50376
1974
192

50376
1974
192

N° D'ORDRE : 492

THESE

PRESENTEE

A L'UNIVERSITE DES SCIENCES ET TECHNIQUES DE LILLE

POUR OBTENIR LE TITRE DE

DOCTEUR DE 3e CYCLE

MENTION GEOLOGIE APPLIQUEE

MINERALOGIE

PAR

ROBERT PAWLOWSKI

BIBLIOTHEQUE UNIVERSITAIRE
Section de SCIENCES
LILLE

CONTRIBUTION A L'ETUDE DE L'EXPANSION DES ARGILES
APPLICATION A LA MISE AU POINT DE GRANULATS LEGERS
A PARTIR DE MATERIAUX PROVENANT DE CARRIERES DU BASSIN PARISIEN

Soutenue le 4 Octobre 1974 devant la commission d'examen

MM. A. BONTE Président
Ch. DELATTRE Examinateur
J. PROUVOST Rapporteur

AVANT-PROPOS

J'exprime ma profonde reconnaissance à Monsieur le Professeur PROUVOST qui m'a accueilli dans son laboratoire de Minéralogie.

Pendant ces deux années de recherches, de nombreuses difficultés sont apparues. Je n'aurais pu les surmonter, si je n'avais trouvé en l'expérience et l'érudition de Monsieur le Professeur PROUVOST, conseils et orientation pour la poursuite de mon travail.

Je tiens à remercier Monsieur le Professeur BONTE, qui m'a initié à la Géologie Appliquée lors de mes études universitaires, et qui a bien voulu présidé ce jury. Je lui sais gré de l'honneur qu'il m'a ainsi témoigné.

Monsieur le Professeur DELATTRE a accepté de participer à la commission d'examen. Qu'il soit assuré de ma sincère reconnaissance.

Les analyses chimiques avec le Spectromètre ont été réalisées au laboratoire de Recherches de la Société Fives-Lille-Cail. Messieurs LIENART et SINSOILLERS m'ont accueilli avec beaucoup de sympathie et ont su me faire partager leur expérience à ce sujet. Je leur exprime mes plus vifs remerciements.

Mademoiselle MULIER, Messieurs LECLERCQ et CARPENTIER ont contribué largement à la réalisation de ce mémoire. Avec gentillesse et compétence, ils surmontèrent toutes les difficultés. Je leur en sais gré et les en remercie.

Enfin, que tous ceux qui m'ont aidé dans ma tâche et que je ne peux citer ici, veuillent bien accepter ma sincère gratitude.

- TABLE DES MATIERES -

pages

AVANT-PROPOS..... I
INTRODUCTION..... 1

PREMIERE PARTIE : LE PHENOMENE D'EXPANSION

1-1. : L'ARGILE EXPANSEE ET LE PHENOMENE D'EXPANSION..... 2
1-1-1. : LES CONDITIONS DE LA REALISATION..... 2
1-1-2. : VISCOSITE ET TENSION SUPERFICIELLE..... 2
1-1-3. : DEGAGEMENT GAZEUX ET SA NATURE..... 4

1-2. : LOCALISATION DES DIFFERENTS ECHANTILLONS D'ETUDE..... 7
1-2-1. : CARRIERE SAINTE GENEVIEVE..... 7
1-2-2. : CARRIERE DE CORMEILLES-EN-PARISIS..... 7

DEUXIEME PARTIE : ETUDE EXPERIMENTALE D'ECHANTILLONS

2-1. : ANALYSE CALCIMETRIQUE..... 9

2-2. : ANALYSE MINERALOGIQUE..... 10
2-2-1. : METHODE..... 10
2-2-2. : RESULTATS..... 10

2-3. : ANALYSE CHIMIQUE..... 11
2-3-1. : TECHNIQUE..... 11
2-3-2. : RESULTATS..... 13
2-3-3. : CONCLUSION..... 14

2-4. : CARACTERISTIQUES TECHNIQUES..... 14
2-4-1. : GRANULOMETRIE..... 14
2-4-2. : LIMITES D'ATTERBERG..... 15

TROISIEME PARTIE : TRAVAUX EXPERIMENTAUX

3-1. : MODE OPERATOIRE..... 17

3-2. : ETUDE DE L'ARGILE AE 9..... 18

3-2-1. : AE 9 SANS AJOUT..... 19

3-2-2. : AE 9 + 1 % de coke..... 20

3-2-3. : AE 9 + 2 % de coke..... 21

3-2-4. : AE 9 + 3 % de coke..... 21

3-2-5. : AE 9 + 4 % K_2O + 3 % de coke..... 22

3-2-6. : CONCLUSION DES ESSAIS SUR L'ARGILE AE 9. 24

3-3. : ETUDE DE L'ARGILE AE 2..... 25

3-3-1. : ARGILE AE 2 + 3 % de coke..... 25

3-3-2. : ARGILE AE 2 + 2 % K_2O + 2 % MgO..... 26

3-3-3. : ARGILE AE 2 + 2 % K_2O + 2 % MgO
+ 10 % SiO_2..... 27

3-3-4. : ARGILE AE 2 + 10 % SiO_2..... 28

QUATRIEME PARTIE : CONCLUSION..... 30

CINQUIEME PARTIE :

BIBLIOGRAPHIE..... I

PLANCHES..... III

- LISTE DES FIGURES -

Figures — après la page

1 - Réactions produisant des dégagements gazeux au cours de la cuisson..... 4

2 - Localisation des échantillons..... 8

3 - Tableau récapitulatif des Calcimétries..... 9

4 - Diffractogramme des échantillons AE 2, AE 6, AE 7..... 10

5 - Diffractogramme des échantillons AE 8, AE 9..... 10

6 - Schéma du Spectromètre sous vide..... 11

7 - Diagramme triangulaire de RILEY..... 13

8 - Courbes granulométriques des argiles AE 2 et AE 9..... 14

9 - Localisation des Argiles AE 9 dans le diagramme de RILEY.. 18

10 - Localisation des Argiles AE 2 dans le diagramme de RILEY.. 25

Tableaux

1 - Analyses des échantillons séchés à 100°C..... 13

2 - Tableau des limites admises par BURNETT et EHLERS..... 13

3 - Tableau des limites admises par SOLOVIEVA..... 13

4 - Tableau des compositions chimiques ramenées à 100 %..... 13

5 - Tableau comparatif des argiles AE 2, AE 9, de Watten..... 14

6 - Résultats de la cuisson de : AE 9 + 0 %..... 19

7 - " " " AE 9 + 1 %..... 20

8 - " " " AE 9 + 2 %..... 21

9 - " " " AE 9 + 3 %..... 21

10 - " " " AE 9 + 4 % K_2O..... 23

11 - " " " AE 2 + 3 % de coke..... 26

12 - " " " AE 2 + 2 % (K_2O + 2 % MgO)..... 26

13 - " " " AE 2 + K_2O + MgO + 10 % SiO_2..... 27

14 - " " " AE 2 + 10 % SiO_2..... 28

Planches

I : Granules obtenus avec l'argile AE 9

II : Granules obtenus avec l'argile AE 2

III : Section de quelques granules

IV : Granules obtenus avec l'argile AE 9

- I N T R O D U C T I O N -

Le gonflement des argiles a été observé depuis longtemps à la faveur d'incident de cuisson de produits rouges tels que les briques ou les tuiles.

Connu dès 1885, le processus est défini pour la première fois d'une manière pratique par S.J. HAYDE en 1917. Les auteurs, surtout américains ont recherché systématiquement les causes de ce gonflement. On l'attribua d'abord à un dégagement gazeux avec la libération d'oxygène à partir de l'oxyde ferrique. Mais hélas, bien que contenant cet oxyde, de nombreuses argiles étaient incapables de s'expanser.

Il fallut attendre deux décennies pour que l'on introduise aussi la notion de composition minéralogique. On s'aperçut alors qu'une argile était capable de s'expanser avec des ajouts judicieusement choisis. L'essor industriel de ce matériau était alors assuré.

En effet, les argiles et les schistes expansés ont remplacé souvent avantageusement des matières naturelles telles que vermiculite, perlite ou pierre ponce et se situent désormais au premier rang des composants utilisés pour la fabrication des agrégats légers.

Venue du Nouveau Monde, la fabrication industrielle s'est développée en Europe depuis 1945, au Danemark, selon le procédé L.E.C.A. (Light Expansed Clay Aggregats). Grâce à ses propriétés d'isolation, notamment thermique, et à sa légèreté, l'utilisation de ce matériau a pris un essor important dans les pays scandinaves et soviétiques. Les problèmes posés aux constructeurs du fait des conditions climatiques rudes et des sols peu propices à la construction se trouvaient ainsi résolus.

A l'heure actuelle, ses caractéristiques d'isolation thermique et phonique jointes à sa faible densité, en font un matériau de choix répondant aux exigences du progrès technologiques en matière de construction et d'urbanisme.

L'étude expérimentale entreprise sur cinq argiles du Bassin Parisien avait pour objectif final la possibilité d'une fabrication industrielle de granulats légers dans la région parisienne. Nous avons essayé d'y apporter une réponse.

Première Partie

LE PHENOMENE D'EXPANSION

SOMMAIRE :

1-1. L'ARGILE EXPANSEE ET LE PHENOMENE D'EXPANSION

1-2. LOCALISATION DES DIFFERENTS ECHANTILLONS ETUDIES

1-1. L'ARGILE EXPANSEE ET LE PHENOMENE D'EXPANSION

1-1-1. Les conditions de la réalisation

Lorsqu'on chauffe rapidement et fortement des argiles on peut observer quelquefois un gonflement. L'examen macroscopique et microscopique d'un fragment d'argile expansée montre alors des vacuoles dues au dégagement des gaz à l'intérieur de l'échantillon. Ceux-ci, dans une certaine mesure tout au moins, restent prisonniers de la masse visqueuse car l'enveloppe extérieure bien que fluidifiée par la haute température garde une viscosité élevée et crée ainsi une pellicule plus ou moins étanche aux gaz.

En 1951 Charles M. Riley publie dans le journal of the American Ceramic Society une étude sur les relations entre les propriétés chimiques et l'expansion des argiles. Cette étude avait été entreprise en 1948 par le Minerota Geological Survey pour connaître les possibilités d'utilisation des argiles et schistes de cet état.

En utilisant un grand nombre d'analyses chimiques faites sur des échantillons variés dont il reporte les résultats sur le diagramme triangulaire SiO_2 - Al_2O_3 - CaO,MgO, FeO, FeO_3, $(KN_a)_2O$ et il introduit un domaine d'expansion (fig. 9). Il montre ainsi que par des ajouts convenablement choisis, on peut faire entrer dans le diagramme des matières premières dont le point représentatif est situé initialement en dehors.

On remarque cependant que en dehors de SiO_2 et Al_2O_3 tous les éléments sont groupés sur le troisième pôle du diagramme, ce qui ne permet pas de distinguer leur rôle propre.

C'est pourquoi SOLOVIEVA en 1966 reprit l'étude du mécanisme de l'expansion et montra qu'il est nécessaire d'aboutir à une viscosité favorable à la formation de pores et à une tension superficielle convenable au moment du dégagement gazeux.

1-1-2. Viscosité et tension superficielle

1-1-2-1. Viscosité

Des viscosités trop élevées de la phase liquide opposent une résistance trop grande au dégagement gazeux qui assure la création

de vacuoles à l'intérieur de la masse ramollie. A l'inverse, avec une très faible viscosité, les gaz se libèrent facilement et n'assurent pas le gonflement.

Dans le cas du verre "écume", variété de verre expansé, KITCRIGORODSKI et KECHICHIANE (1953) donnent comme valeur optimale de la viscosité de la masse en fusion des grandeurs de l'ordre de 10^7 à 10^8 poiseuilles (N. sec/m^2). Pour les marnes argileuses, la viscosité serait de même ordre quoique un peu plus élevée que celle de ce verre.

