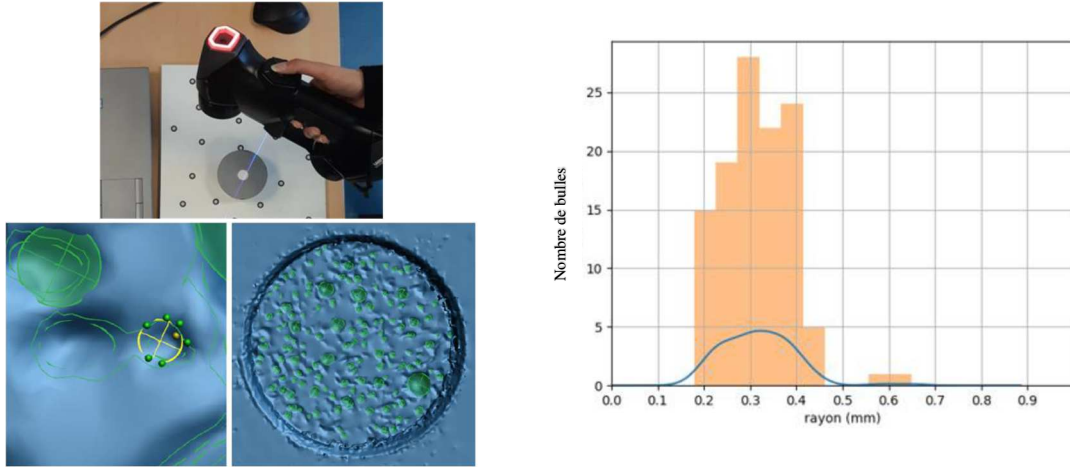


FIGURE 5. Distribution des tailles de bulles dans les mousses minérales (OSB, E/L=0,7, CMC)

### V. MODELE RHEOLOGIQUE

Une mousse minérale peut être considérée comme le mélange d’une suspension concentrée et d’une mousse aqueuse. Lors du moussage, de l’eau de la suspension minérale est mobilisée pour former plus de mousse aqueuse ce qui induit une augmentation de la fraction de mousse aqueuse ( $1-\Phi_f$ ) dans le mélange. La fraction volumique solide  $\phi$  de la suspension augmente alors au point d’atteindre la limite de packing (Fig. 6) ou une limite de stabilité telle que décrite par (Kaddami, 2019), la taille des grains de la suspension interférant avec la taille des plateaux dans la mousse. L’instabilité serait ainsi constatée après 15 minutes de malaxage, sachant qu’elle est constatée à partir de 12 minutes expérimentalement.

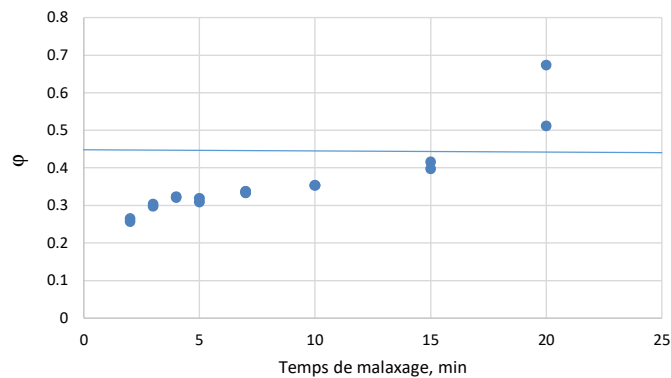


FIGURE 6. Evolution de la fraction volumique solide  $\phi$  de la suspension concentrée lors du moussage (OSB, E/L=0,7, CMC)

En présence de fluide à seuil, la stabilité des bulles d'air peut être évaluée à l'aide d'un nombre capillaire de Bingham, mettant en opposition les effets de seuil du fluide suspendant et les effets de surface. Le nombre capillaire de Bingham est défini par :

$$Ca = \tau_0 \cdot \frac{R}{\gamma} \quad (2)$$

Où  $\tau_0$  est le seuil de mise en écoulement de la suspension concentrée,  $R$  le rayon des bulles et  $\gamma$  la tension de surface. Dans notre cas, la valeur de la tension de surface considérée est celle d'une solution aqueuse du tensioactif à la CMC, soit  $\gamma = 35,7$  mN/m.

Le seuil de mise en écoulement d'une mousse aqueuse monodisperse  $\tau_y(0)$ , est relié à la fraction volumique de gaz  $\Phi$  dans la mousse aqueuse selon (Cantat & al., 2013) :

$$\tau_y(0) = 0,6 \cdot \frac{\gamma}{R} \cdot (\Phi - 0,64)^2 \quad (3)$$

Cette expression reste acceptable tant que la fraction volumique de gaz  $\Phi$  reste supérieure à 0,64, valeur correspondant à l'empilement compact de sphères (ou de bulles).

