

MECANISME DES REACTIONS CHAUX-ARGILE : UNE SMECTITE SODIQUE ET UNE KAOLINITE LIME-CLAY REACTION MECHANISM: Na-SMECTITE AND KAOLINITE

Abdelmadjid LASLEDJ, Mohammed BENHOUNA,

Maitre de conférence, Ecole nationale polytechnique d'Oran, Laboratoire des matériaux

lasledja@yahoo.fr benhouna@yahoo.fr

Résumé :

L'objectif de ce travail est d'étudier l'évolution de la consommation de chaux de deux sols argileux (Na-smectite et kaolinite) traités avec 10% de chaux et maturés à deux températures (20°C et 50°C). Le suivi de la réaction chaux-argile illustre les mécanismes impliqués dans la réaction à courte terme et à long terme. De plus, on démonte que la réaction pouzzolanique s'avère aussi importante dans les deux argiles et que cette réaction est fortement accélérée par l'augmentation de la température de maturation de 20°C à 50°C. Grâce à la réaction pouzzolanique, des nouveaux hydrates sont formés et détectés par DRX : à 20°C, le $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{O}_6 \cdot x \text{H}_2\text{O}$ dans les deux sols ; à 50°C, en plus du premier hydrate, il se forme le $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{SiO}_4 (\text{OH})_8$ dans le Na-smectite et le $\text{Ca}_2\text{Al}_2\text{SiO}_7 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ dans la kaolinite.

Mots clés : sol argileux / réactions chaux-argile / consommation de la chaux / changements de minéralogie

Abstract:

The purpose of the work presented in this paper is to study the evolution of lime consumption for two clayey soils (Na-smectite and kaolinite) treated with 10% of lime and cured at two temperatures (20°C and 50°C). Monitoring the lime-clay reaction illustrates the mechanisms involved in the response to short-term and long term. Moreover, results demonstrate that the pozzolanic reaction is important in both clays and this reaction is greatly accelerated by increasing the curing temperature from 20°C to 50°C. The pozzolanic reaction induces new hydrates which are formed and detected by XRD: at 20°C, the $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{O}_6 \cdot x \text{H}_2\text{O}$ in both soils, at 50°C, in addition of the previous hydrate, it forms the $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{SiO}_4 (\text{OH})_8$ in the Na-smectite and the $\text{Ca}_2\text{Al}_2\text{SiO}_7 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ in the kaolinite.

Key words: clayey soil / lime-clay reactions / lime consumption / mineralogical changes

Introduction

Le traitement à la chaux a des effets bénéfiques sur les propriétés des sols argileux. Ces effets sont dus à des réactions chimiques entre la chaux et les minéraux argileux des sols. Des réactions à court terme engendrées par l'échange cationique et la floculation–agglomération peuvent être obtenues par l'ajout d'une quantité relativement réduite de chaux. Des réactions à long terme engendrées par la réaction pouzzolanique conditionnées par la saturation initiale du sol en calcium requièrent l'utilisation d'une plus grande quantité de chaux afin d'introduire une amélioration majeure et durable des caractéristiques des sols traités.

Cette réaction est due à l'action de la chaux (ions calcium et hydroxyles) sur les minéraux argileux et à la formation de nouveaux minéraux (hydrates calciques similaires à ceux des ciments) ([1], [2], [3], [4], [5], [6], [7], [8]). La cinétique de la réaction pouzzolanique dépend de plusieurs facteurs dont les caractéristiques physico-chimiques de l'argile traitée et la température de mûrissement ([1], [6], [7], [8]).

Ce travail est consacré à l'étude des mécanismes impliqués dans la réaction chaux-argile à court et à long terme grâce à un suivi de l'évolution de la consommation en chaux avec le temps et la température de mûrissement pour deux sols argileux avec un ajout de 10% de chaux. L'évolution de la minéralogie provoquée par le traitement et notamment celle due à la réaction pouzzolanique est étudiée par la diffraction aux rayons X.

