Stabilisation de briques de cendres volantes comprimées par activation alcaline

Elodie Prud'homme[1], Romain Cochonnat[2], Frédéric Jacquiot[3], Patrick Tintiller[4], Sébastien Georges[5]

[1] *Université de Lyon – INSA Lyon – MATEIS, 7 avenue Jean Capelle, 69621 Villaurbenanne, France, elodie.prudhomme@insa–lyon.fr*

[2] *Université de Lyon – INSA Lyon – MATEIS, 7 avenue Jean Capelle, 69621 Villaurbenanne, France, romain.cochonnat@insa–lyon.fr*

[3] *Université de Lyon – INSA Lyon – MATEIS, 7 avenue Jean Capelle, 69621 Villaurbenanne, France, frederic.jacquiot@insa–lyon.fr*

[4] *LafargeHolcim – Centre de Recherche, 95, rue du Montmurier, 38291 St-Quentin-Fallavier, France, patrick.tintillier@lafargeholcim.com*

[5] *LafargeHolcim – Centre de Recherche, 95, rue du Montmurier, 38291 St-Quentin-Fallavier, France, sebastien.georges@lafargeholcim.com*

RÉSUMÉ. L'Inde valorise actuellement les cendres volantes de centrales thermiques en les intégrant dans des briques de cendres comprimées stabilisées au ciment à hauteur de 5%. Leur impact environnemental est donc non-négligeable. Une stabilisation par activation alcaline est une alternative pertinente dans ce domaine. La stabilisation des briques a donc été faite avec un ajout de plusieurs taux de solution alcaline et différentes températures de cure. Les matériaux obtenus ont été comparés avec des briques de cendres volantes comprimées stabilisées au ciment. L'ajout de solution alcaline permet d'augmenter les performances mécaniques des briques. Sa teneur doit cependant rester supérieure à 2,5% afin de garantir les performances mécaniques requises. Celles-ci sont atteintes dès 7 jours et peuvent être obtenues à plus court termes en jouant sur la température de cure. Leur tenue à l'eau est légèrement meilleure qu'avec une stabilisation à base de ciment. Leur développement pourrait donc concurrencer l'utilisation des briques de cendres volantes stabilisées au ciment.

ABSTRACT. India is currently upgrading fly ash from thermal power plants by incorporating them into compressed ash bricks stabilized with 5% of cement. Their environmental impact is therefore not negligible. Stabilization by alkaline activation is a relevant alternative. Stabilization of the bricks was therefore made with an addition of several alkaline solution rates and at various temperature of curing. The materials obtained were compared with compressed fly ash bricks stabilized with cement. The addition of alkaline solution increases the mechanical performances of bricks. Its alkaline solution content must however remain higher than 2.5% in order to guarantee the required mechanical performances. These are reached as early as 7 days and can be obtained in shorter terms by adjusting the cure temperature. Their water resistance is slightly better than with a stabilization based on cement. Their development could therefore compete with the use of cement stabilized fly ash bricks.

MOTS-CLÉS : Cendre volantes, Activation alcaline, Propriétés mécaniques, Tenue à l'eau, Briques comprimées, Eco-matériaux.

KEY WORDS: Fly ash, Alkaline activation, Mechanical properties, Water resistance, Compressed brick, Ecomaterial.

1. Introduction

Face à la demande en logements abordables de plus en plus grande à travers le monde, la recherche de solution bas coût et respectueuse de l'environnement est un important challenge. En effet, la construction telle qu'elle est pratiquée dans les pays développés, principalement à base de ciment béton et bois, n'est pas toujours accessible aux budgets les plus faibles. Il existe de nombreux gisements de matières premières à bas coût qui peuvent être d'origine naturelle comme la terre crue ou des sous-produits d'origine industrielle comme les laitiers et les cendres volantes de centrales thermiques. Afin de subvenir à ses besoins en électricité, l'Inde est un pays qui possède un nombre très important de centrales thermiques, ce qui induit une production de cendres volantes de l'ordre de plusieurs millions de tonnes par an [HAQ 13]. Afin de gérer au mieux ce type de déchets, le gouvernement indien impose l'utilisation de ce coproduit industriel dans la fabrication de briques de construction dans un rayon de 100km autour des centrales thermiques [KUM 03] [FLY 15]. Ces briques de cendres comprimées sont aujourd'hui stabilisées à base de ciment à hauteur de 5%. Leur impact environnemental est donc non-négligeable et finalement équivalent à l'utilisation d'un bloc béton [SOR 18]. L'utilisation d'un mode de stabilisation innovant permettrait donc de limiter les émissions de CO_2 qui leurs sont associées. Pour cela, l'activation alcaline ou géopolymerisation [DAV 91] est une solution pertinente [MUD 14] [SOR 18]. Le développement de cette voie de valorisation des cendres volantes en Inde permettrait ainsi d'augmenter la proportion de coproduits valorisés en limitant leur stockage et les émissions de CO_2.