Selon l'approche développée par (Gorlier & al., 2017), le seuil de mise en écoulement  $\tau_y(\Phi_f)$  d'une mousse minérale considérée comme le mélange d'une suspension concentrée dans une mousse aqueuse monodisperse est donné par :

$$\frac{\tau_y(\Phi_f)}{\tau_y(0)} = 1 + c \cdot \Phi_f^{4/3} \cdot Ca^{2/3} \quad (4)$$

Où  $\Phi_f$  est la fraction volumique de suspension concentrée dans la mousse minérale et  $c$  une constante égale à 110. Cette relation est utilisable lorsque les particules, présentes dans la suspension concentrée, restent de petite taille par rapport aux bulles, ce qui est le cas ici. Les bornes du domaine d'exploitation de ce modèle restent à identifier et ce modèle demeure associé à des mousses formées de bulles identiques et en interaction.

Une autre estimation du seuil de mise en écoulement de la mousse minérale peut être évaluée en adaptant l'approche par homogénéisation (Mahaut & al., 2008) qui est initialement développée pour des occlusions rigides. En considérant la mousse minérale comme la dispersion de mousse aqueuse (considérée rigide) dans une suspension concentrée de seuil  $\tau_0$ , on peut écrire :

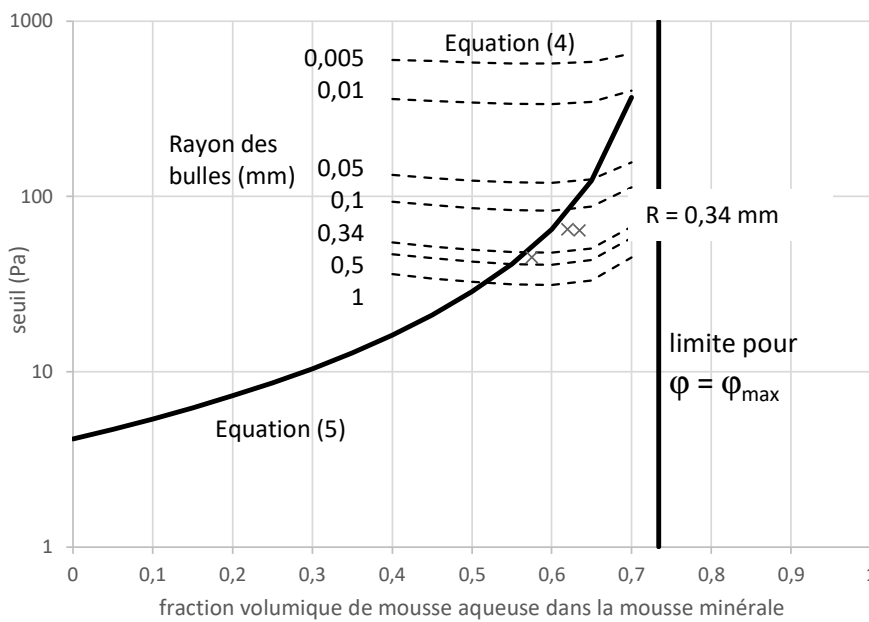
$$\frac{\tau_y(\Phi_f)}{\tau_0} = (\Phi_f)^{-0,75} \quad (5)$$

Cette expression serait licite pour des valeurs suffisantes de  $\Phi_f$ . De façon symétrique, en considérant la mousse minérale comme la dispersion d'occlusions de suspension concentrée (considérées rigides) dans une mousse aqueuse de seuil  $\tau_y(0)$ , on peut écrire :

$$\frac{\tau_y(\Phi_f)}{\tau_y(0)} = (1 - \Phi_f)^{-0,75} \tag{6}$$

Cette expression serait licite pour des valeurs basses de  $\Phi_f$ , ce qui ne correspond pas à notre domaine d'étude, le moussage étant généré à partir d'une suspension concentrée.