2. Matériaux d'étude

Cette étude est réalisée sur deux sols argileux : une argile smectite di-octaédrique sodique et une argile kaolinite (tableau 1). Le sol argileux de type smectite est très plastique, sa composition minéralogique est constituée de 86% d'éléments argileux composés. Dont 48% de smectite sodique à grande capacité d'échange cationique et 38% de kaolinite. Elle contient 14% d'impuretés réparties en 6,4% de géothite, 3,4% de calcite, 3,2% de quartz et 1% d'anatase [8].

Tableau 1: Propriétés géotechniques et capacité d'échange cationique de smectite et de la kaolinite

Propriétés	Na-smectite	Kaolinite
Indice de plasticité (%)	170	20
Surface spécifique (m ² /g)	790	10
CEC (meq/100g de sol)	100	1,3

La composition minéralogique de l'argile kaolinite est constituée en majorité ($\approx 93\%$) d'éléments argileux (83% de kaolinite, et 10% d'Illite). Le quartz représente 7% de ce sol [8].

Une chaux hydratée a été utilisée pour le traitement. Elle contient 94% de $\text{Ca}(\text{OH})_2$ et 6% de calcite [8].

3. Méthodes expérimentales

La consommation de la chaux est suivie par dosage de la chaux libre (n'ayant pas réagi avec l'argile) réalisé par absorption atomique à l'aide de l'appareil Hitachi Z-8100 Polarized Zeeman. On mesure ainsi la concentration de calcium dans les solutions extraites des mélanges de sol traité avec 10% de chaux à des temps de maturation de 1,5 heure, 7, 28 jours, 3 et 6 mois à deux températures de maturation 20°C et 50°C .

La préparation des échantillons des sols traités consiste à mélanger 0,5g de sol avec 10% (0,05g) de chaux. Le mélange sol-chaux est dispersé dans 50 mL d'eau déminéralisée. L'ensemble est protégé de l'air pour éviter la carbonatation de la chaux pendant la maturation. Le mélange est agité mécaniquement de façon périodique afin d'assurer l'homogénéité jusqu'à la fin du temps de maturation où la solution à tester est extraite et filtrée à $40\mu\text{m}$.

L'évolution de la minéralogie est étudiée par diffraction aux rayons X (DRX) réalisée sur des échantillons traités compactés après une longue durée de maturation (6 mois) à 20°C et à 50°C . Le DRX est réalisé sur des poudres désorientées (la poudre du matériau est déposée sur le porte-échantillon et arasée) en utilisant la raie $\text{K}\alpha$ du cuivre, raie filtrée à l'aide d'un monochromateur. Les quantités prélevées aux différents échantillons sont séchés pendant 4 heures dans une étuve à 50°C , broyés à sec, puis tamisés à $100\mu\text{m}$.

4. Résultats et discussions

4.1. La consommation de la chaux en fonction du temps pour 20°C et 50°C

La figure 1 donne l'évolution de consommation en chaux pour les deux types d'argile en fonction du temps de maturation à 20°C . Il convient de noter que la quantité maximale en chaux pouvant réagir est 9,4% car la chaux contient 6 % de calcite.

Les résultats montrent une augmentation différente de la consommation en chaux avec l'augmentation du temps de maturation. Dès la première mesure, 1,5 heure après la préparation du mélange chaux-argile, on observe une consommation importante de chaux ($\approx 5\%$) pour le Na-smectite et aucune consommation pour la kaolinite.

Cette consommation à court terme est attribuée à l'échange cationique : très important pour la smectite sodique (remplacement des cations de sodium dans l'espace inter-lamellaire des feuillets de la smectite par les cations de calcium) et pratiquement nul pour la kaolinite. Il semble que 5% de chaux représente la quantité maximale consommée à court terme pour le Na-smectite.

