# Valorisation du kaolin de Tamazert (Algérie) dans l'industrie cimentaire : élaboration d'un Métakaolin et d'un écociment.

## Mehsas Boumediene<sup>1</sup>, Siline Mohammed<sup>2\*</sup>, Zeghichi Leila<sup>3</sup>, Ghorbel Elhem<sup>4</sup>.

- <sup>1</sup> Laboratoire de Matériaux et Mécanique des Structures LMMS, Université de M'sila; Algérie. boumediene.mehsas@univ-msila.dz
- <sup>2</sup> Laboratoire de Matériaux et Mécanique des Structures LMMS, Université de M'sila; Algérie. mohammed.siline@univ-msila.dz
- <sup>3</sup> Laboratoire de Matériaux et Mécanique des Structures LMMS, Université de Biskra; Algérie. <u>leila.zeghichi@univ-biskra.dz</u>
- <sup>4</sup> L2MGC, Université de Cergy Pontoise 5 Mail Gay-Lussac, Neuville Sur Oise. 95031 Cergy Pontoise Cedex. <u>Elhem.ghorbel@u-cergy.fr</u>

RÉSUMÉ. Le Métakaolin est une phase obtenue après la calcination du kaolin entre 500 et 900 °C. Cette transformation nécessite la disparition totale de l'eau contenue dans la matière première de kaolin, il s'agit de sa déshydratation et sa déshydroxylation. La norme NF P18-513 caractérise le Métakaolin capable d'être utilisé comme ajout au ciment et regroupe les différentes spécifications que doit avoir la matière première de kaolin. L'Algérie possède plusieurs gisements de kaolin qui ne sont utilisés que dans le domaine des céramiques. Dans le but d'élaborer un Métakaolin conforme aux exigences de la norme sus-citée, deux matières premières de kaolin KT1 et KT2 en provenance d'Algérie ont été exploitées. Après une caractérisation physico-chimique, les deux matériaux ont subit plusieurs cycles thermiques. Les matériaux ainsi calcinés ont été incorporés à 15% dans le ciment, les résistances mécaniques à la compression ont été évaluées après 28 jours de durcissement. Il a été montré que la calcination affecte considérablement la structure cristalline des deux matériaux et influe directement sur la réponse mécanique des mortiers résultants grâce à la propriété pouzzolanique des Métakaolins élaborés.

ABSTRACT. Metakaolin is a phase obtained after calcination of kaolin between 500 and 900 °C. This transformation requires the disappearance of all water contained in the raw material of kaolin, that means its dehydration and its dehydroxylation. The NF P18-513 standard characterizes Metakaolin, which can be used as an addition to cement, and groups together the different specifications that must have the raw material of kaolin. Algeria has several deposits of kaolin which are only used in ceramics field. In order to elaborate a Metakaolin complying with the requirements of the aforementioned standard, two raw materials of kaolin, KT1 and KT2, from Algeria were exploited. After a physico-chemical characterization, the materials underwent several thermal cycles. The calcined materials were incorporated at 15% in cement, the mechanical compressive strengths were evaluated after 28 days of hardening. It has been shown that calcination has significantly affected the crystalline structure of both materials and it has directly affected the mechanical response of resulting mortars due to the pozzolanic property of the elaborate Metakaolins.

MOTS-CLÉS: Ciment, Kaolin, Métakaolin, Traitement thermique, Activité pouzzolanique.

KEYWORDS: Cement, Kaolin, Metakaolin, Thermal treatment, Pozzolanic activity.