Cette étude de formulation a pour objectif d'évaluer l'impact de l'activation alcaline sur les propriétés mécaniques et la tenue à l'eau de briques de cendres volantes comprimées. Pour cela, plusieurs taux d'activation alcaline ont été testés, ainsi que différentes températures de cure. Les échantillons ont ensuite été caractérisés en compression. Leur intégrité après immersion dans de l'eau osmosée a également été évaluée. Des briques de cendres volantes stabilisées au ciment et fabriquées suivant le processus de fabrication indien seront également testées à titre de comparaison.

2. Méthodes expérimentales

2.1. Matières premières et protocoles expérimentaux

Les briques de cendres volantes stabilisées par activation alcaline sont obtenues en mélangeant une solution alcaline, du sable et des cendres volantes. Les cendres volantes indiennes connaissant une grande variabilité de composition suivant les centrales thermiques, cette étude a été menée avec une cendre volante commerciale connue, contenant 51.3% de phase amorphe, et principalement constituée de 54% de silice, de 25% d'alumine, de 7% d'oxyde de fer et de 2% d'oxyde de calcium. Le sable utilisé est un sable roulé 0/5 R (Lafarge Granulat). La solution alcaline est préparée à partir d'un silicate de sodium (SiO_2/Na_2O = 2.1, ρ = 1,5 $g.cm^{-3}$, Fisher Scientific) et d'hydroxyde de sodium (pastilles, 99% de pureté, Fisher Scientific). Le protocole de fabrication de ces briques est présenté Figure 1A. La quantité de solution alcaline a été variée entre 0,5 et 3,2% en masse, le rapport massique entre le sable et la cendre volante est égale à 1. Cinq températures de cure ont également étaient testées, à savoir la température ambiante (T_{Amb}), 30°C, 40°C, 50°C et 75°C.

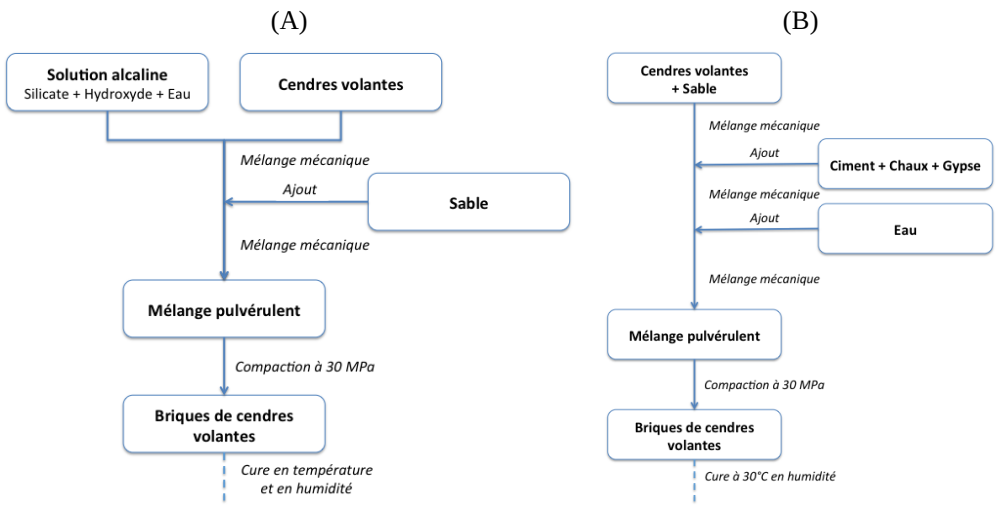

Figure 1. *Protocoles de fabrication des briques stabilisées (A) par activation alcaline et (B) stabilisées au ciment.*

Les briques de cendres volantes stabilisées au ciment contiennent la même cendre volante additionnée de ciment (CEM I 52.5 N CE PM-ES-CP2 NF, Le teil, Lafarge Holcim), de chaux éteinte ($Ca(OH)_2$, Carrières et Chaux Balthazard & Cotte) et de gypse (Gypse Almeria, Saint Gobain Placo Iberica). Le protocole de fabrication est détaillé Figure 1B.

Les briques sont obtenues en compactant à 30 MPa 300g de mélange pulvérulent dans un moule rectangulaire en acier (10cm x 5cm), de manière à obtenir des briques de 2cm de hauteur. Elles sont ensuite placées en condition de cure endogène.