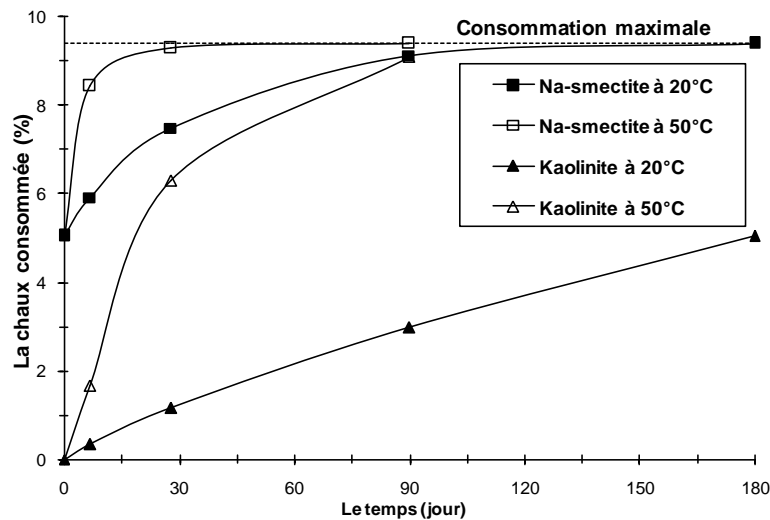


Figure 1 : Evolution de la consommation de chaux pour les deux argiles testées avec le temps, pour deux températures de maturation 20°C et 50°C

Avec le temps, on constate que la consommation en chaux augmente graduellement avec la maturation pour les deux argiles. Ceci pourrait être expliqué par le développement de la réaction pouzzolanique qui consomme de la chaux et provoque la formation des nouveaux hydrates. Pour le Na-smectite, la majorité de la quantité ajoutée ($\approx 9,1\%$) est déjà consommée après trois mois de maturation. Après 6 mois, 5,0% de la chaux est consommée par la kaolinite.

Cette consommation lente de la chaux s'explique par la cinétique de la réaction pouzzolanique à 20°C. Cette réaction dépend de la nature des minéraux argileux et de la quantité de la chaux disponible. Ainsi, on note que sur les 10 % de chaux ajoutée, il reste, après 1,5h de maturation, pour la réaction pouzzolanique 5% pour le Na-smectite et 10 % pour la kaolinite. L'excès de chaux induit l'augmentation de la réaction pouzzolanique ; ceci accélère la consommation en chaux.

La figure 1 donne également l'évolution de la consommation en chaux pour les deux types d'argile en fonction de temps de maturation à 50°C. Les résultats indiquent une accélération significative de la consommation en

chaux par les deux argiles traitées. Ainsi, la totalité de la chaux ajoutée est quasiment consommée après un mois de maturation pour le Na-smectite et trois mois pour la kaolinite. Ceci est expliqué par l'accélération de la cinétique de la réaction pouzzolanique avec l'élévation de la température de maturation.

On constate également que la cinétique de la consommation en chaux est assez proche pour les deux argiles lorsque la température du murissement augmente de 20°C à 50°C. Ceci est dû à la combinaison de deux effets : la quantité de chaux disponible après la réaction instantanée ($\approx 10\%$ pour la kaolinite et $\approx 5\%$ pour le Na-smectite) et à l'élévation de température.

Concernant la cinétique de la réaction pouzzolanique, on constate également que la vitesse initiale de la réaction est entre 4 à 5 fois plus élevée lorsque la température du murissement augmente de 20°C à 50°C pour les deux argiles testées. De plus, la vitesse initiale de la réaction pouzzolanique est 2 fois plus élevée dans le Na-smectite que celle dans la kaolinite pour les deux températures 20°C et 50°C.