Il paraît indispensable que la variation du facteur viscosité se fasse dans un intervalle de température assez grand, afin de favoriser le phénomène d'expansion dû au dégagement gazeux.

1-1-2-2. Tension superficielle

Il est important que la tension superficielle du granule en fusion soit la plus faible possible afin de ne pas gêner l'accroissement en volume des vacuoles qui sont à la base de la légèreté du matériau, KAINARSKI. GAODU (1967).

Ce phénomène physico-chimique assez complexe n'est pas encore totalement élucidé malgré l'intérêt que présente sa parfaite compréhension.

La tension superficielle et la viscosité découlent, pour une température donnée, de la composition chimique de l'argile employée. Ainsi KARIAKINE (1956) assure que la silice et l'alumine augmentent la viscosité de l'argile en fusion. Mais l'action la plus efficace est celle de la silice :

soit finement dispersée sous forme de particules de quartz,

soit combinée sous forme de minéraux argileux ou d'alumino-silicates anhydres (feldspaths).

JOUENNE (1960) fait intervenir le facteur de surface des grains de quartz, directement lié à la granulométrie. Cette dernière joue un rôle décisif dans le processus de vitrification et donne la mesure de la réactivité de la silice présente dans la pâte. L'auteur considère entre autre que la fraction des grains de quartz inférieure à 10 microns ne doit pas représenter plus de 50 % de la masse argileuse.

Les grains de quartz, dont la granulométrie est supérieure à 10 microns, ne participent pas à la réaction et augmentent la tension superficielle. La granulométrie de cette silice libre a donc un rôle important qui devra être considéré lors de la préparation des échantillons. C'est pourquoi la tension superficielle et la viscosité, établies d'après les rapports

$$\frac{Al_2O_3}{SiO_2} \quad \text{et} \quad \frac{CaO + MgO}{SiO_2 + Al_2O_3}$$

ne peuvent caractériser seules l'aptitude au gonflement.

1-1-3. Dégagement gazeux et sa nature

Le phénomène d'expansion résulte de la libération brusque de gaz lors de la chauffe de la masse argileuse. Ces gaz sont produits par les minéraux accessoires qui accompagnent ce type de roches sédimentaires.

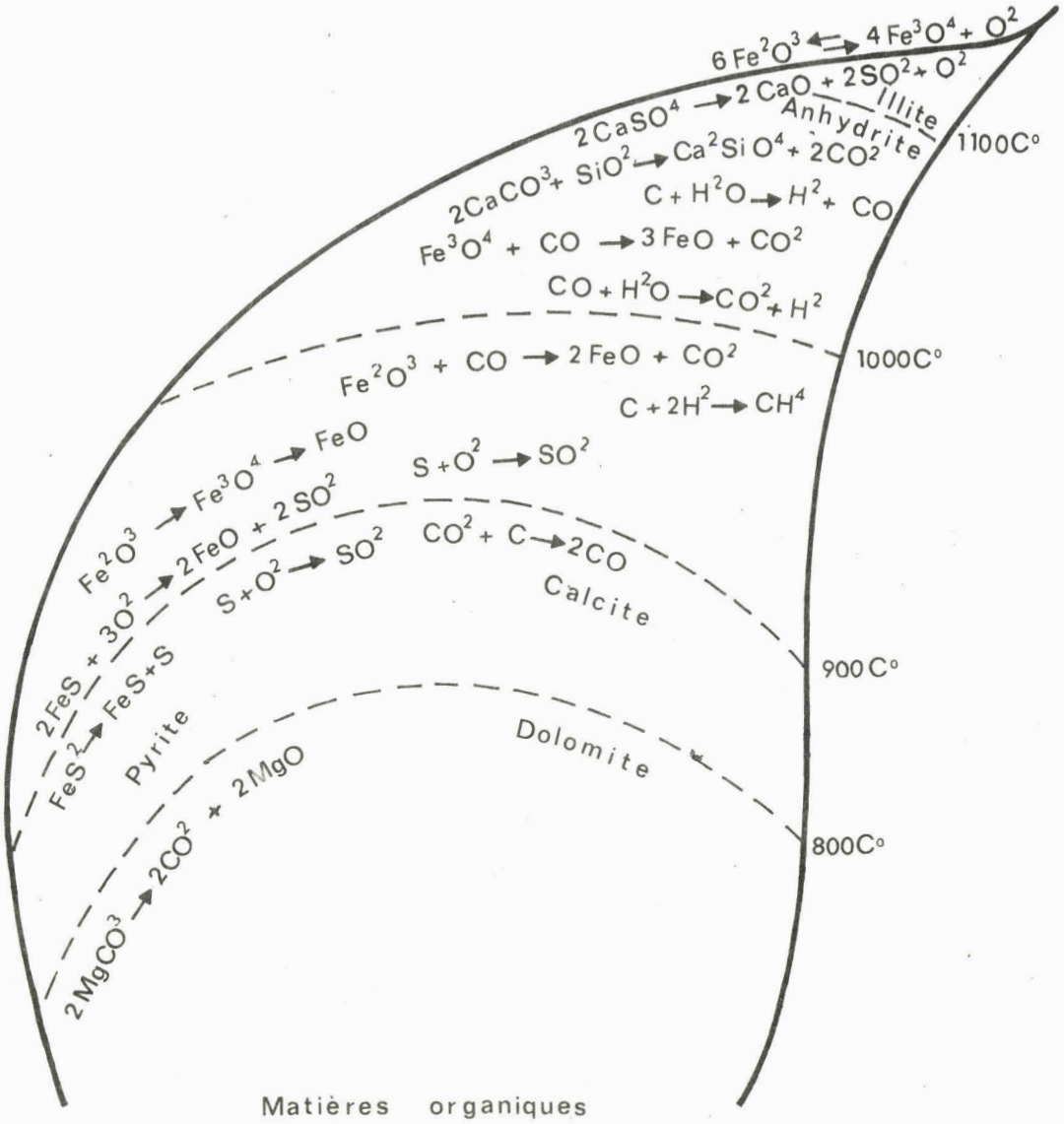
- sulfates et sulfures
- oxydes de fer
- carbonates de calcium et de magnésium
- carbone amorphe.

L'important est que ce dégagement gazeux se produise lorsque la masse argileuse atteint la viscosité optimale. Il est nécessaire que ce dégagement ne soit ni trop violent ni trop brusque, afin de ne pas faire éclater les vacuoles qui se sont formées. Il faut que la pression des gaz soit juste suffisante pour vaincre la tension superficielle de la masse en fusion. STAMBOLIEV (1961) et DENNERT (1966) s'accordent pour signaler que l'on y parvient si au cours du chauffage, dès que 600°C sont atteints, on porte rapidement la matière à la température d'expansion 1150°C à 1350°C.

Comme nous le verrons, les principaux dégagements gazeux se font vers 900°C à 1000°C (fig. 1). Il se produit donc une perte en produits volatils bien avant que ceux-ci puissent intervenir de façon décisive dans le phénomène car la pellicule extérieure n'est pas suffisamment visqueuse à ces températures.

Le bilan des principales réactions de décomposition des différents constituants minéralogiques précités se traduit de la manière suivante :

FIG 1 - REACTIONS PRODUISANT DES DEGAGEMENTS GAZEUX AU COURS DE LA CUISSON



1-1-3-1. La pyrite

Elle se dissocie entre 595°C et 1000°C en donnant du soufre et de la pyrrhotine

$$FeS_2 \longrightarrow FeS + S_{vapeur}\nearrow$$

La pyrrhotine et le soufre s'oxydent ensuite en dégageant de l'anhydrite sulfureux :

$$2\ FeS + 3\ O_2 \longrightarrow 2\ FeO + 2\ SO_2\nearrow$$

$$S + O_2 \longrightarrow SO_2\nearrow$$

FeO se transforme en silicate de fer car il est instable en présence de silice.

1-1-3-2. Les sulfates

Les différents sulfates de calcium, de magnésium et autres sulfates intermédiaires apparus au cours du traitement thermique libèrent SO_2 et SO_3 vers 1100°C suivant les réactions du type :

$$CaSO_4 \longrightarrow CaO + SO_3\nearrow$$

$$MgSO_4 \longrightarrow MgO + SO_3\nearrow$$

$$\text{ou } 2\ CaSO_4 \longrightarrow 2\ CaO + 2\ SO_2 + O_2\nearrow$$

1-1-3-3. Hématite et limonite

Ces minéraux se transforment en oxydes ferriques ($Fe_3\ O_4$) avec émission d'oxygène, ceci dès 1000°C. Remarquons qu'il y a ainsi production d'oxygène qui favorise l'oxydation des autres minéraux à l'intérieur de la masse en réaction.

$$6\ Fe_2\ O_3 \longrightarrow 4\ Fe_3\ O_4 + O_2\nearrow$$

1-1-3-4. Dolomite et calcite

La décomposition thermique de la dolomite ou de la calcite conduit à un dégagement d'anhydrite carbonique ; pour la dolomite, cette décomposition se fait en deux étapes : à 750°C et 890°C. Pour la calcite, elle se produit à 900°C.

CONLEY (1949) a calculé la quantité de carbonate de calcium nécessaire à une expansion satisfaisante. En tenant compte des pertes de gaz toujours possibles, seulement 0,79 % du $CaCO_3$ sont nécessaires et donnent ainsi 92 cm^3 de gaz carbonique.

Nous verrons, lors de l'analyse chimique, que le pourcentage de carbonate de calcium contenu dans les argiles étudiées est très largement au-dessus de cette valeur théorique.

1-1-3-5. Carbone libre

On le rencontre assez souvent dans les formations argileuses sous forme de lignite. Cependant c'est plus fréquemment un ajout (coke, charbon pulvérulent), dont le but est de favoriser les réactions réduction de l'oxyde de fer ferrique.

$$2\ Fe_2\ O_2 + C \longrightarrow 4\ FeO + CO_2 \nearrow$$

1-1-3-6. Conclusion

On constate ainsi que le phénomène d'expansion fait intervenir de nombreux paramètres la viscosité, la tension superficielle, le dégagement gazeux. Ceux-ci sont en relation étroite avec d'autres grandeurs : la température, le temps de cuisson, la nature et la quantité des adjuvants.

Remarquons que la variation d'un des paramètres influe largement sur l'ensemble des autres caractères physico-chimiques qui assurent le phénomène d'expansion.

Il semble qu'à l'heure actuelle, les travaux de recherche se portent sur la compréhension des phénomènes physico-chimiques mis en jeu lors de l'expansion d'une masse argileuse. Ces études tendent à réduire davantage les facteurs aléatoires qui sont toujours à craindre

lorsque l'on souhaite passer à l'échelon industriel pour lequel on cherche toujours une automatisation poussée.

1-2. LOCALISATION DES DIFFERENTS ECHANTILLONS D'ETUDE

Les échantillons ont été prélevés dans les terrains tertiaires du Bassin Parisien dans deux carrières.

La figure 2 montre les coupes géologiques des deux carrières et indiquent la localisation exacte des prélèvements.

1-2-1. Carrière Sainte Geneviève

Elle se situe entre Saint Rémy et Arsy, sur la route départemantale 60, feuille de Compiègne au 1/50 000.

On peut y voir les argiles et lignites du Soissonnais d'âge Yprésien inférieur (Sparnacien). L'argile est de teinte bleu-clair et contient des nodules plus riches en carbonate de calcium. Au-dessus, des lits plus sableux et des niveaux ligniteux sulfurés peuvent être exploités en même temps que les argiles, donnant l'apport complémentaire de fer, sous forme de pyrite ; et de carbone, sous forme de lignite. Sa puissance est environ 15 mètres.