2.2. Techniques expérimentales

Les mesures par spectroscopie infrarouge ont été réalisées sur un appareil IS50 (Thermofisher) en mode ATR sur poudre entre 500 et 4000 cm^{-1}. La microscopie électronique à balayage a été réalisée sur un appareil Supra55 (Zeiss) avec une tension de 5kV.

Les essais mécaniques en compression ont été réalisés sur une presse électromécanique Zwick équipée d'un capteur 100kN. La vitesse de course imposée était de 1 mm/min. Pour chaque type de matériaux, trois échantillons ont été testés. La tenue à l'eau des briques a été évaluée par immersion de ces dernières dans de l'eau osmosée selon un rapport massique solide / liquide de 0.3. Le pH des solutions a été suivi dans le temps à l'aide d'un pHmètre SevenExcellence (Mettler Toledo).

3. Résultats et discussion

La stabilisation des briques comprimées de cendres volantes a été réalisée par ajout d'une solution alcaline avec pour objectif d'atteindre une résistance minimale de 3,5 MPa en accord avec la réglementation indienne [IS 02]. La Figure 2 présente l'évolution de la résistance en compression en fonction de la quantité de solution alcaline intégrée dans la brique après 21 jours de cure à T_{Amb}. La solution alcaline doit donc être introduite à hauteur de 2% afin d'atteindre les objectifs de résistance requis. Les observations MEB ont permis de mettre en évidence une différence importante de microstructure des échantillons suivant le taux de solution alcaline. A partir de 2% de solution, les observations révèlent la présence d'un gel venant enrober les particules sphériques de cendres volantes et qui n'est pas présent pour les échantillons contenant de plus faibles taux d'ajout. La formation de ce gel est due à la dissolution de la cendre volante en présence de solution alcaline qui conduit à la formation d'un géopolymère [FER 05]. En quantité trop faible, la réaction de géopolymerisation n'est pas assez importante pour former un réseau percolant permettant d'assurer la cohésion du matériau.

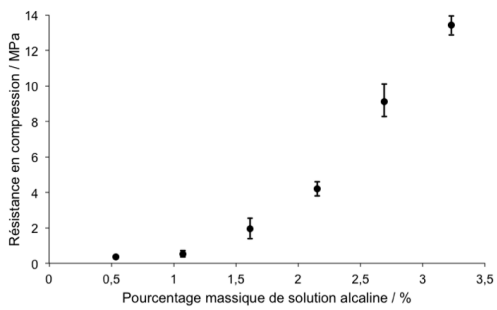

Figure 2. *Evolution de la résistance en fonction de la teneur en solution alcaline après 21j de cure à T_{Amb}.*

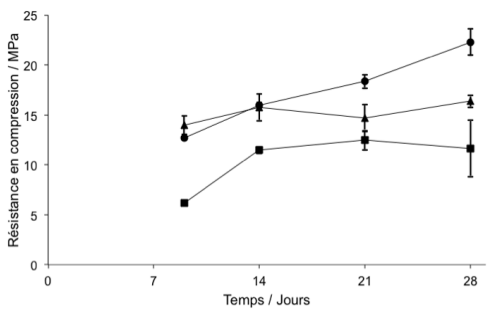

Figure 3. *Evolution de la résistance des briques stabilisées au ciment (T_{Amb}) (●) et par ajout de solution alcaline à T_{Amb} (■) et à 75°C (▲).*

Le développement des propriétés mécaniques des briques de cendres volantes stabilisées par activation alcaline à 3,2% a été comparé avec celui de briques de cendres volantes stabilisées au ciment (Figure 3). Dans les deux cas, les performances mécaniques répondent au cahier des charges de 3,5 MPa. A température équivalente, la stabilisation par activation alcaline conduit à une résistance en compression de 12,5 MPa à 28j contre 22,2 MPa pour les briques stabilisées au ciment. Contrairement à cette dernière, où les performances mécaniques évoluent au cours des 28j de cure, les propriétés mécaniques sont stables à partir de 14j pour la stabilisation alcaline. Cela s'explique par la formation même du géopolymère, dont la réaction est beaucoup plus rapide et repose sur un phénomène de précipitation et non d'hydratation [DUX 07]. Une augmentation de la température pour la stabilisation alcaline permet d'obtenir des résistances en compression à 28 jours de 15 MPa, réduisant ainsi l'écart avec la stabilisation au ciment.

