

Influence de la variabilité des bioressources sur l'hydratation de liants minéraux

Ana Laura BERGER COKELY¹, Sandrine MARCEAU¹, Grégory MOUILLE², Sofiane AMZIANE³, Fabienne FARCAS¹

¹ Université Gustave Eiffel, MAST/CPDM, 77454 Marne-la-Vallée Cedex 2, France

² Institut Jean-Pierre Bourgin, INRAE, AgroParisTech, Université Paris-Saclay, Versailles 78000, France

³ Univ. Clermont Auvergne, UMR 6602 CNRS, Institut Pascal, 63178 Aubière, France

RESUME

Les bétons végétaux sont de plus en plus utilisés comme matériaux de construction grâce à leurs propriétés hygrothermiques et leur impact environnemental réduit. Cependant, les études existantes montrent qu'il est encore impossible de prédire leurs performances mécaniques à partir de leur formulation initiale. Cet article présente les premiers résultats d'un projet qui vise à contrôler les performances mécaniques des bétons végétaux et à définir des indicateurs de compatibilité entre les liants minéraux et les particules végétales. Un des axes de ce projet consiste à évaluer l'influence des propriétés bio-physico-chimiques de végétaux sur les mécanismes d'hydratation de liants minéraux. Dans cet article, l'impact de six espèces végétales sur la cinétique d'hydratation du ciment Portland est évalué par calorimétrie isotherme. L'ajout des végétaux entraîne des décalages des courbes de flux de chaleur très variables en fonction de leur nature. Ces résultats sont généralement attribués à certains composants des végétaux, comme les sucres et polyphénols qui ont un effet retardateur de prise des ciments.

Mots-clés biosourcé, isolant, végétal, liant minéral, variabilité

I. CONTEXTE ET PROBLEMATIQUE

L'utilisation des bétons végétaux augmente dans le secteur du bâtiment grâce à leurs propriétés d'isolation hygrothermique et acoustique, essentiellement due à la porosité intrinsèque du matériau, ce qui impacte l'efficacité énergétique des bâtiments et donc l'impact environnemental de ce secteur (Amziane and Collet, 2017; Chupin et al., 2017; Ratsimbazafy et al., 2021). Ils contiennent des ressources végétales locales, ce qui réduit leur impact environnemental.

Cependant, l'utilisation des bétons biosourcés est encore limitée par le manque de connaissances et la forte variabilité de leurs performances qui rend impossible la prédiction de leurs performances mécaniques à partir de leur formulation (Bourdot et al., 2019; Niyigena et al., 2018). Par exemple, la Figure 1 montre la dispersion des performances de bétons végétaux de même formulation mais contenant des particules de chanvre d'origine différente. En particulier, les performances mécaniques varient jusqu'à quatre-vingt-dix pour cent.

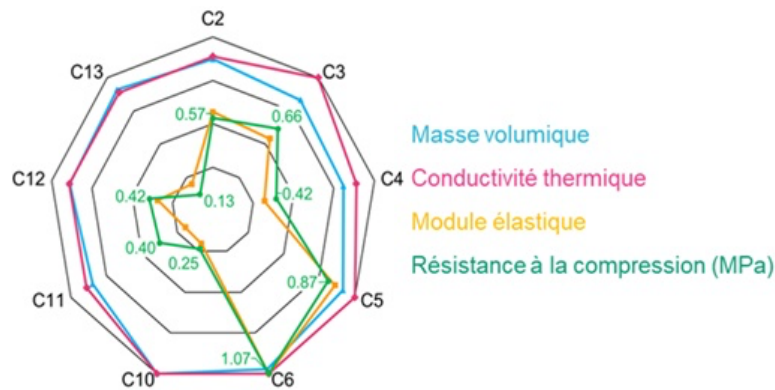


FIGURE 1. Variabilité des performances (adapté de Niyigena et al., 2018)

Le rôle de la variabilité des propriétés des ressources végétales (selon l'espèce, le génotype, la localisation ou les conditions de culture) n'est pas encore bien compris, et il n'existe pas de critère de sélection de végétaux compatibles avec les liants (Arufe et al., 2021; Chupin et al., 2017; Delannoy et al., 2020; Wang et al., 2021).