1-2-2. Carrière de Cormeilles-en-Parisis

Feuille de l'Isle-Adam au 1/50 000.

Cette carrière a été choisie car elle offre une coupe remarquable des terrains tertiaires à partir de l'Eocène supérieur.

Au-dessus de la haute masse de gypse saccharoïde et grenu, on observe les marnes calcaires se débitant en prismes par dessication, avec formation de fissures perpendiculaires à la stratification. Cette couche montre des filets d'oxydes de fer et au sommet un banc de gypse : le banc Marabet. L'épaisseur de cet ensemble stratigraphique est de 6 mètres.

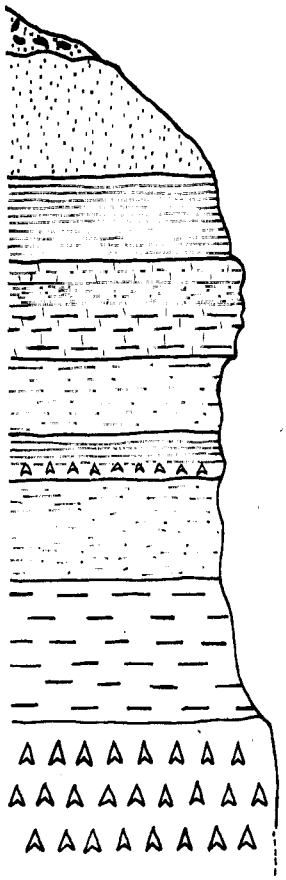
Puis viennent les glaises à Cyrènes et les marnes vertes dans lesquelles j'ai pris deux échantillons AE 8 et AE 9. A la base, on observe une assise argileuse composée de minces feuillets de couleur brun-roux renfermant en abondance *Cyrêna convexa*. Son épaisseur est de 1,5 mètre.

Au-dessus, les marnes argileuses d'un vert vif, avec des nodules calcaires qui se répartissent sur la hauteur de ces marnes, dont la puissance est de 5 mètres environ.

La coupe de la carrière se termine par les calcaires de Sannois et les sables de Fontainebleau qui forment la découverte de la carrière. Ils ne sont plus utilisés.

L'intérêt primordial de la carrière de Cormeilles-en-Parisis est l'exploitation du gypse. L'importante masse d'argiles qui se trouve au-dessus du banc de gypse saccharoïde constitue la découverte de la carrière. Celle-ci est très importante par son épaisseur. Une partie de la masse argileuse est mélangée à de la craie provenant d'une carrière en aval de la Seine et donne après cuisson du clinker pour ciment Portland. On peut saisir l'intérêt de l'étude entreprise, qui permettrait d'y ajouter une autre utilisation judicieuse de la découverte de cette carrière.

Carriere de Cormeilles-en-Parisis



meulière de Montmorency

sable de Fontainebleau

marnes à huitres

calcaires de Sannois

marnes vertes. AE 9.

glaises à Cyrènes. AE 8.

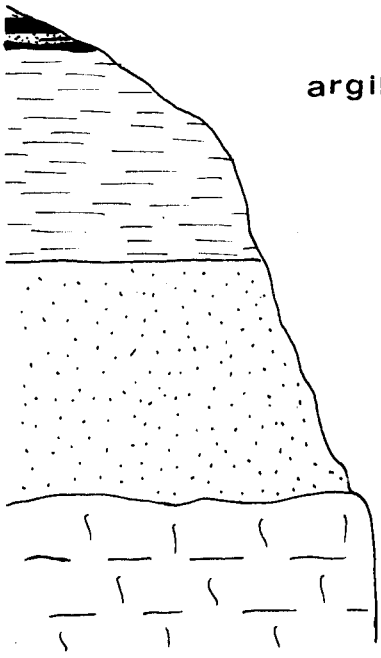
marnes blanches de Pantin. AE 7.

marnes bleues d'Argenteuil. AE 6.

haute masse de gypse

10 mètres

Carriere Sainte Geneviève



argiles et lignites

du Soissonnais. AE 2.

sables de Bracheux

craie à Bélemnitelles

Fig 2- Localisation des échantillons

Deuxième Partie

ETUDE EXPERIMENTALE D'ECHANTILLONS

SOMMAIRE :

2-1. ANALYSE CALCIMETRIQUE

2-2. ANALYSE MINERALOGIQUE

2-3. ANALYSE CHIMIQUE

2-4. CARACTERISTIQUES TECHNIQUES

Chaque échantillon a subi trois types d'analyse :

- une analyse calcimétrique pour connaître la teneur en carbonate de calcium. Rappelons que celui-ci fournit la majeure partie des gaz qui servent à l'expansion. Notons cependant qu'une quantité trop importante peut modifier les facteurs physiques et en particulier la viscosité, comme nous l'avons vu au cours de la première partie (§ 1-1-2).

- une analyse minéralogique permettra de connaître notamment les différentes phases phylliteuses présentes dans ces argiles. Celles-ci, par leur type de structure, sont pour une large part dans la réussite du phénomène.

- une analyse chimique élémentaire précisera les différentes proportions des constituants de ces argiles. On pourra en déduire d'une façon plus nette leur aptitude à l'expansion.

2-1. ANALYSE CALCIMETRIQUE

Pour chaque niveau argilo-marneux, plusieurs prises d'essai, représentatives autant que possible, ont été prélevées et analysées. Les différents pourcentages de carbonates de calcium ainsi obtenus sont reportés sur la figure 3.

L'échantillon AE 2 ne présente qu'un pourcentage faible en carbonate de calcium, 1 à 2 % seulement. Une forte anomalie pour une prise d'essai peut être constatée. Elle est due à l'un des nodules plus calcaires qui sont irrégulièrement répartis dans la masse argileuse. Cet essai a été effectué pour juger de son influence sur la teneur globale en carbonate du banc argileux. En effet après broyage, ces nodules se mélangent à la pâte qui s'enrichit en carbonates. Un excès important pertuberait alors la composition chimique, une des données capitales de la réussite du phénomène d'expansion.

Les autres échantillons présentent tous une quantité excessive en $CaCO_3$, jusqu'à 50 % pour l'échantillon AE 7. Exception faite de l'argile AE 9 qui n'en contient que 10 % et reste comparable à l'argile AE 2.

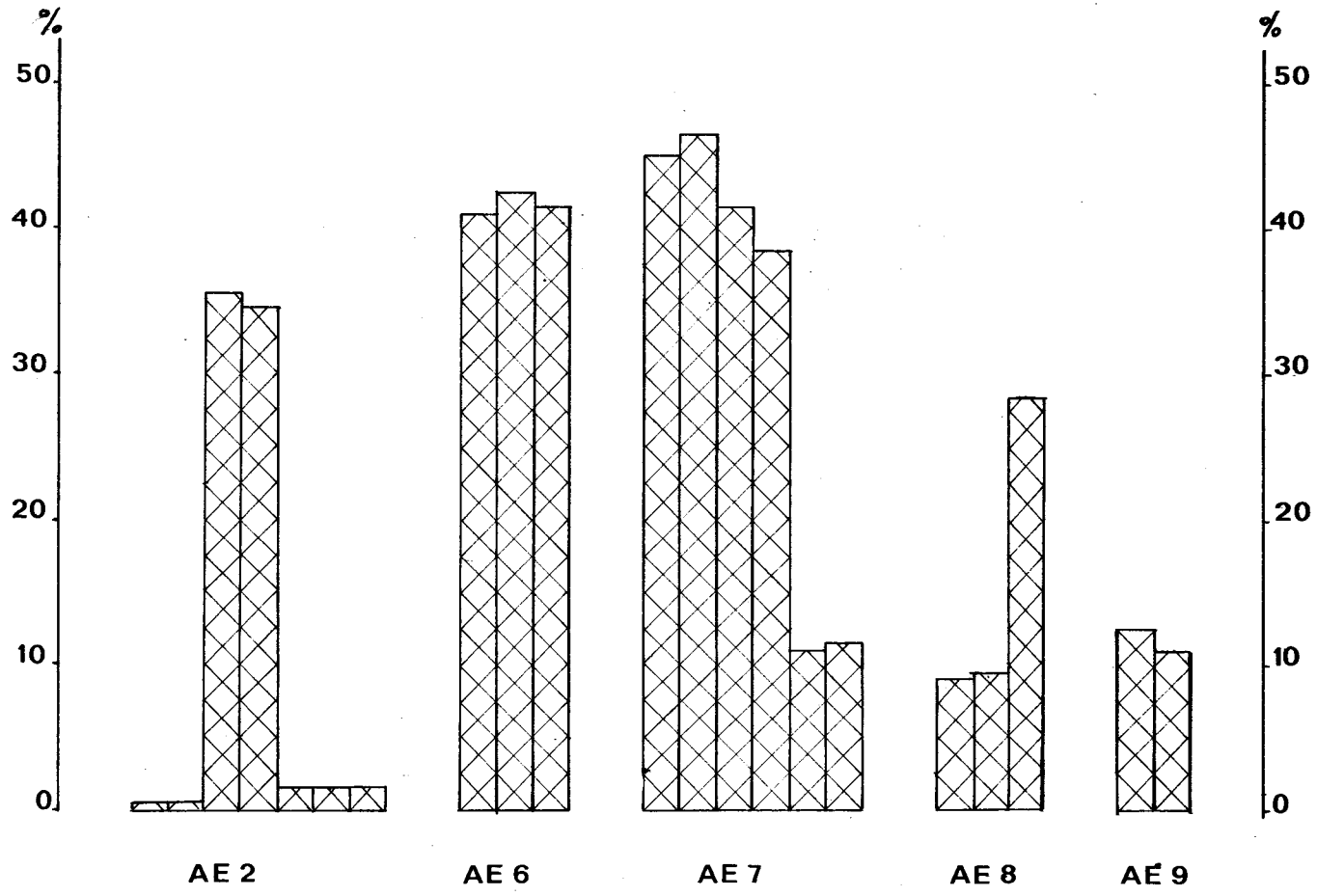


Fig 3 - Tableau récapitulatif des calcimétries

BIUS LILLE

2-2. ANALYSE MINERALOGIQUE

2-2-1. Méthode

Chaque échantillon est broyé ; cinq grammes sont prélevés puis préparés de la manière suivante. De l'acide chlorhydrique est versé goutte à goutte dans la suspension argileuse constamment agitée pour assurer la décarbonatation de la solution jusqu'au ph 3 ; car tous les échantillons contiennent des carbonates.

Après lavage, les différentes argiles sont traitées avec du citrate de sodium (11,9 g/l) et du chlorure de calcium (100 g/l). Ces traitements permettent une meilleure dispersion des particules argileuses qui ont tendance à former des micelles.

La suspension est mise à décanter pendant deux heures dans une éprouvette et l'on prélève alors, à une certaine profondeur, les particules égales ou inférieures à cinq microns. Lavées, concentrées par centrifugation, elles sont déposées sur une lame pour obtenir une fine couche de minéraux phylliteux orientés statistiquement selon le plan (001).