#### 1. Introduction

Le ciment Portland s'obtient d'un mélange de clinker et de gypse. Pour réduire son coût et ses émissions de CO<sub>2</sub>, on remplace une partie de clinker par un autre matériau, dit ajout. Cette substitution peut présenter d'autres avantages liés aux propriétés mécaniques des ciments envisagés et à la durabilité des mortiers et bétons résultants. C'est ce qui a suscité l'intérêt de beaucoup de chercheurs à travers le monde, notamment pour les ajouts actifs tels que le Métakaolin, les cendres volantes, la fumée de silice, etc. Le Métakaolin est une pouzzolane artificielle très active obtenue par la calcination, sous une température appropriée, d'une argile kaolinitique. Cette calcination doit produire un matériau capable de déclancher, au sein de la matrice cimentaire, une réaction pouzzolanique qui se traduit principalement par l'amélioration de la réponse mécanique du mortier [SIL 17]. Il est bien connu que la propriété pouzzolanique présente l'aptitude d'un matériau à réagir avec la chaux. Le Métakaolin est un matériau capable de réagir avec la Portlandite [Ca(OH)<sub>2</sub>] issue de l'hydratation du ciment, en donnant des hydrates supplémentaires de C-S-H ayant des propriétés liantes. Selon la norme NF P18-513 relative à la normalisation du Métakaolin, le matériau doit satisfaire certaines exigences physico-chimiques et doit assurer, lorsqu'il substitue 15% du ciment, au moins 90% de la résistance mécanique du mortier à base de 100% du ciment.

Dans le but de valoriser un kaolin algérien dans le domaine des ajouts actifs, nous voulons à travers cette recherche élaborer un Métakaolin et tester ses propriétés avec les exigences de la norme sus-citée. Le matériau prélevé de deux souces différentes a été traité thermiquement selon plusieurs cycles thermiques, en variant la température de consigne et le temps de maintien, du fait que ces deux paramètres jouent un rôle déterminant dans l'efficacité de la calcination [BIC 09, OUY 11].

#### 2. Matériaux et Méthodes expérimentales

Le kaolin utilisé dans le cadre de cette recherche provient du gisement de Tamazert, situé à Jijel dans le Nord-Est algérien. Il s'agit de deux types de matières premières notées KT1et KT2. Le kaolin KT1 est une matière première prélevée directement du gisement, tandis que le KT2, riche en oxyde ferrique, est une substance traitée par une entreprise locale pour des raisons liées à son utilisation dans l'industrie des céramiques. Les deux matériaux dont les propriètés initiales sont présentées dans les tableaux 1 et 2, ont été broyés dans un broyeur à boulets puis exposés à des cycles de traitement thermique (TTh) caractérisés par une vitesse de montée en température de 10°/min, un temps de maintien qui varie entre 2, 3 et 5 heures et un refroidiseement libre. Les températures de calcination ont été choisies entre 500 et 1000 °C. L'influence de chaque cycle thermique sur la structure cristalline du matériau a été suivie par la DRX.

En ce qui concerne l'effet des différents cycles thermiques sur l'évolution de la réponse mécanique, les matériaux bruts et traités ont été utilisés à 15% avec un ciment dont les caractéristiques sont rapportées sur le tableau 1. Ce ciment est un CEM I 52.5 en provenance d'une cimenterie locale. Les résistances mécaniques ont été évaluées conformement à la norme NF 196-1 sur des mortiers 4\*4\*16 confectionés selon la même norme.

<b>Tableau 1.</b> Compositions	chimiques (	(en % massique)	et caractéristiques	physiques des matériaux.

	SiO <sub>2</sub>	$Al_2O_3$	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CaO	MgO	$SO_3$	K <sub>2</sub> O	Na <sub>2</sub> O	PAF	SSB (cm <sup>2</sup> /g)	$\rho$ (g/cm <sup>3</sup> )
CEM I	21,54	4,31	4,50	63,63	1,47	1,54	0,35	0,07	2,05	3981	3,28
KT1	70,91	17,15	1,67	0,32	0,36	0,09	4,06	0,32	5,68	7336	2,75
KT2	56,63	26,15	3,70	0,33	0,66	0,07	3,51	0,40	9,26	7041	2,70