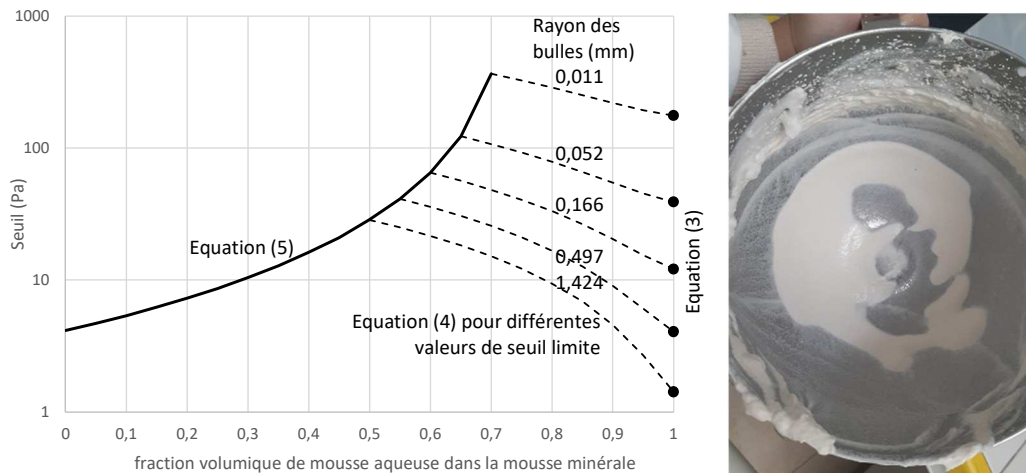
Les deux équations (4) et (5) peuvent être utilisées pour prédire, durant le moussage, l'évolution de la valeur du seuil de mise en écoulement  $\tau_y(\Phi_f)$  d'une mousse minérale en fonction de l'évolution de la fraction volumique de mousse aqueuse ( $1 - \Phi_f$ ) dans le mélange (Fig. 7). Selon l'approche proposée, lors du moussage d'une mousse minérale, l'air entraîné va contribuer à augmenter la fraction volumique de mousse aqueuse. L'évolution de cette dernière affecte la valeur de  $\tau_0$  en prélevant de l'eau de la suspension concentrée pour l'affecter à la mousse aqueuse. Une augmentation de la fraction volumique solide  $\varphi$  de la suspension concentrée est alors induite. En parallèle et conformément à l'Eq. (3) la taille des bulles peut évoluer, changeant  $\tau_y(0)$ . L'intersection des courbes correspondant aux équations (4) et (5) permet d'identifier une taille de bulle caractéristique. L'augmentation durant le moussage de la quantité de mousse aqueuse dans le mélange conduit à une diminution de la taille de bulles et une augmentation de la concentration de la suspension concentrée jusqu'au phénomène de démixion. Atteindre des fractions volumiques élevées de mousse aqueuse n'est donc pas possible.



**FIGURE 7.** Evolution du seuil du mélange  $\tau_y(\Phi_f)$  en fonction de la fraction volumique de mousse aqueuse ( $1 - \Phi_f$ ) conformément aux équations (4) et (5) (OSB, E/L=0,7, CMC)

La démixion, associée à un cisaillement trop intense (fonction des caractéristiques de mélange : vitesse de rotation, puissance, géométrie du bol, du fouet, du taux de remplissage...) peut être traduite par une valeur limite de seuil de mise en écoulement du mélange  $\tau_y(\Phi_f)$  qui ne peut être dépassée. Si le malaxage se poursuit malgré l'apparition de ce phénomène, la mousse aqueuse continue à se former et une partie croissante de la suspension concentrée (ayant atteint  $\varphi_{max}$ ) se

dépose sur le bol (Fig. 8 droite). Au regard des constats expérimentaux, il semble que la taille des bulles de la mousse n'évolue pas durant cette étape du malaxage. Il est donc possible de construire la courbe caractéristique de l'évolution du seuil de mise en écoulement de la mousse minérale respectant l'Eq. (4) en imposant  $R$  constant. Les courbes obtenues pour différentes valeurs limites du seuil  $\tau_y(\Phi_i)$  sont présentées sur la Fig. 8 gauche. La valeur obtenue pour une fraction volumique de mousse aqueuse égale à 1 est logiquement donnée par l'Eq. (3).



**FIGURE 8.** Evolution du seuil du mélange  $\tau_y(\Phi_i)$  en fonction de la fraction volumique de mousse aqueuse dans le régime de démixion avec  $R$  constant (OSB,  $E/L=0,7$ , CMC)

## VI. CONFRONTATION EXPERIMENTAL-MODELE

Le modèle rhéologique proposé qui repose sur le respect simultané des équations (3) à (5) permet de relier la rhéologie de la mousse minérale à la rhéologie de la suspension concentrée et à la rhéologie de la mousse aqueuse. La contrainte de mise en écoulement d'une mousse minérale est ainsi une fonction couplée faisant intervenir les paramètres de la structure porale (porosité et  $R$ ) et le seuil de mise en écoulement de la suspension concentrée  $\tau_0$ . Ces paramètres ont pu être mesurés sur différentes mousses minérales. Les résultats sont comparés aux modèles sur la Fig. 7 (croix, correspondant globalement à  $R = 0,33$  mm à  $0,35$  mm). On constate que, malgré des hypothèses fortes pour construire le modèle (rayon de bulles monodisperses, bulles considérées comme des occlusions rigides), les résultats expérimentaux s'ajustent bien aux tendances du modèle.