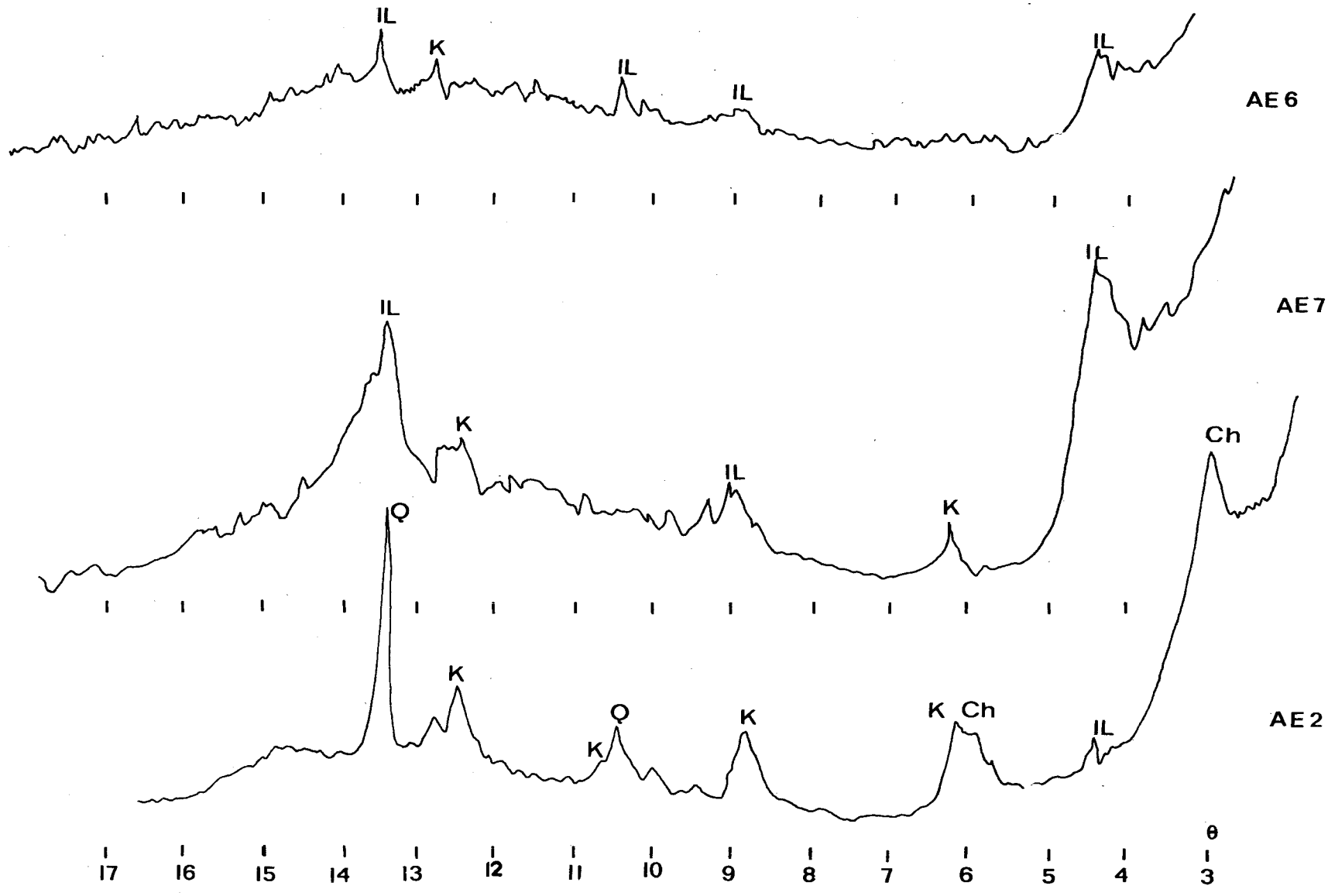
2-2-2. Résultat

Les figures 4 et 5 reproduisent les diffractogrammes obtenus pour chaque échantillon d'argile.

Le diagramme de l'échantillon AE 2 présente les pics de la kaolinite et ceux de la chlorite. Toutes deux paraissent bien cristallisées. On observe aussi le très faible pic de l'illite à 4,45°.

Le diagramme AE 6 montre une argile peu ou mal cristallisée où seuls les pics de l'illite apparaissent. Pour l'échantillon AE 7, celui-ci montre les pics de l'illite et de la kaolinite. La proportion relative entre illite et kaolinite est de 7/1.

L'échantillon AE 8 donne un diffractogramme où l'on peut remarquer les pics parasites du gypse et de la dolomie. Ce niveau contenant quelques passées gypseuses, le traitement de préparation n'a pu éliminer totalement ces minéraux. Les minéraux phylliteux principaux sont l'illite et la kaolinite dans une proportion de 9/1, et les chlorites, en faible quantité.



BUS LILLE

Fig 4 - Diffractogrammes des échantillons AE 2, AE 6, AE 7

IL : illite
K : kaolinite
Q : quartz
G : gypse
Ch : chlorite

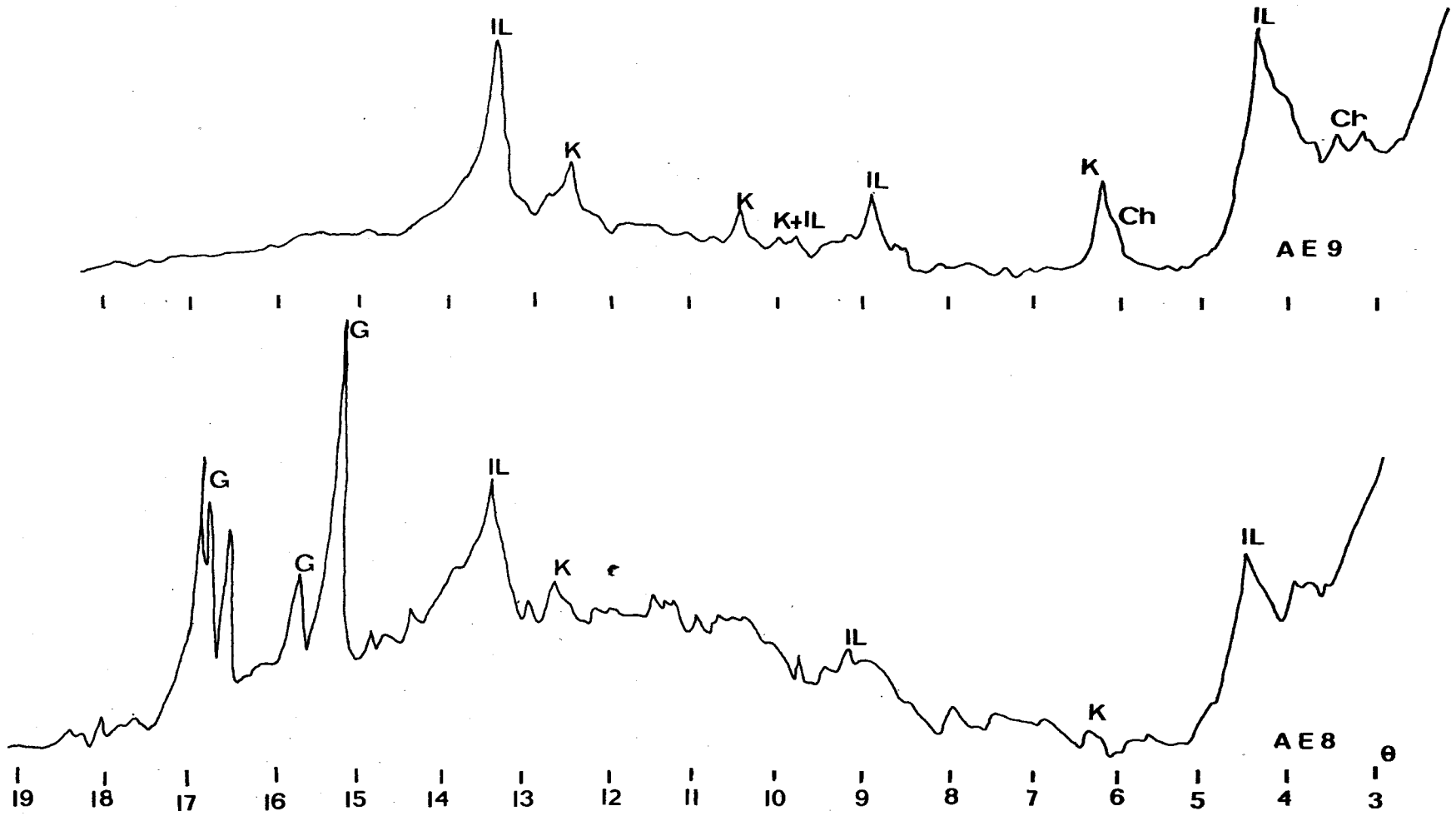


Fig 5 - Diffractogrammes X des échantillons AE 8 et AE 9

Le diffractogramme de l'argile AE 9 présente les pics assez prononcés de l'illite et de la kaolinite comme minéraux principaux, dans une proportion relative de 9/3. On peut observer le faible pic de la chlorite vers 3°.

L'estimation de la proportion relative entre l'illite et la kaolinite prend comme référence les travaux de H. H. MURRAY (1956) qui propose, pour cette estimation, la grandeur mesurée, sur le diffractogramme, du pic caractéristique de chacun des minéraux.

- 9,9 Å pour l'illite
- 7,15 Å pour la kaolinite.

Compte tenu de la possible différence de cristallisation des deux phyllosilicates, ce rapport est donné à titre indicatif. Il permet de juger l'importance relative de l'illite par rapport à la kaolinite. Comme nous le verrons, l'illite, par sa composition chimique et minéralogique, joue un rôle non négligeable dans la réussite du phénomène d'expansion.

Remarquons que tous les échantillons d'argile analysés contiennent de la kaolinite plutôt mal cristallisée ou en proportion faible (AE 6), de l'illite en forte proportion dans l'argile AE 9 et des chlorites pour les échantillons AE 2 (bien cristallisée) et AE 9 (en trace).

JAVEY (1967) signale que les argiles, dont la structure comporte trois feuillets comme l'illite, la montmorillonite, la chlorite, la vermiculite ou l'attapulgite renferment une certaine proportion d'alcalins et d'alcalino-terreux dans leurs structures. Elles conviennent mieux que les argiles à kaolinite ou halloysite qui ne contiennent pas ces éléments. Parmi ces argiles, l'illite est favorable, en raison de la présence de potassium dans sa composition chimique, comme nous le verrons ci-dessous.

2-3. ANALYSE CHIMIQUE

2-3-1. Technique

2-3-1-1. Appareillage

L'analyse chimique a été réalisée avec un spectromètre sous vide à fluorescence X. La figure 6 nous montre un schéma de ce spectromètre. Les rayons X émis par le tube tombent sur l'échantillon et