4.2. L'évolution de la minéralogie par la diffraction aux rayons X

Les figures 2 et 3 présentent les diffractogrammes des échantillons de Na-smectite et de la kaolinite non traités et traités à 10% de chaux après 6 mois de maturation à 20°C et 50°C. Les diffractogrammes de Na-smectite et de la kaolinite non traité montrent les réflexions des minéraux argileux : smectite (S), kaolinite (K), illite (II) et des minéraux non argileux: quartz (Q), géothite (G), calcite (C) et anatase (An). Les argiles de Na-smectite sont très peu organisées (peu de feuillets assemblés; intercalation smectite-kaolinite et particules désorientées) au contraire la kaolinite est bien organisée (nombreux feuillets assemblés et forte orientation des particules).

4.2.1. Argile Na-smectite

Sur les deux diffractogrammes de Na-smectite traité (figure 2), on observe l'apparition de deux nouvelles réflexions à $2\theta = 11,6$ et $23,6^\circ$ (0,76 et 0,376 nm). Ces pics correspondent à un Hydrate d'Aluminate de Calcium (CAH de la forme $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{O}_6 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ (02-0083, J.C.P.D.S) [8]. Ce nouveau corps est formé par la ou les réactions pouzzolaniques entre la chaux et les minéraux argileux. L'intensité de ces réflexions diminue légèrement avec l'augmentation de température, alors que la vitesse de toute réaction croit avec la température; ceci peut être dû à l'existence d'autres réactions concurrentes développées simultanément à la température de maturation de 50°C.

Sur le diffractogramme de Na-smectite traité à 50°C, on observe l'apparition d'un épaulement à $2\theta = 29^\circ$ (0,308 nm) sur la réflexion principale de la calcite à $2\theta = 29,45^\circ$ (0,3035 nm). Cet élargissement peut correspondre au pic d'un Hydrate de Silico-Aluminate de Calcium (CSAH de la forme $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{SiO}_4(\text{OH})_8$ (38-0368, J.C.P.D.S) [8]. Elargissement également visible mais plus faible sur le diffractogramme de Na-smectite traité à 20°C.

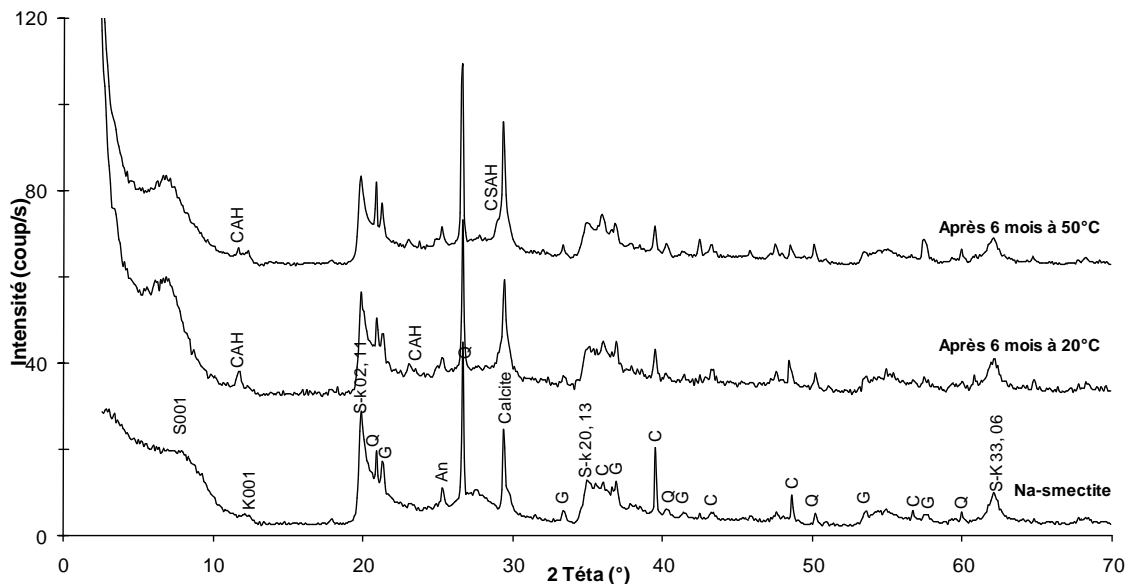


Figure 2: Diffractogrammes des échantillons de Na-smectite non traité et traité avec 10% de la chaux après 6 mois de maturation à 20°C et 50°C