**Tableau 2.** Compositions minéralogiques (en % massique) des kaolins utilisés.

	Kaolinite	Quartz	Feldspath	Muscovite	Calcite	Dolomite	Albite	Minéraux ferrugineux
KT1	39	22	21	12	Trace	02	02	02
KT2	58	02	20	12	Trace	02	02	03

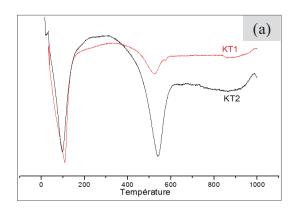
#### 3. Résultats et discussion

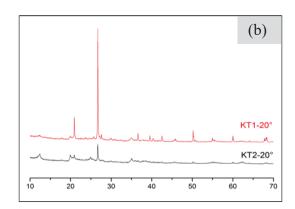
#### 3.1. Caractérisation de KT1 et KT2

Une différence entre les deux kaolins a été constatée à travers leurs compositions chimiques et minéralogiques rapportées sur les tableaux 1 et 2. Selon ces résultats, la sommes des oxydes (SiO<sub>2</sub> + Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) égale à 88,06% pour KT1 et 82,78% pour KT2 ce qui est légerement inférieur au seuil exigé par NF P18-513 qui est 90%. Pour les autres oxydes, les teneurs des matériaux bruts sont dans les plages prescrites par la même norme. La dominance de la silice dans KT1 est traduite minéralogiquement par une forte teneur en quartz par rapport à KT2, l'analyse minéralogique indique également que le KT2 est plus riche en kaolinite (58%) que KT1 (39%). La kaolinite [Al<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>5</sub>(OH)<sub>4</sub>] et la muscovite [KAl(Si<sub>3</sub>Al)O<sub>10</sub>(OH)<sub>2</sub>] sont les phyllosilicates qui, après leur déshydroxylation, apportent au matériau le désordre cristallin et l'amorphisation, ce qui lui attribue la propriété pouzzolanique.

La figure 1(a) présente les thermogrammes obtenus par l'analyse thermique differentielle ATD des matériaux bruts KT1 et KT2. A partir de ces thermogrammes on constate la présence de deux pics endothermiques majeurs, le premier à environ 150 °C relatif à la déshydratation des deux matériaux (évaporation de H<sub>2</sub>O libre), alors que le deuxième entre 500 et 600 °C est lié à leur déshydroxylation (départ des hydroxyles OH). L'aire de ce pic est plus importante dans le cas de KT2 par rapport à KT1 parce que la teneur de KT2 en kaolin (58%) est nettement supérieure à celle de KT1 (39%). La dominance de kaolinite dans la variante KT2 est plus évidente dans les spectres de DRX présentés dans la figure 1(b). Dans ces spectres les pics relatifs à la kaolinite (à 12°, à 20° et à 35°) sont plus intenses dans le cas de KT2, alors que les pics relatifs à la présence de quartz (à 22° et à 27°) sont beaucoup plus importants dans le cas de KT1 qui contient (22%) de quartz, contre (2%) dans le KT2.

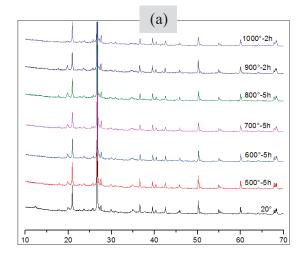
Figure 1. Caractérisation physique des matériaux : (a): ATD, (b): DRX.