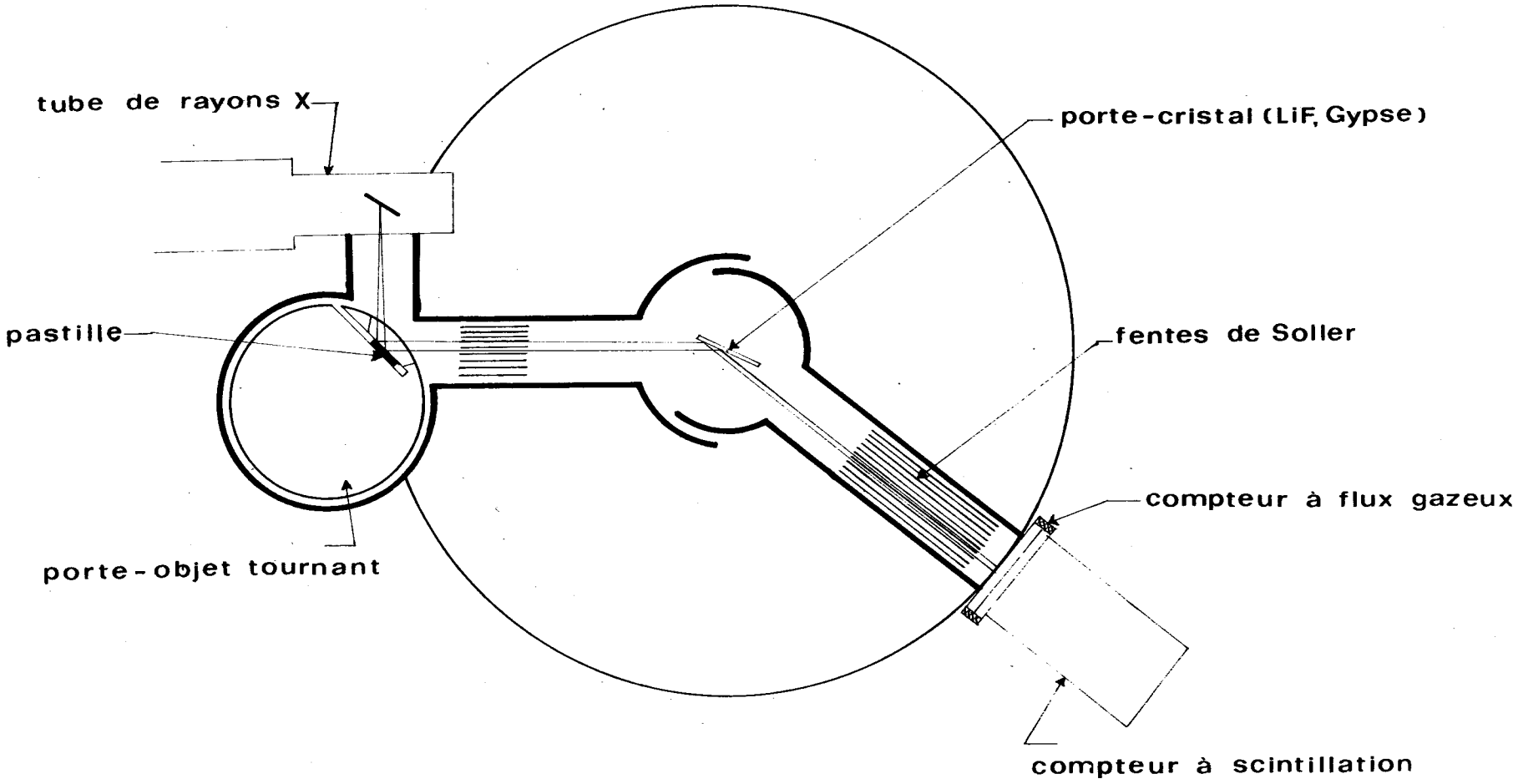


Fig 6 - Schema du spectrometre sous vide

BUS LILLE

excitent les atomes qui émettent un rayonnement de fluorescence. Celui-ci est analysé par un cristal de gypse ou de fluorure de lithium.

Dans le cadre de l'étude des minéraux argileux, le choix s'est porté sur le cristal de gypse qui présente une maille réticulaire de grande taille dont les paramètres sont $a_o = 5,68$ Å, $b = 15,18$ Å, $c_o = 6,29$ Å.

Cette maille permet de mieux analyser le rayonnement de fluorescence de grande longueur d'onde émis par les éléments contenus dans les particules phylliteuses.

Ce rayonnement est capté par un compteur à flux gazeux et un compteur à scintillation. Le premier compteur, destiné à l'analyse des éléments légers (Ca, Mg,...) est composé d'un filament dans une atmosphère d'argon et de méthane. Si un élément léger est présent dans l'échantillon, le photon émis par celui-ci ionise le mélange gazeux, et une décharge électrique se produit. Ces signaux sont totalisés sur un compteur numérique, pendant une période de temps variable en fonction de l'élément à doser. Le second compteur enregistre les rayonnements émis par les autres éléments chimiques contenus dans l'argile.

2-3-1-2. Préparation de l'échantillon

Une prise d'essai est calcinée dans un creuset en graphite avec du tétraborate de lithium comme fondant, dans la proportion de 1/12. La perle obtenue est broyée, on complète par un alourdisseur en quantité suffisante pour cinq grammes.

L'alourdisseur a pour rôle de supprimer les interférences entre les éléments. Certains ions ont tendance à se surexiter sous l'effet du rayonnement X, et risquent d'entrainer dans cet état anormal les ions voisins. Pour éviter ces pertubrations parasites, l'alourdisseur, par sa moindre sensibilité, s'interpose entre les éléments en limitant leur interaction. On peut utiliser pour ce rôle l'oxyde de baryum ou l'oxyde de lantane ; celui-ci est plus couramment employé du fait de sa présence peu fréquente dans les argiles couramment analysées.

Pratiquement, on comprime la poudre ainsi préparée sous forme d'une pastille sur un support d'acide borique, à l'aide d'une presse pouvant développer 600 Kg/cm^2.

N.B. Le dosage de l'anydride sulfurique SO_3 a été fait à partir de la phase gazeuse. On calcine l'argile à 1 300°C sous un flux d'oxygène. On recueille le mélange de gaz sulfureux et sulfurique SO_3 et SO_2. Ces gaz sont dirigés vers une solution diluée d'eau oxygénée et de soude, colorée au rouge de méthyle dans laquelle ils barbottent. L'eau oxygénée sert à oxyder sous la forme SO_3 tout l'anydrite sulfureux produit par la décomposition des sulfates et des sulfures. On dose en retour, et directement, par l'acide sulfurique N/20 la soude qui n'a pas réagi avec le gaz dégagé.

2-3-2. Résultats

Le tableau 1 nous donne les proportions des différents éléments chimiques dosés dans chaque échantillon. Son étude fait apparaître :

- la faible teneur en silice des échantillons AE 6 et AE 7
- l'excés, sauf pour AE 9, de chaux (CaO), assez gênant par sa proportion importante
- pour AE 8 le pourcentage élevé de sulfate, ce niveau présentant des passées gypseuses.

BURNETT et EHLERS (1967) donnent des indications à ordre expérimental, qui peuvent se traduirent par les limites suivantes :

$$0{,}111 < \frac{Al_2O_3}{SiO_2} < 1{,}00$$

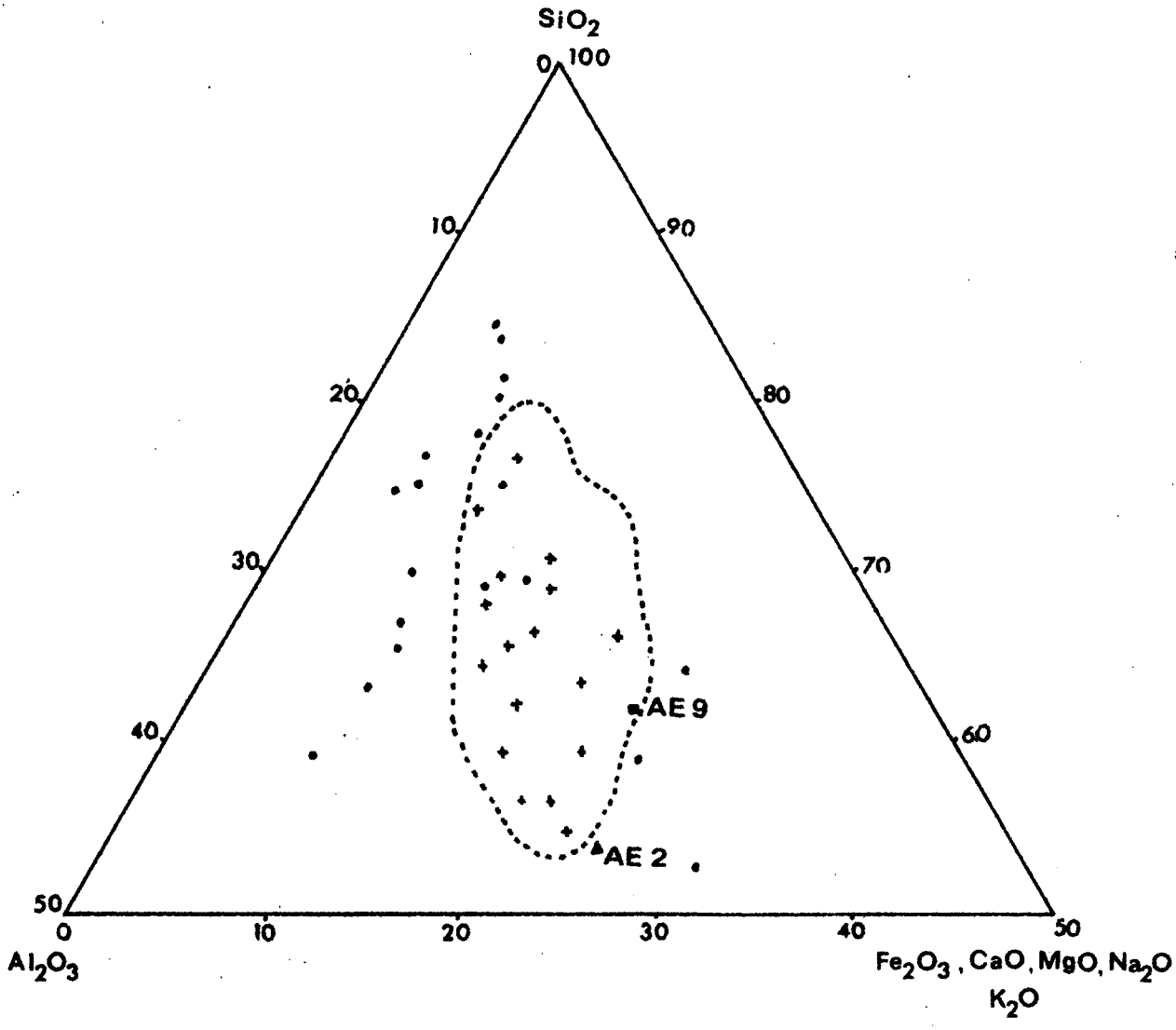
$$0{,}04 < \frac{CaO + MgO}{Al_2O_3 + SiO_2} < 0{,}14$$

$$0{,}01 < \frac{K_2O + Na_2O}{SiO_2 + Al_2O_3} < 0{,}06$$

$$0{,}04 < \frac{Fe_2O_3}{SiO_2 + Al_2O_3} < 0{,}13$$

Au sujet de l'argile AE 2, nous constatons qu'un des ajouts à effectuer sera de la silice libre. Cela augmentera son propre pourcentage en silice et diminuera le rapport $\frac{CaO + MgO}{Al_2O_3 + SiO_2}$. Dans ce cas, cet échantillon se rapprocherait de la zone d'expansion naturelle du diagramme de RILEY.

Fig 7 - Diagramme triangulaire de RILEY -



+ argile s'expansant naturellement

• argile ne s'expansant pas naturellement

▪ échantillon AE 9

▲ échantillon AE 2

Constituants %	AE 2	AE 6	AE 7	AE 8	AE 9
SiO_2	43,70	27,40	34,00	23,20	54,30
Al_2O_3	17,95	8,57	10,40	6,12	14,08
Fe_2O_3	3,69	3,26	4,11	2,71	5,09
CaO	15,12	28,00	16,80	26,88	7,56
MgO	0,88	2,8	6,8	1,6	3,2
SO_3	0,50	4,53	6,65	29,77	0,88
Na_2O	0,14	0,22	0,22	0,16	0,23
K_2O	0,85	2,22	2,80	1,68	3,38
TiO_2	0,52	0,26	0,33	0,20	0,50
MnO	0,08	0,09	0,09	0,08	0,09
P_2O_5	0,22	0,28	0,33	0,29	0,28
Cl^-	0,02	0,03	0,02	0,02	0,01
Perte au feu	16,55	22,80	18,40	9,05	10,35
T O T A L	100,72	100,40	100,95	100,76	100,25

Analyses des échantillons séchés à 100°C

BUS LILLE

Tableau 1

	ADMIS.	AE 2	AE 6	AE 7	AE 8	AE 9
$\frac{Al_2O_3}{SiO_2}$	0,111 à 1,0	0,41	0,31	0,30	0,26	0,25
$\frac{CaO + MgO}{SiO_2 + Al_2O_3}$	0,04 à 0,14	0,25	0,85	0,51	0,97	0,15
$\frac{K_2O + Na_2O}{SiO_2 + Al_2O_3}$	0,02 à 0,06	0,01	0,06	0,06	0,06	0,05
$\frac{Fe_2O_3}{SiO_2 + Al_2O_3}$	0,04 à 0,13	0,05	0,09	0,09	0,09	0,07

Tableau 2

Tableau des limites admises par

BURNETT, EHLERS.