Sur les diffractogrammes de Na-smectite traité après 6 mois de maturation à 20°C et 50°C, on observe également :

- l'absence des réflexions de la chaux, ce qui confirme la consommation complète de la chaux observée par analyse chimique (figure 1).
- une faible augmentation de l'intensité des pics de la calcite, résultant d'un apport de calcite (impureté de la chaux ajoutée) et éventuellement d'une carbonatation partielle de la chaux par CO_2 de l'air pendant le mélange.
- une diminution de l'intensité des réflexions caractéristiques du feuillet des argiles [S - K (02,11), (20, 13) et (06, 33)] surtout à 50°C, ce qui implique un début de destruction des feuillets argileux.

4.2.2. Argile kaolinite

Sur les deux diffractogrammes de la kaolinite traitée (figure 3), on observe, comme pour le Na-smectite traité, clairement l'apparition des pics à 0,76 et 0,376 nm du même Hydrate d'Aluminate de Calcium (CAH).

L'intensité de ces réflexions augmente avec la température. L'élévation de température accroît la vitesse de réaction et conduit à une formation plus importante de CAH.

Sur le diffractogramme de la kaolinite traitée à 50°C, on observe l'apparition de deux nouvelles réflexions de très faible intensité à $2\theta = 7,0$ et $14,1^\circ$ (1,26 et 0,63 nm). Ces réflexions peuvent correspondre à un Hydrate de Silico-Aluminate de Calcium (CSAH de la forme $\text{Ca}_2\text{Al}_2\text{SiO}_7, 8\text{H}_2\text{O}$ (30-0227, J.C.P.D.S) dont la formation par réaction pouzzolanique est très lente même à la température de 50°C.

La présence des réflexions de la chaux pour la kaolinite traitée à 20°C, montre que la quantité de chaux n'est pas complètement consommée après 6 mois de maturation, contrairement à la kaolinite traitée à 50°C. Ces résultats sont en accord avec les résultats de la consommation de chaux (figure 1) et montre que la (ou les) réaction pouzzolanique progresse très lentement à 20°C.

Sur les diffractogrammes des kaolinites traitées, on observe l'apparition du pic principal de la calcite à $2\theta = 29,45^\circ$, résultant d'un apport de calcite (impureté de la chaux ajoutée) et éventuellement d'une carbonatation partielle de la chaux par CO_2 de l'air pendant le mélange.