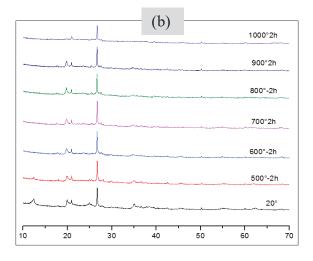




### 3.2. Effets des cycles thermiques sur KT1 et KT2

**Figure 2.** Effet des cycles thermiques sur la structure cristalline des matériaux : (a): KT1, (b): KT2.





A partir des spectres de DRX de la figure 2, on constate que l'instensité du pic situé à 12°, et relatif à la présence du kaolin, a été diminuée après la calcination de KT2 à 500 °C pendant 2h, avant de disparaître completement après 2h de calcination sous 600 °C. L'élimination de ce même pic n'a demandé qu'une température de 500 °C et 5h calcination dans le cas de KT1. La disparition de ce pic signifie que le matériau a perdu sa cristallinité et un changement de phase ( du kaolin au Métakaolin) a eu lieu. Pour les autres pics (à 20° et à 35°) et malgré leur faible intensité, leur disparition totale n'a eu lieu qu'après 1000 °C pour les deux kaolins.

#### 3.3. Effet des cycles thermiques sur la résistance mécanique des mortiers

L'efficacité du traitement thermique assurant la transformation du kaolin en un Métakaolin, est géneralement évaluée à travers l'évolution de la réponse mécanique. C'est ce que nous pouvons conclure des résultats de la résistance à la compression, illustrés sur la figure 3. Les 2 kaolins bruts n'ont abouti qu'à 77% de la résistance du mortier témoin. La résistance des mortiers a été globalement en augmentation avec l'augmentation des TTh. Pour le KT1, ce n'est qu'après un TTh sous 800 °C-5h que la résistance a atteint 99,69% de celle du témon, tandis que le KT2 n'a necessité qu'un TTh de 600 °C-5h pour atteindre 103,51% de la résistance du mortier témoin. Après calcination sous 1000 °C, les résistances ont connu une chute remarquable, ce qui est probablement dû à la recristallisation des Métakaolins et leur transformation en mullite [BIC 09].

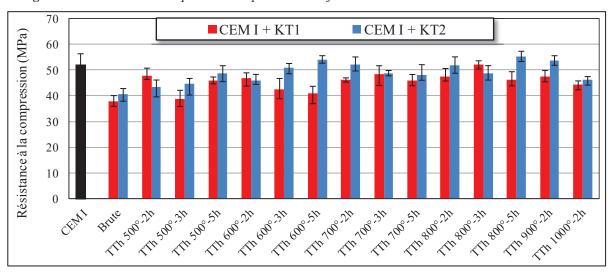


Figure 3. Résistances mécaniques à la compression à 28 jours.

#### 4. Conclusion

Les résultats obtenus à l'occasion de ce travail nous permettent de conclure que :

- La calcination modifie la structure cristalline des kaolins, cette modification est proportionnelle aux paramètres des cycles thermiques : température maximale et temps de maintien.
- Le traitement thermique a attribué aux kaolins une certaine pouzzolanicité traduite par l'augmentation de la réponse mécanique des mortiers. Le TTh optimal a été 800 °C-3h pour KT1 et 600 °C-5h pour KT2.
- Les deux kaolins ne sont pas totalement conformes aux exigences de NF P18-513, mais ils peuvent aboutir à des Métakaolins ayant une réactivité acceptable, ce qui encourage la valorisation de ces matériaux, notamment pour le KT2, dans le domaine des écociments.

#### 5. Bibliographie

[BIC 09] BICH C., AMBROISE J., PERA J., « Influence of degree of dehydroxylation on the pozzolanic activity of métakaolin », *Applied Clay Science*, vol. 44, 2009, p. 194 - 200.

[OUY 11] OUYANG D., XU W., LO T.Y., SHAM J.F.C., «Increasing mortar strength with the use of activated kaolin by-products from paper industry », Construction and Building Materials, vol. 25, 2011, p. 1537-1545.

[RAM 12] RAMEZANIANPOUR A A., BAHRAMIJOVEIN H., «Influence of metakaolin as supplementary cementing material on strength and durability of concretes», *Construction and Building Materials*, vol 30, 2012, p. 470 - 479.

[SIL 17] SILINE Mohammed., « Processing, effect and reactivity assessment of artificial pozzolans obtained from clays and clay wastes: A review », Construction and Building Materials, vol 140, 2017, p. 10-19.