BUS

	% ADMIS	AE 2	AE 6	AE 7	AE 8	AE 9
SiO_2	50 à 68	43,70	27,40	34,00	23,20	54,30
Al_2O_3	13 à 24	17,95	8,57	10,40	6,12	14,08
CaO	0,2 à 3,7	15,12	28,00	16,80	26,88	7,56
MgO	1,5 à 3,5	0,88	2,8	6,8	1,6	3,2
Fe_2O_3	4,8 à 13,5	3,69	3,26	4,11	2,71	5,09
$K_2O + Na_2O$	1,5 à 4,5 maximum 7	0,99	2,44	3,02	1,84	3,61
SO_3	0 à 1,5	0,50	4,53	6,65	29,77	0,88
Perte au feu	6 à 8	16,55	22,80	18,40	9,05	10,35

Tableau des limites admises par SOLOVIEVA

Tableau 3

BUS LILLE

	AE 2	AE 6	AE 7	AE 8	AE 9
SiO_2	53,07	35,58	41,57	25,18	61,21
$A\ell_2O_3$	21,80	11,13	12,71	6,64	15,87
K_2O M_gO $F_{e_2}O$	25,11	53,28	45,70	68,20	22,92
TOTAL	99,98	99,99	99,98	100,02	99,90

Tableau 4

Tableau des compositions chimiques

ramenées à 100 %

BUS LILLE

2-3-3. Conclusion

Les argiles AE 2 et AE 9 paraissent les plus aptes à subir le phénomène d'expansion. Nous avons refait une analyse chimique complémentaire que nous avons comparée à celle de l'argile yprésienne de Watten (tableau 5). Cette argile sert déjà à la fabrication industrielle d'argile expansée.

Nous constatons que l'argile yprésienne de Watten est plus riche en SiO_2 -10% en moyenne- et que sa perte au feu, de l'ordre de 7 % reste dans les limites admises par SOLOVIEVA. Sa teneur en carbonates est extrêmement faible, moins de 2 %. Elle se trouve très nettement dans les limites permises. Ce qui n'est pas le cas pour nos argiles. Seule l'argile AE 9 peut être comparée favorablement à celle-ci et nous espérons que le phénomène d'expansion se réalisera de manière naturelle pour cet échantillon.

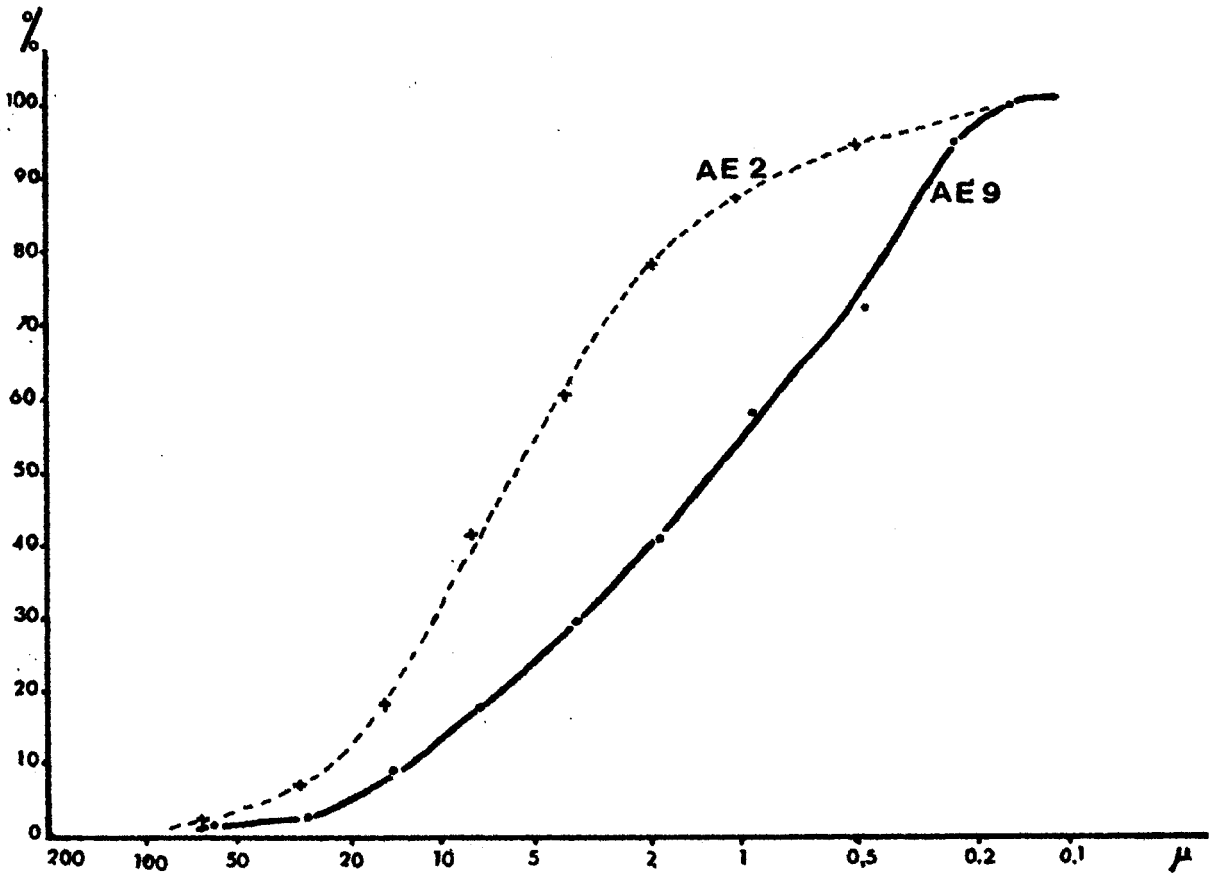
2-4. CARACTERISTIQUES TECHNIQUES

Les argiles AE 2 et AE 9 semblent satisfaisantes du point de vue chimique et minéralogique pour le phénomène d'expansion. Mais lors de la mise en oeuvre industrielle, pour un façonnage aisé et la bonne tenue des granules d'argile crue, certaines propriétés physiques sont indispensables. Aussi, nous avons entrepris deux études techniques portant sur la granulométrie de l'argile brute et sur l'évaluation des limites d'ATTERBERG.

2-4-1. La granulométrie

Elle a été obtenue par la méthode de la balance MARTIN, par compensation automatique et enregistrement en continu de la variation de la densité. Les points de tangence aux courbes permettent de déterminer la taille des particules argileuses.

Les courbes obtenues montrent que les deux argiles ont des caractéristiques granulométriques assez différentes (fig. 8). Celle de l'argile AE 9 est plus étalée. Les particules inférieures à 0,01 mm représentent 85 % de la granulométrie. Tandis que l'argile AE 2 en contient environ 70 %.



diamètres (µ)	100	40	25	10	5	2	1,20	0,5	0,2	0,1
refus cumulé AE 9	1	2	4	14	24	40	51	70	93	98
refus cumulé AE 2	1	4	9	3	53	77	85	93		

. Courbes granulométriques des Argiles AE 2 et AE 9 .

. Fig 8 .

BUS LILLE

	AE 2		AE 9		Argile de Watten
Perte au feu	16,55	16,40	10,80	10,35	7,42
SiO_2	43,70	45,40	52,30	54,30	60,80
Al_2O_3	17,95	16,93	15,10	14,08	17,3
Fe_2O_3	3,69	4,00	5,43	5,09	6,52
CaO	15,12	14,00	8,40	7,56	1,82
MgO	0,88	1,00	2,00	3,20	2,15
K_2O	0,85	0,87	3,68	3,38	2,67
Na_2O	0,14	0,11	0,24	0,23	0,60
TiO_2	0,52	0,68	0,75	0,50	0,96
SO_3	0,50	0,38	0,88	0,85	
T O T A L	99,90	99,67	99,58	99,54	100,24

Tableau 5

Tableau comparatif des argiles AE 2, AE 9, Watten

BUS LILLE

La différence est très nette en ce qui concerne les fines particules dont la taille est inférieure au micron. Pour l'argile AE 9, elles représentent la moitié de l'ensemble, par contre elles ne constituent que 15 % de la masse argileuse de l'échantillon AE 2.

Or SOLOVIEVA (1966) signale que les argiles russes s'expansant bien ont une teneur de 50 à 75 % de particules inférieures à 0,01 mm. La finesse des argiles joue donc également un rôle important dans les réactions qui aboutissent à l'expansion. Les éléments colloïdaux inférieurs à 0,1 micron donnent à la masse et à la surface du granule une texture très serrée, presque imperméable aux gaz de combustion et à ceux dégagés dans le granule. Ajoutons que la vitrification aura lieu à une température plus basse même si les argiles ont la même composition chimique.

On constate que l'argile AE 9 correspond le mieux aux exigences de la granulométrie.

2-4-2. Les limites d'ATTERBERG

Ces limites ont été établies pour connaître le domaine de plasticité de ces deux matériaux argileux. Le façonnage en granule, à la main comme nous l'avons fait, ou automatiquement dans l'industrie nécessite l'adjonction d'une certaine quantité d'eau à la pâte. Le granule ne pouvant passer directement au four dans cet état, il risque d'éclater, nous sommes dans l'obligation de le sécher préalablement. La durée de séchage sera d'autant plus courte que la quantité d'eau ajoutée sera moindre. Il convient donc que la limite de plasticité soit la plus basse possible.

Ce sont des composantes physiques conventionnelles qui marquent les seuils entre :

- le passage d'une argile de l'état liquide à l'état plastique (limite de liquidité W_L)

- le passage d'une argile de l'état solide à l'état plastique (limite de plasticité W_P)

- l'indice de plasticité I_p qui est la différence entre ces deux valeurs, représente l'étendue du domaine plastique.

2-4-2-1. Limite de liquidité

Les mesures sont effectuées à l'aide de l'appareil de Casagrande. Elles sont pour une valeur moyenne de 25 coups :

AE 9 : 67 %
AE 2 : 93 %

2-4-2-2. Limite de plasticité

L'essai normalisé consiste à former un rouleau de 3 mm de diamètre que l'on roule sur du marbre à l'aide d'une plaque de bois. Quand le boudin se fractionne en petits tronçons de 1 à 2 cm de long pour un diamètre de 3mm, la limite de plasticité est atteinte. Elle est de l'ordre de :

AE 9 : 43,6 %
AE 2 : 29,6 %

nous en déduisons les indices de plasticité I_p

I_p AE 9 : 23,4 %
I_p AE 2 : 63,4 %.

De ce point de vue l'argile AE 2, dont le domaine de plasticité est plus large, se montre sous des dehors plus engageants.

Troisième Partie

TRAVAUX EXPERIMENTAUX

SOMMAIRE :

3-1. MODE OPERATOIRE

3-2. ETUDE DE L'ARGILE AE 9

3-3. ETUDE DE L'ARGILE AE 2

3-1. MODE OPERATOIRE

La préparation de chaque échantillon a été faite de façon uniforme pour assurer une reproductibilité à celle-ci. Elle est faite à partir d'unequantité d'argile qui s'est voulue représentative de la couche géologique étudiée.

Les échantillons secs sont broyés au concasseur giratoire et tamisés à 0,25 mm.

Au cours des expériences que nous allons entreprendre sur les argiles AE 2 et AE 9, nous procéderons à des ajouts qui doivent respecter certains critères de préparation et de pureté.