Ainsi, pour pallier au manque de connaissances sur ce type de matériau, le projet BIO-UP, financé par l'Agence Nationale de la Recherche (ANR), a pour objectif de définir des règles pour la formulation de bétons végétaux et d'obtenir des propriétés contrôlées en tenant compte leur impact environnemental. A cette fin, les propriétés des matériaux seront caractérisées à toutes les échelles d'analyse : depuis la caractérisation chimique des composants et ses interactions, des interfaces autour des particules végétales, jusqu'à leurs propriétés fonctionnelles (thermique et mécanique).

Un des axes de ce projet concerne les interactions chimiques entre les composants végétaux et minéraux des matériaux. En premier temps, l'influence de plusieurs végétaux sur les mécanismes d'hydratation de liants minéraux de différentes compositions chimiques est analysée. Les premiers résultats concernant le ciment CEM I sont présentés dans cet article. Dans un deuxième temps, la variabilité des propriétés biochimiques des végétaux sera évaluée et le lien entre cette variabilité et les mécanismes d'hydratation des liants sera étudié. Enfin, des critères de sélection de couples liant-végétal et/ou traitements pour limiter ces interactions seront proposés.

Dans la suite de cet article, un état de l'art sur l'hydratation du ciment et l'impact de la présence des végétaux sera présenté. Ensuite, les premiers résultats concernant l'influence de la présence de six types de végétaux sur l'hydratation du CEM I seront détaillés, avant de présenter les perspectives de ce travail.

II. INFLUENCE DE LA PRESENCE DE VEGETAUX SUR LA PRISE DU CIMENT

A. Hydratation du ciment Portland

Le ciment CEM I est un liant hydraulique produit à partir de la cuisson de calcaire et d'argiles à très haute température (1450°C) pour obtenir son composant principal : le clinker Portland, qui se compose principalement de silicates et aluminates de calcium non hydratés. Le ciment CEM I est

composé d'un minimum de 95 % de clinker et de constituants secondaires, notamment du gypse comme source de sulfate pour réguler la prise (Taylor, 1997).

Pendant l'hydratation du ciment Portland, les silicates de calcium C3S et C2S conduisent à la formation de silicate de calcium hydraté (C-S-H) et portlandite (CH), responsables respectivement de la résistance mécanique du matériau à long terme et du pH alcalin de la pâte. Les produits secondaires de l'hydratation sont les phases sulfoalumineuses AF (AFt et AFm), formées spécifiquement à partir de l'hydratation des aluminates de calcium C3A et C4AF (Taylor, 1997).

La cinétique d'hydratation du ciment portland est bien connue. Le C3A réagissant très rapidement avec l'eau, du gypse est ajouté dans les ciments commerciaux pour retarder la prise et maintenir l'ouvrabilité de la pâte (Taylor, 1997).

B. Influence des végétaux sur l'hydratation des ciments

De nombreuses études existent sur les interactions végétal-minéral et utilisent des approches très différentes. Un retard de prise des liants est communément constaté quand des végétaux sont ajoutés, mais aussi une grande variabilité des propriétés mécaniques, tel que mentionné précédemment. Ces phénomènes sont généralement liés aux composés extraits des végétaux, notamment les métabolites solubles comme les sucres et polyphénols (Boix et al., 2020; Bourdot et al., 2019; Chupin et al., 2017; Delannoy et al., 2020; Diquélou et al., 2015; Jury et al., 2022).

Une étude par le suivi de l'hydratation par calorimétrie isotherme avec adjuvants inorganiques et organiques a montré que toutes les molécules organiques étudiées ont un effet retardateur dans la prise des ciments, en particulier, les acides carboxyliques et les composés phénoliques. Les composés phénoliques, qui contiennent des groupes hydroxyle adjacents, sont des retardateurs puissants (Wilding et al., 1984). L'une des explications possibles est la capacité de complexation des ions calcium du ciment par ces molécules grâce aux fonctions hydroxyles qui sont sous forme ionisée en milieu basique.

Ainsi, les acides carboxyliques sont capables d'emprisonner les ions qui sont nécessaires pour la formation des hydrates du ciment, comme le calcium (Figure 2) et la silice. Ce phénomène peut ralentir, voire inhiber la prise et le durcissement du ciment.

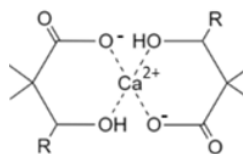


FIGURE 2. Complexe bidenté avec les ions Ca^{2+} (adapté de Thomas and Birchall, 1983)

Malgré les avancées apportées par ces études, il n'est toujours pas possible de prédire les performances des bétons végétaux et de tenir compte de la variabilité des propriétés des végétaux.