## VII. CONCLUSIONS

A partir d'un ensemble de données expérimentales liées à la texture et à la rhéologie des suspensions concentrées de sulfate de calcium, des mousses aqueuses formulées avec un tensioactif dans de l'eau et des mousses minérales résultant du mélange de ces deux phases, il a été possible de mettre en évidence les différentes étapes conduisant au moussage. Dans un premier temps, l'occlusion d'air peut être abordée sous l'angle d'une homogénéisation. La formation progressive de bulles de plus en plus petites mobilise une partie de l'eau du mélange et induit une augmentation sensible de  $\phi$ , la fraction volumique de la suspension concentrée. Lorsque la porosité est telle que

les bulles sont en interaction (fraction volumique de mousse aqueuse  $(1 - \Phi_i)$  voisine de 0,52 définie comme un seuil de percolation), le mélange peut être considéré comme une suspension concentrée suspendant une mousse aqueuse formée de bulles imbriquées. La coordination de ces deux points de vue permet d'évaluer, pour chaque étape du moussage, le seuil de mise en écoulement du mélange  $\tau_y(\Phi_i)$  et sa taille de bulles caractéristique. Le modèle construit sur l'exploitation des équations (3) à (5) peut ainsi être utilisé comme un réel outil d'optimisation du couple formulation – condition de moussage.

Les résultats expérimentaux sont en accord satisfaisant avec le modèle et il conviendrait d'enrichir les résultats en multipliant les campagnes d'essais sur d'autres matrices minérales et en systématisant l'évaluation de l'évolution de la taille de bulle durant le moussage.

L'intérêt du modèle est également de pouvoir interpréter le phénomène de démixion constaté expérimentalement en l'associant à l'atteinte de conditions limites de cisaillement ou de stabilité. La réflexion étant uniquement centrée sur la contrainte de mise en écoulement, il conviendrait d'y associer l'évaluation d'un cisaillement maximum ou d'une instabilité géométrique conduisant à la démixion. Une étude spécifique sur ce sujet est donc nécessaire.

## REFERENCES

V. Andrieux, & al. (2022) Bilan énergétique de la France pour 2020, Commissariat général au développement durable, Nancy. 160p (<https://www.statistiques.developpement-durable.gouv.fr/edition-numerique/bilan-energetique-2020/liseuse/>)

I. Cantat, S. Cohen-Addad, F. Elias, F. Graner, R. Höhler, O. Pitois, F. Rouyer (2013) *Foams: Structure and Dynamics*, Oxford University Press, Oxford.

F. Gorlier, Y. Khidas & O. Pitois. (2017) Yielding of complex liquid foams. *Journal of Rheology*, 61(5), 919-930. <https://doi.org/10.1122/1.4994786>

P. Huovilae et al, (2009) Buildings and Climate Change: Summary for Decision-Makers. Nairobi, Kenya: United Nations Environment Programme (<https://wedocs.unep.org/handle/20.500.11822/32152>).

A. Kaddami (2019) Elaboration et étude des propriétés fonctionnelles de géopolymères moussés (Thèse de doctorat) Université Paris-Est, France,

P. C. Kapur, P. J. Scales, D. V. Boger, et T. W. Healy (1997) Yield stress of suspensions loaded with size distributed particles. *AIChE J.*, 43 (5), 1171-1179, mai 1997, doi: 10.1002/aic.690430506.

F. Mahaut, X. Chateau, P. Coussot, G. Ovarlez. (2008) Yield stress and elastic modulus of suspensions of noncolloidal particles in yield stress fluids. *Journal of Rheology* 52(1), 287-313. <https://doi.org/10.1122/1.2798234>

N. Mortada (2021). Mousses minérales : développement, structure porale et propriétés d'usages (Thèse de doctorat) Université de Rennes 1.

N. Mortada, A. Phelipot-Mardelé, C. Lanos (2021). Effects of surfactants on aqueous foams properties: a step towards mineral foams. *European Journal of Environmental and Civil Engineering* 1–12. <https://doi.org/10.1080/19648189.2021.1986139>

Y.H. Mugahed Amran, N. Farzadnia & A.A. Abang Ali. (2015) Properties and Applications of Foamed Concrete; a Review. *Construction and Building Materials* 101, 990-1005. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2015.10.112>