Parmi ceux-ci, nous introduirons du carbone sous forme de coke. Il est préparé, du point de vue granulométrique, de la même manière que les argiles. La fraction inférieure à 0,05 mm servira d'ajout pour les échantillons passés au four.

Les autres ajouts que nous avons envisagés de faire tels que : potasse, carbonate de magnésium, sulfate de fer ferrique, l'ont été à partir de produits chimiques purs utilisés couramment au laboratoire. Cela évite l'adjonction d'éléments étrangers non contrôlés qui pourraient fausser le rôle ou l'importance des corps introduits. La quantité des ajouts est calculée pour qu'elle représente la valeur en oxydes de ses constituants puisque la composition chimique de l'argile est exprimée par les oxydes des différents éléments.

Quant à la silice qui servira d'ajout lors des expériences avec l'argile AE 2, elle provient du sable de Fontainebleau préalablement lavé aux acides puis finement broyé à l'état de farine dont la granulométrie est de 6 microns environ.

Il est bon d'insister, ici, sur l'importance de la granulométrie des produits d'adjonction. Nous avons vu, en ce qui concerne la silice, que si la dimension moyenne des grains est supérieure à 100 µm, elle n'intervient pas totalement dans les réactions, et n'a que peu d'influence sur la viscosité et l'intervalle de température d'expansion. Il est donc très important de connaître avec précision la taille supérieure des particules de silice et des autres ajouts.

Après façonnage de la pâte en boudins, on découpe celui-ci en morceaux de 2 cm de longueur que l'on roule dans un sable grossier (taille des grains supérieure à 1 mm). Cela évite à ces granules de coller aux parois de la nacelle de porcelaine et permet une récupération aisée de ceux-ci.

Ainsi préparés, les produits sont étuvés à 100°C pendant deux heures puis passent dans un four tubulaire de type HERAUS ROS 4/30 qui permet d'atteindre 1 500°C, en marche continue. Il possède une zone de haute température assez étroite, le gradiant de température varie rapidement à l'intérieur du four tubulaire. Il arrive de ce fait, des incidents de cuisson dus à la mauvaise localisation des granules dans la zone de température maximale. Ce genre d'incidents est évité, lors du stade semi-industriel, par l'emploi d'un four rotatif ; le granule se déplace par gravité dans toute cette zone.

Les résultats observés lors du traitement thermique sont reportés sur un tableau récapitulatif, pour chaque échantillon. Il comporte les trois paramètres qui varient au cours de l'expérience ; la température de cuisson, le temps de passage dans le four et la densité des granules d'argile expansée ainsi obtenus. Des observations sur l'aspect extérieur du granule et sur l'allure du phénomène d'expansion complètent ce tableau. Elles permettent de se faire une idée rapide du résultat final de chaque essai.

N.B. La densité indiquée est une densité apparente et s'obtient de la manière suivante. La pellicule externe vitrifiée n'est pas totalement étanche, de petits pores peuvent communiquer avec les vacuoles. Pour cela, on enduit le granule de paraffine, ce qui a pour but d'obstruer ces pores et de la rendre imperméable à l'eau. La mesure de la densité est faite avec un picnomètre de HUBBART, à col large.

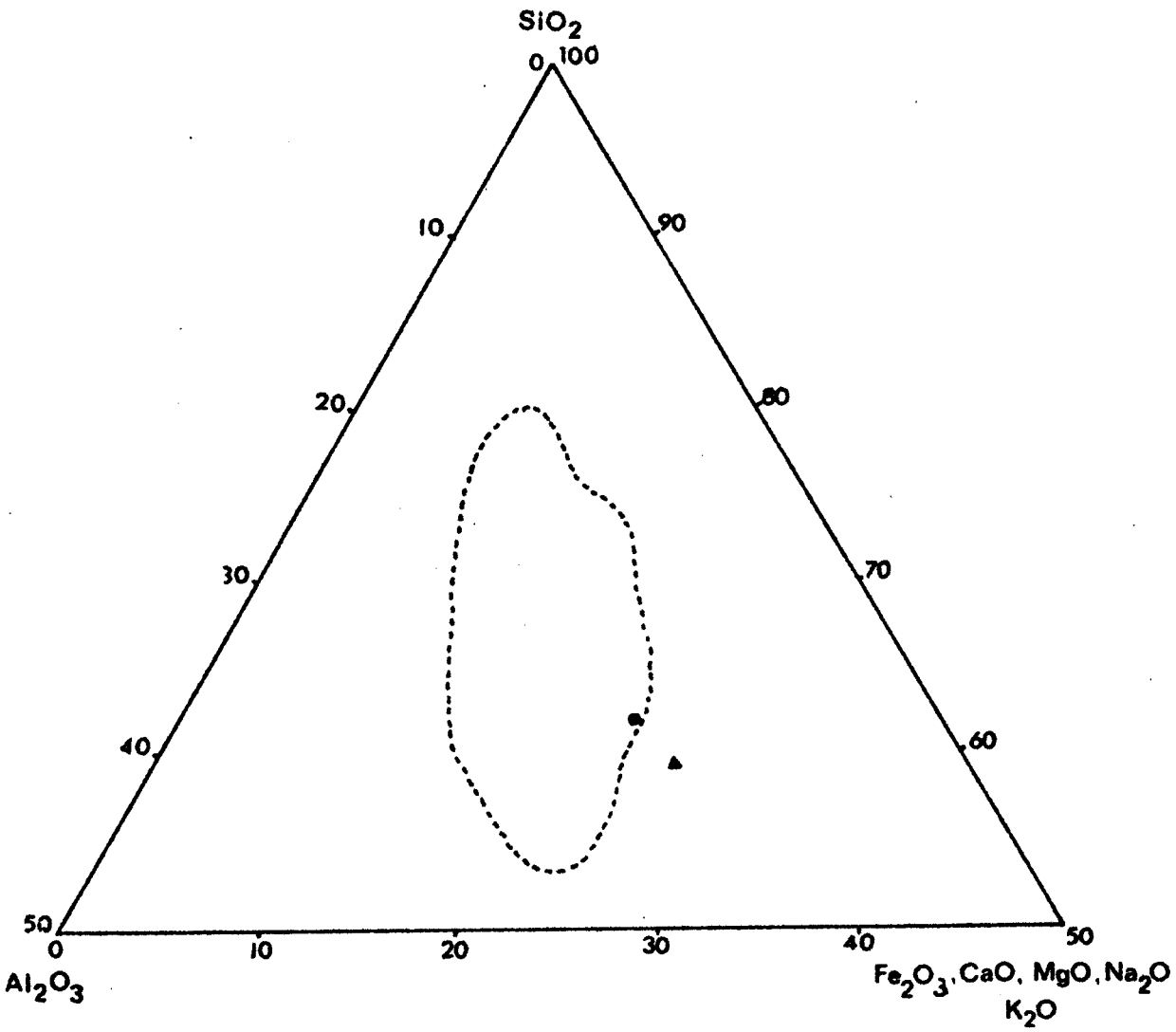
3-2. ETUDE DE L'ARGILE AF °

(Marnes vertes de la carrière de Cormeilles-en-Parisis)

L'analyse chimique permet de situer l'échantillon d'argile dans le diagramme ternaire de RILEY, à la limite de la zone d'expansion naturelle (fig. 9). En effet, la composition élémentaire

Fig 9 - Localisation des Argiles AE 9

dans le diagramme de RILEY



• Argile AE 9 sans ajout

▲ Argile AE 9 avec 4% K_2O

BUS LILLE

ramenée aux constituants principaux se définit comme suit :

SiO_2 : 61,21 %

Al_2O_3 : 15,87 %

K_2O, MgO, FeO : 22,92 %

Une étude systématique est entreprise sur cette argile afin de cerner les limites de la température de cuisson et celles du temps de passage dans le four pour une densité minimale.

L'argile devant s'expanser naturellement, nous avons seulement ajouté du carbone sous forme de coke. Les proportions de cet ajout sont comprises entre 0 et 3 %, le pourcentage de 3 % est une limite supérieure. En effet, SOLOVIEVA fait remarquer qu'une argile présentant les critères chimiques favorables mais contenant 6 % de matières organiques ne s'est pas expansée. Remarquons par ailleurs que les schistes à 10 % de carbone,utilisés par les Houillères du bassin du Nord et du Pas-de-Calais en vue de l'expansion, subissent une prédécarbonisation. Ce traitement amène la proportion de carbone à environ 1 %. Ce n'est qu'ensuite qu'ils subissent le choc thermique qui détermine avec succès le phénomène.

3-2-1. AE 9 sans ajout

Le tableau 6 récapitule les différents paramètres, la température, le temps de cuisson et la variation de la densité en fonction de ces deux données.

On peut constater que le premier granule, malgré un temps de cuisson de 10 minutes, à une température de 1 150°C n'est pas vitrifié et qu'aucun phénomène d'expansion n'est visible. De ce fait le granule ne flotte pas. Ce test simple de la flottabilité permet de déceler rapidement si la densité est inférieure ou supérieure à l'unité et de vérifier si l'expansion est insuffisante ou satisfaisante. Les mesures plus précises de la densité apparente se font ultérieurement car elles nécessitent une mise en oeuvre plus laborieuse.

Les essais suivants, à température croissante, donnent des granules de densité inférieure à l'unité. Les échantillons 2, 3, 4, présentent malgré tout une vitrification incomplète. La densité minimale

Légende se rapportant aux tableaux
6, 7, 8, 9, 10, 11, 12, 13, 14.

R : Rien. Aucune vitrification, ni expansion.

P : Passable. Vitrification partielle et superficielle.

AB : Assez bien. Vitrification partielle. Début d'expansion du granule. Densité voisine de 1.

B : Bien. Vitrification et expansion totale.

TB : Très bien. Le granule présente une parfaite vitrification et une expansion satisfaisante amenant sa densité proche du minimum.

F : Fondu. Le granule attache au fond de la nacelle. Sa récupération est bien souvent partielle, malgré le lit de sable grossier mis dans la coupelle pour éviter que le granule ne se fixe aux parois.

	Température(°C)	Temps (mn)	Densité	Expansion
1	1150	10		R
2	1160	5	0,90	P
3	1180	5	0,86	AB
4	1190	5	0,77	B
5	1200	5	0,61	TB
6	1210	5	0,74	TB
7	1200	5	0,75	TB
8	1200	5	0,70	TB

- Tableau 6 -

Argile AE 9 + 0% de coke

BUS LILLE

est obtenue pour un temps de cuisson de 5 minutes à 1 200°C. L'extérieur du granule est alors bien vitrifié, l'expansion est satisfaisante.

Les deux derniers essais sont des essais de vérification qui confirment la bonne reproductibilité du phénomène d'expansion. La densité ainsi obtenue est voisine de 0,70.

Sans aucun ajout, l'argile AE 9 s'expanse donc correctement avec les paramètres physiques suivants :

température : 1 190 - 1 200°C
temps de cuisson : 5 minutes

3-2-2. AE 9 et 1 % de coke

Le tableau 7 permet de nous rendre compte que tous les essais entrepris sur cet échantillon sont satisfaisants. La densité relative des granules obtenus est comprise entre 0,60 et 0,80 pour une température comprise entre 1 150 et 1 200°C. L'observation des granules obtenus nous amène à formuler quelques remarques.

Le premier essai à une température de 1 150°C nous donne un granule de densité 0,60. Son expansion moyenne se fait à partir de craquelures. Sa vitrification n'est pas totale et se situe seulement au niveau des dites craquelures. Il semble que la pellicule externe et l'intérieur de la masse se comportent différemment au moment de la chauffe. L'extérieur, qui semble avoir perdu une partie des éléments nécessaires à une vitrification normale à cette température, devient plus réfractaire. L'intérieur, encore intact, réagit normalement à la température du four en produisant des gaz qui font craquer l'enveloppe externe.