III. MATERIAUX ET METHODES

Afin d'évaluer l'influence de la variabilité des propriétés bio-physico-chimiques des végétaux, six espèces différentes cultivées en France métropolitaine ont été sélectionnées pour cette étude.



FIGURE 3. Photographies des granulats végétaux : balle de riz, bambou, miscanthus, roseau, colza, chènevotte

Dans cet article, l'impact de la présence de ces six végétaux est étudié sur la cinétique de prise du ciment CEM I.

L'effet de l'ajout de végétaux sur l'hydratation du ciment Portland est évalué dans cette étude par des mesures de calorimétrie isotherme à 25°C. Ainsi, le flux thermique libéré par la réaction exothermique de l'hydratation et la quantité cumulée de chaleur sont mesurés au cours du temps afin d'observer l'effet de la présence des végétaux.

Les mesures sont réalisées sur des pâtes de ciment contenant des poudres issues du broyage des végétaux avec un rapport de végétal sur ciment de 2 % et un rapport eau/ciment de 0,5.

IV. RESULTATS ET DISCUSSION

Les courbes de flux de chaleur obtenues par calorimétrie isotherme sont présentées sur la Figure 4, la courbe grise correspondant à la pâte de CEM I non modifiée.

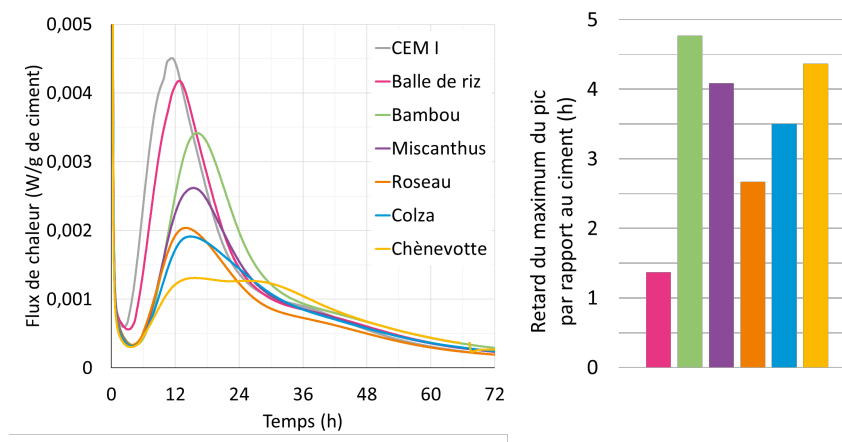


FIGURE 4. Flux de chaleur de pâtes de CEM I avec les végétaux

D'après les graphiques de la Figure 4 et selon Garcia Boivin (1999), Gmira (2003) et Scrivener *et al.* (2019), un fort dégagement de chaleur est visible lors de l'introduction des échantillons dans le calorimètre, qui masque le début de la réaction, c'est-à-dire la dissolution rapide et la libération d'ions calcium, silicates, aluminates, sulfates et alcalins dans le mélange. Ensuite, le flux est minimal, ce qui correspond à la période d'induction. Dans un troisième temps, le flux de chaleur augmente en raison de la précipitation de la portlandite et des C-S-H, formés par l'hydratation des silicates, notamment le C3S.

Le maximum du pic principal d'hydratation est atteint environ 9 h après le gâchage pour la pâte de CEM I. Ensuite, le flux de chaleur diminue, en raison de la décélération des réactions à cause de la couche d'hydrates qui s'épaissit avec le temps à la surface des grains de ciment anhydres et limite la diffusion de l'eau.

On note une grande différence entre la courbe correspondant au CEM I et les courbes obtenues pour les pâtes de ciment contenant des poudres végétales, ce qui illustre le changement de la cinétique d'hydratation. On observe le décalage de pics selon les deux axes : l'ajout des végétaux dans le CEM I provoque un décalage du maximum des pics de flux de chaleur vers des temps plus longs ainsi que la diminution de la valeur maximale et l'élargissement du pic exothermique. Dans le cas de la chènevotte, deux pics superposés sont visibles, ce qui semble correspondre aux chaleurs de réaction de deux types d'hydrates, alors qu'un épaulement est visible pour les autres végétaux.

Les valeurs des retards de prise par rapport au CEM I, déterminées en considérant le temps correspondant au maximum des flux de chaleurs (Figure 4), varient d'une peu plus d'une heure pour la balle de riz à presque cinq heures pour le bambou et le chanvre.