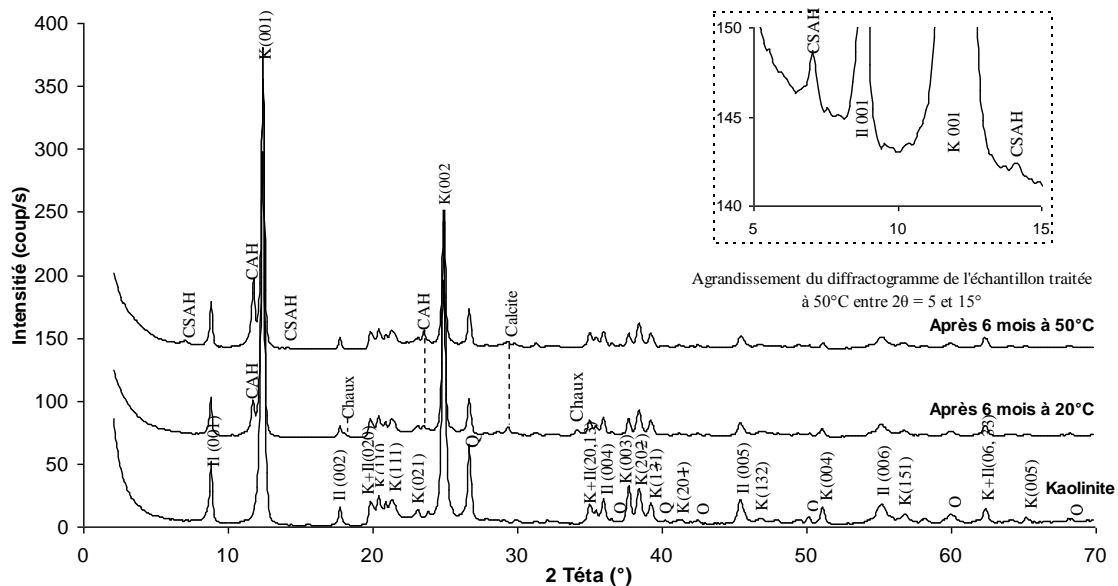


Figure 3: Diffractogrammes des échantillons de kaolinite non traité et traité avec 10% de la chaux après 6 mois de maturation à 20°C et 50°C

5. Conclusion

Le but de ce travail est de suivre l'évolution de la consommation de la chaux pour une smectite sodique et une kaolinite traitées avec 10% de chaux. Sont également observés les changements minéralogiques provoqués par le traitement à long terme. A travers les résultats obtenus on constate:

- La consommation immédiate en chaux est nulle pour la kaolinite et elle est de 5% pour le Na-smectite par l'échange cationique.
- La progression lente de la réaction pouzzolanique implique une consommation faible de la chaux sur une longue durée de maturation à une température de 20°C.
- Le mûrissement à 50°C accélère la cinétique de la réaction pouzzolanique et conduit à une consommation plus rapide de la chaux par rapport à un mûrissement à 20°C. La vitesse initiale de la réaction enregistrée à température de 20°C est augmentée de 4 à 5 fois lorsque la température augmente à 50°C.

Concernant l'influence de la nature des minéraux argileux sur la cinétique de la réaction pouzzolanique, on remarque également que la vitesse initiale de la réaction pouzzolanique est 2 fois plus élevée dans le Na-smectite que celle dans la kaolinite pour les deux températures 20°C et 50°C.

Les modifications minéralogiques résultantes du traitement à la chaux montrent la formation de nouveaux hydrates :

- à 20°C, le $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{O}_6 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ dans les deux sols.
- à 50°C, il se forme l'hydrate précédent, en plus grande quantité dans la kaolinite, et en plus le $\text{Ca}_3\text{Al}_2\text{SiO}_4(\text{OH})_8$ dans le Na-smectite et le $\text{Ca}_2\text{Al}_2\text{SiO}_7 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ dans la kaolinite.

Référence bibliographique

- [1] J-L. Eades, R-E. Grim, Reaction of hydrate lime with pure clay minerals in soil stabilization. Highway Research Board Bulletin (1960) 262, 51-63
- [2] G-H. Hill, D-T. Davisdon, Lime fixation in clayey soils, Highway Research Board Bulletin (1960) 262, 20-32
- [3] S. Diamond, E-B. Kinter, Mechanisms of soil-lime stabilization, Highway Research Record (1965) 92, 83-102
- [4] J-G. Cabrera, C-A, Nwakanma, Pozzolanic activity and mechanism of reactions of red tropical soil-lime systems, Transportation Research Record (1979) 702, 199-207
- [5] M. Arabi, S. Wild, Microstructural development in cured soil-lime composites, Journal of material science (1986) 21, 497-503
- [6] F-G. Bell, Lime stabilization of clay minerals and soil, Engineering Geology (1996) 42(4), 223-237
- [7] S-A-A Khattab, Etude multi-échelles d'un sol argileux plastique traité à la chaux, Thèse, Université d'Orléans. 2002
- [8] A. Lasledj, Traitement des sols argileux à la chaux : processus physico-chimique et propriétés géotechniques, Thèse, Université d'Orléans, 2009.