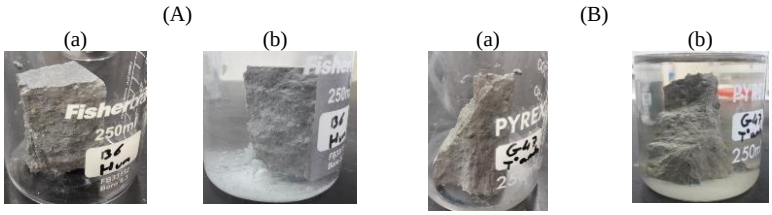

Figure 4. *Etat (A) d'échantillons stabilisés au ciment et (B) stabilisés par activation alcaline (a) dès l'immersion et (b) après 14 jours d'immersion.*

La comparaison du comportement en milieu aqueux des deux types de matériaux révèle leur bonne tenue puisqu'ils restent intègres lors de l'immersion, même après 14 jours (Figure 4). Un dépôt blanc apparaît cependant après 14 jours d'immersion de manière équivalente entre les deux modes de stabilisation. L'analyse infrarouge de ce précipité a permis de l'identifier comme étant un hydrogénocarbonate, ce qui traduit un relargage en solution d'espèces chimiques. Cela est renforcé par le fait que les valeurs de pH des solutions d'immersion évoluent instantanément de 7,0 à une valeur de pH de 10,6 pour la stabilisation au ciment et à une valeur de pH de 10,2 pour une stabilisation par activation alcaline en cure à T_{Amb}. Après 14 jours, ces valeurs évoluent peu avec une valeur de pH de 12,2 et de 11,9 pour la stabilisation au ciment ou par activation alcaline respectivement. Le changement de la température de cure pour la stabilisation alcaline permet de limiter l'élévation de la valeur de pH de la solution d'immersion qui reste compris entre 9,9 et 11,7.

4. Conclusion

L'objectif de cette étude était de valoriser les cendres volantes issues de centrales thermiques à travers leur utilisation dans des briques comprimées. La stabilisation par activation alcaline des cendres volantes semble être une voix très prometteuse. Son ajout permet en effet d'obtenir les performances mécaniques requises. Sa teneur doit cependant rester supérieure à 2% afin de garantir les performances mécaniques requises. Celles-ci sont atteintes dès 7 jours. Leur tenue à l'eau est légèrement meilleure qu'avec une stabilisation à base de ciment. Leur développement pourrait donc concurrencer l'utilisation des briques de cendres volantes stabilisées au ciment.

Cette étude est actuellement poursuivie sous plusieurs aspects: l'impact de la force de compaction lors de la fabrication et de la composition de la solution alcaline sur les propriétés mécaniques et la tenue à l'eau, ainsi que la durabilité de ces matériaux sous carbonatation. A l'issue de cette étude un démonstrateur échelle un sous la forme d'un mur de 2m par 2m sera réalisé.

5. Bibliographie

[DAV 91] DAVIDOVITS J., « Geopolymers – Inorganic polymeric new materials », *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, vol. 37, 1991, p. 1633-1656.

[DUX 07] DUXSON P., FERNANDEZ-JIMENEZ A., PROVIS J.L.,. LUKEY G.C, PALOMO A., VAN DEVENTER.S.J.J, « Geopolymer technology: the current state of the art », *Journal of Material Science*, vol. 42, 2007, p. 2917–2933.

[FER 05] FERNÁNDEZ-JIMÉNEZ A., PALOMO A., CRIADO M., "Microstructure development of alkali-activated fly ash cement: a descriptive model", *Cement and Concrete Research*, vol. 35, n° 6, 2005, p. 1204-1209.

[FLY 15] FLY ASH RESOURCE CENTRE, « Guidelines for manufacturing quality fly ash bricks », State Pollution Control Board, 2015, Odisha, Bhubaneswar.

[HAQ 13] HAQUE E., « Indian fly-ash: production and consumption scenario », International Journal of Waste Resources, vol. 3, n° 1, 2013, p. 22-25.

[IS 02] IS 12894 : 2002, « Pulverized fuel ash-lime bricks – Specification », *CED 4: Building Limes and Gyspum Products*, 2002.

[KUM 03] KUMAR, V., MATHUR, M., KHARIA, P. S., « Fly ash management: Vision for the New Millenium », *Technology Information Forecasting and Assessment Council*, News and Views, 25, 2003.

[MUD 14] MUDULI S.D., Nayak B.D., MISHRA B. K., « Geopolymer fly ash building brick by atmospheric cruing », *International Journal of Chemical Sciences*, vol. 12, n° 3, 2014, p. 1086-1094.

[SOR 18] SORE O., MESSAN A., PRUD'HOMME E., ESCADEILLAS G., TSOBNANG F., « Stabilization of compressed earth blocks (CEBs) by geopolymer binder based on local materials from Burkina Faso », *Construction and Building Materials*, vol. 165, 2018, p. 333-345.