L'intégration des courbes de flux de chaleur par rapport au temps permet de quantifier les chaleurs cumulées lors de l'hydratation des pâtes de ciment. Les résultats obtenus sont présentés sur la Figure 5. La courbe présentant les valeurs les plus élevées est celle du CEM I. La présence des poudres végétales réduit le taux d'hydratation pendant les 5 premiers jours. On peut donc en déduire qu'elles réduisent également la quantité d'hydrates formés.

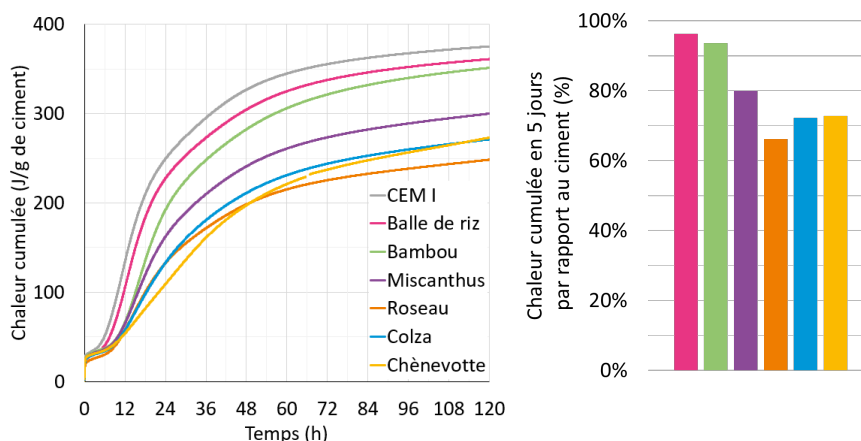


FIGURE 5. Chaleur cumulée de pâtes de CEM I avec les végétaux

Au bout de cinq jours, la chaleur d'hydratation cumulée atteint au moins 90% de celle du ciment seul pour la balle de riz et le bambou, alors qu'elle est plus faible pour les autres végétaux.

Une explication simple à l'impact réduit de la balle de riz avec le CEM I pourrait être sa teneur élevée en composés minéraux. En effet, les particules contiennent entre de 12% à 20% de silice selon le fournisseur. Cette spécificité pourrait entraîner une meilleure compatibilité chimique de la balle de riz avec les liants minéraux.

Dans le cas du bambou, le retard de prise est le plus élevé. Cependant, au bout de cinq jours, la chaleur d'hydratation cumulée correspond à plus de 90% de celle du ciment. Ce résultat montre qu'il ne faut pas prendre en compte uniquement le retard de prise mais également s'intéresser aux mécanismes d'hydratation du liant.

V. CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Les résultats présentés dans cet article ont permis d'illustrer l'influence de l'ajout de végétaux d'espèces différentes dans la pâte de ciment Portland. La balle de riz est le végétal qui modifie le moins la cinétique d'hydratation, alors que d'autres végétaux, comme le chanvre ou le roseau, ont un effet plus marqué.

La caractérisation des propriétés bio-physico-chimique des granulats végétaux permettra de mieux comprendre ces résultats. Dans la suite de ce travail, différents liants minéraux de composition physico-chimique différente seront également utilisés, ainsi que des végétaux d'origine géographique, d'année de production et de géotypes différents.

Grâce à l'évaluation des mécanismes et des cinétiques d'hydratation des liants en fonction de la composition des granulats végétaux, il sera possible de définir un indicateur de compatibilité minéral-végétal qui permettra de garantir les performances des bétons végétaux produits et d'élargir la formulation de ces matériaux à tous types de végétaux et de liants minéraux afin de pouvoir également optimiser leur impact environnemental.

VI. REMERCIMENTS

Ces travaux ont été réalisés dans le cadre du projet ANR BIO-UP soutenu par l'Agence Nationale de Recherche (ANR-21-CE22-0009).

REFERENCES

Amziane, S., Collet, F. (Eds.), 2017. Bio-aggregates Based Building Materials: State-of-the-Art Report of the RILEM Technical Committee 236-BBM, *RILEM State-of-the-Art Reports*. Springer Netherlands, Dordrecht. <https://doi.org/10.1007/978-94-024-1031-0>

Arufe, S., Hellouin de Menibus, A., Leblanc, N., Lenormand, H., 2021. Effect of retting on hemp shiv physicochemical properties. *Industrial Crops and Products* 171, 113911. <https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2021.113911>

Boix, E., Gineau, E., Narciso, J.O., Höfte, H., Mouille, G., Navard, P., 2020. Influence of chemical treatments of miscanthus stem fragments on polysaccharide release in the presence of cement and

on the mechanical properties of bio-based concrete materials. *Cement and Concrete Composites* 105, 103429. <https://doi.org/10.1016/j.cemconcomp.2019.103429>

Bourdot, A., Magniont, C., Lagouin, M., Niyigena, C., Evon, P., Amziane, S., 2019. Impact of Bio-Aggregates Properties on the Chemical Interactions with Mineral Binder, Application to Vegetal Concrete. *ACT* 17, 542–558. <https://doi.org/10.3151/jact.17.542>

Chupin, L., Ridder, D. de, Clément-Vidal, A., Soutiras, A., Gineau, E., Mouille, G., Arnoult, S., Brancourt-Hulmel, M., Lapiere, C., Pot, D., Vincent, L., Mija, A., Navard, P., 2017. Influence of the radial stem composition on the thermal behaviour of miscanthus and sorghum genotypes. *Carbohydrate Polymers* 167, 12–19. <https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2017.03.002>

Delannoy, G., Marceau, S., Glé, P., Gourlay, E., Guéguen-Minerbe, M., Diafi, D., Amziane, S., Farcas, F., 2020. Impact of hemp shiv extractives on hydration of Portland cement. *Construction and Building Materials* 244, 118300. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2020.118300>

Diquélou, Y., Gourlay, E., Arnaud, L., Kurek, B., 2015. Impact of hemp shiv on cement setting and hardening: Influence of the extracted components from the aggregates and study of the interfaces with the inorganic matrix. *Cement and Concrete Composites* 55, 112–121. <https://doi.org/10.1016/j.cemconcomp.2014.09.004>

Garcia Boivin, S., 1999. Retrait au jeune âge du béton - Développement d'une méthode expérimentale et contribution à l'analyse physique du retrait endogène. École Nationale des Ponts et Chaussées.

Gmira, A., 2003. Etude texturale et thermodynamique d'hydrates modèles du ciment. Université d'Orléans.

Jury, C., Girones, J., Vo, L.T.T., Di Giuseppe, E., Mouille, G., Gineau, E., Arnoult, S., Brancourt-Hulmel, M., Lapiere, C., Cézard, L., Navard, P., 2022. One-step preparation procedure, mechanical properties and environmental performances of miscanthus-based concrete blocks. *Materials Today Communications* 31, 103575. <https://doi.org/10.1016/j.mtcomm.2022.103575>

Niyigena, C., Amziane, S., Chateaneuf, A., 2018. Multicriteria analysis demonstrating the impact of shiv on the properties of hemp concrete. *Construction and Building Materials* 160, 211–222. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2017.11.026>

Ratsimbazafy, H.H., Laborel-Préneron, A., Magniont, C., Evon, P., 2021. A Review of the Multi-Physical Characteristics of Plant Aggregates and Their Effects on the Properties of Plant-Based Concrete. *RPM* 03, 1–1. <https://doi.org/10.21926/rpm.2102026>

Scrivener, K., Ouzia, A., Juilland, P., Kunhi Mohamed, A., 2019. Advances in understanding cement hydration mechanisms. *Cement and Concrete Research* 124, 105823. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2019.105823>

Taylor, H.F.W., 1997. *Cement chemistry*, 2nd ed. ed. T. Telford, London.

Thomas, N.L., Birchall, J.D., 1983. The retarding action of sugars on cement hydration. *Cement and Concrete Research* 13, 830–842. [https://doi.org/10.1016/0008-8846\(83\)90084-4](https://doi.org/10.1016/0008-8846(83)90084-4)

Wang, L., Lenormand, H., Zmamou, H., Leblanc, N., 2021. Effect of variability of hemp shiv on the setting of lime hemp concrete. *Industrial Crops and Products* 171, 113915. <https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2021.113915>

Wilding, C.R., Walter, A., Double, D.D., 1984. A classification of inorganic and organic admixtures by conduction calorimetry. *Cement and Concrete Research* 14, 185–194. [https://doi.org/10.1016/0008-8846\(84\)90103-0](https://doi.org/10.1016/0008-8846(84)90103-0)