Les essais 91-2 et 91-3 donnent une vitrification totale des granules. Les paramètres sont respectivement :

1 150°C et 10 minutes
1 200°C et 5 minutes.

La densité obtenue est voisine de 0,70.

Les essais suivants permettent de confirmer les paramètres de l'expansion avec des résultats satisfaisants. Le sixième essai donne un granule dont la vitrification et l'expansion sont excellentes. Cassé, il montre des alvéoles de taille moyenne bien réparties dans l'ensemble de l'échantillon.

	Température (°C)	Temps (mn)	Densité	Expansion
1	1150	5	0,60	P
2	1150	10	0,72	AB
3	1200	5	0,69	B
4	1200	5	0,65	TB
5	1200	5	0,79	AB
6	1200	5	cassé	TB

Tableau 7

Argile AE 9 + 1% de coke

BUS LILLE

3-2-3. AE 9 et 2 % de coke

Les différents essais ont été regroupés dans le tableau 8. Les deux premières expériences à 1 150°C en faisant varier le temps de chauffe ne sont pas concluantes. Les granules d'argile sont simplement cuits et leur densité est de 1,10 environ.

Les essais suivants à 1 200°C et pendant un temps de cuisson de 5 mn nous donnent des granules dont le poids spécifique est voisin de 0,70 g/cm^3. Le phénomène d'expansion s'est pleinement réalisé.

L'échantillon 4, brisé lors de sa récupération montre des vacuoles bien réparties mais un peu grandes. Leur taille varie de 5 à 7 mm. Les cloisons sont épaisses mais sont elles-mêmes percées de petites alvéoles.

L'échantillon 6, brisé par la suite, montre des vacuoles dont la taille moyenne est de 3 mm environ. Cette expansion lui confère une densité de 0,70.

Ces essais précisent la température optimale pour l'expansion de cette argile avec 2 % de coke, celle-ci est de 1 200°C et son temps de cuisson de 5 minutes.

En tenant compte des erreurs de mesures, on peut dire que l'intervalle de température se situe entre 1 180 et 1 220°C pour une cuisson de 5 minutes. La densité obtenue varie entre 0,68 et 0,70.

3-2-4. AE 9 et 3 % de coke

Une série d'essais a été entreprise sur l'argile AE 9 à laquelle nous avons ajouté 3 % de coke. Les résultats obtenus, densité et allure du phénomène d'expansion en fonction de la température et du temps de cuisson sont rassemblés dans le tableau 9.

Les deux premiers essais à 1 100°C, malgré un temps de cuisson de 15 minutes ne donnent aucun résultat. La vitrification partielle se limite à la zone superficielle et aux craquelures.

Le troisième granule 93-5 de densité très légèrement supérieure à l'unité présente une vitrification totale et régulière. Mais, en coupe, il montre deux parties bien nettes (Planche III, photo 1). Le phénomène d'expansion ne s'est développé que sur le bord du granule.

AE 9	Température (°C)	Temps (mn)	Densité	Expansion
1	1150	5	1,04	R
2	1150	10	1,12	R
3	1200	5	0,68	B
4	1200	5	cassé	TB
5	1200	5	o,67	TB
6	1200	5	0,70	TB

Tableau 8

Argile AE 9 + 2 % de coke.

BUS LILLE

	Température (°C)	Temps (mn)	Densité	Expansion
931	1140	15	1,50	R
934	1100	15	1,14	R
935	1130	5	1,03	P
936	1160	8	0,94	P
937	1180	4	0,90	B
938	1200	4	0,67	TB
939	1220	8		F
9310	1220	5		F
9311	1200	4	0,91	P
9312	1240	5		F
9313	1200	6	0,80	TB
9314	1200	5	0,84	TB

AE 9 + 3 % de coke.

BUS LILLE

Tableau 9

Les vacuoles sont petites assez régulièrement réparties, mais le centre reste compact. Il semble que la température 1 135°C ne soit pas assez élevée pour assurer un dégagement gazeux et une viscosité suffisante à l'intérieur du granule.

Dans l'essai suivant 93-6, nous avons légèrement augmenté la température, elle est de 1 160°C et nous avons laissé le granule pendant 8 minutes dans la zone de chauffe. Nous avons observé le phénomène d'expansion qui s'est déroulé de la manière suivante. Au début, l'expansion se produit normalement avec un dégagement gazeux et une viscosité optimale de la masse argileuse, ceci pendant 5 minutes. Ensuite, le granule se dégonfle comme un ballon de baudruche ; nous avons arrêté là l'expérience. Si elle était poursuivie, il aurait fondu totalement et coulé au fond de la coupelle. Ce phénomène peut s'expliquer par la décomposition complète des minéraux à cette température, entrainant aussi une diminution de la viscosité. L'échantillon plus fluide est incapable de retenir les gaz produits. Il s'affaisse alors définitivement.

3-2-5. AE 9 + 4 % K_2O + 3 % de coke

L'argile AE 9 s'expanse naturellement sans autre ajout que le coke. Celui-ci a été ajouté pour favoriser les réactions d'oxydations à l'intérieur de la masse argileuse, et libérer ainsi une partie des gaz nécessaires à l'expansion.

L'échantillon, par sa composition chimique, se situe dans la zone d'expansion naturelle du diagramme de RILEY. Nous envisageons d'ajouter du potassium pour faire passer son pourcentage de 3,61 à 7,5 %. De ce fait, sa teneur globale dépasse légèrement la limite maximale de 7 % admise par SOLOVIEVA (cf. tabl. 3).

La composition élémentaire ramenée aux principaux constituants évolue de la manière suivante :

SiO_2 : 58,85 %

Al_2O_3 : 15,25 %

K_2O, FeO, CaO : 25,88 %

L'échantillon se place donc à l'extérieur de la zone d'expansion (cf. fig. 9).

Le potassium a été ajouté, dans le but d'abaisser le point de fusion du matériau argileux. Il intervient aussi sur la viscosité en diminuant sa valeur et en réduisant l'intervalle de température dans lequel elle s'applique.

Nous avons procédé aux essais de cuisson sur cette argile, dont les résultats ont été regroupés dans le tableau 10. Ils nous ont permis de faire les constatations suivantes :

Les trois premiers essais donnent des granules d'argiles simplement cuites, ceci pour une température de 1 150°C et 1 200°C et de temps de cuisson respectifs de 5 et 10 minutes.

Par contre le quatrième essai, dont les paramètres expérimentaux sont 1 200°C et 6 minutes, donne un granule ayant deux aspects différents (cf. Pl. IV, ph. n° 2) :

- une croûte cuite épaisse (1 mm)
- une masse vitrifiée qui semble s'extruder d'une cassure.

L'explication que l'on peut fournir de ce phénomène, est qu'à cette température, les constituants favorables à une vitrification superficielle sont totalement décomposés ou volatilisés. Le choc thermique n'est ni assez important, ni assez rapide pour la provoquer. Par contre, l'intérieur du granule peut se vitrifier, et s'expanser à l'abri de cette croûte qu'il finit par briser. La densité qui résulte de cet essai est malgré tout supérieure à l'unité.

Au cours du sixième essai, à une température de 1 250°C, la pâte devient visqueuse. L'expansion se produit au cours de la cuisson variant de 5 à 10 minutes. La densité des granules obtenus est nettement inférieure à 1 de l'ordre de 0,77.

A la température de 1 260°C, l'échantillon n° 8 présente une bonne vitrification bien qu'il subsiste quelques lambeaux de croûte imparfaitement cuite. Après cassure, on constate que l'enveloppe vitrifiée est assez épaisse (1 à 2 mm), mais deux grandes vacuoles composent le granule dont la taille ne dépasse pas deux centimètres. De ce fait, il présente une certaine fragilité, car il n'a pas résisté à la simple pression des doigts.

Les paramètres qui résultent de cette expérience - température 1 250°C, temps de cuisson 10 minutes - sont assez loin des résultats escomptés, mais donnent malgré tout, des granules de densité inférieure à l'unité.

	Température (°C)	Temps (mn)	Densité	Expansion
1	1150	5	1,46	R
2	1170	10		R
3	1200	5		P
4	1200	6	1,14	P
5	1200	10	0,91	P
6	1250	5	Cassé	AB
7	1250	5	0,85	AB
8	1260	10		AB
9	1260	5	0,77	AB
10	1250	10	0,77	B

AE 9 + 4% K_2O + 3% de coke.

Tableau 10

BUS LILLE

3-2-6. Conclusion des essais sur l'Argile AE 9

L'étude comparée des différents tableaux regroupant tous les résultats des essais, avec comme seul ajout le coke, nous amène à faire les remarques suivantes.

La densité relative minimale obtenue varie entre 0,61 et 0,67. Elle est l'aboutissement d'une cuisson à une température de 1 200°C pendant 5 minutes d'un granule d'argile contenant entre 0 et 3 % de coke.

On peut constater que la quantité de coke ajouté intervient peu dans le phénomène d'expansion. Les différents paramètres qui définissent la densité moyenne, sont peu sensibles à la variation de la quantité de coke. Malgré tout, les essais avec 1 % de coke, donnent dès 1 150°C, des granules de densité nettement inférieure à l'unité, variant entre 0,60 et 0,70. Nous constatons que ce pourcentage en carbone, ajouté sous forme de coke, est identique à celui des schistes, après décarbonisation, servant à la fabrication des Schistes Expansés des Houillères Nationales.

Quant à l'expérience qui a consisté à ajouter du potassium, elle s'est montrée décevante et encourageante à la fois. En effet, on attendait un abaissement de la température de fusion de la masse de l'échantillon ; il n'en a rien été. L'expansion s'est produite à une température supérieure de 50°C à celle des essais précédents, et donne des granulats de densité plus élevée. Mais l'échantillon, bien qu'en dehors de la zone d'expansion naturelle, s'est quand même vitrifié et expansé de manière correcte. Cependant, tous les granules obtenus présentent une certaine fragilité, à cause des grandes vacuoles qui les constituent.

L'argile AE 9 que nous venons d'étudier montre donc une aptitude naturelle favorable à l'expansion pour un très faible apport en carbone. Les paramètres physiques sont définis parfaitement :

température : 1 150 à 1 200°C
temps de cuisson : 5 minutes
densité : 0,60-0,70.

Ils permettent, ce que nous avons appelé un essai de "production", avec des granules de tailles différentes.

Le résultat obtenu, c'est-à-dire la densité et l'allure de l'expansion, est comparable à celui émanant de l'expérience. Les paramètres ainsi établis permettent une parfaite reproductibilité du phénomène d'expansion.

3-3. ETUDE DE L'ARGILE AE 2

(Argile et lignites du Soissonnais. Carrière de Sainte Geneviève)

L'argile AE 2 présente des caractéristiques minéralogiques, chimiques et physiques nettement différentes de celles de l'argile AE 9. Elle est essentiellement constituée de kaolinite avec quelques traces d'illite et de chlorite. Or nous savons que ce phyllosilicate qui prédomine dans cet échantillon est peu propice à une bonne expansion (cf. § 2-2-2.).

Par ailleurs, la composition chimique fait apparaître un déficit en silice, et une forte teneur en carbonate de calcium (cf. tabl. 1).

De ce fait, l'étude expérimentale sera entreprise différemment et consistera surtout à déterminer la nature et la quantité d'ajouts pour obtenir une expansion satisfaisante. Ces ajouts feront ainsi évoluer la composition de l'échantillon vers la zone d'expansion naturelle, du diagramme de RILEY, dont elle se trouve assez éloignée à l'état naturel.

Nous avons mélangé 3 % de coke à la pâte argileuse qui a servi pour tous les essais. La quantité ainsi ajoutée représente le pourcentage maximum admis par les auteurs.

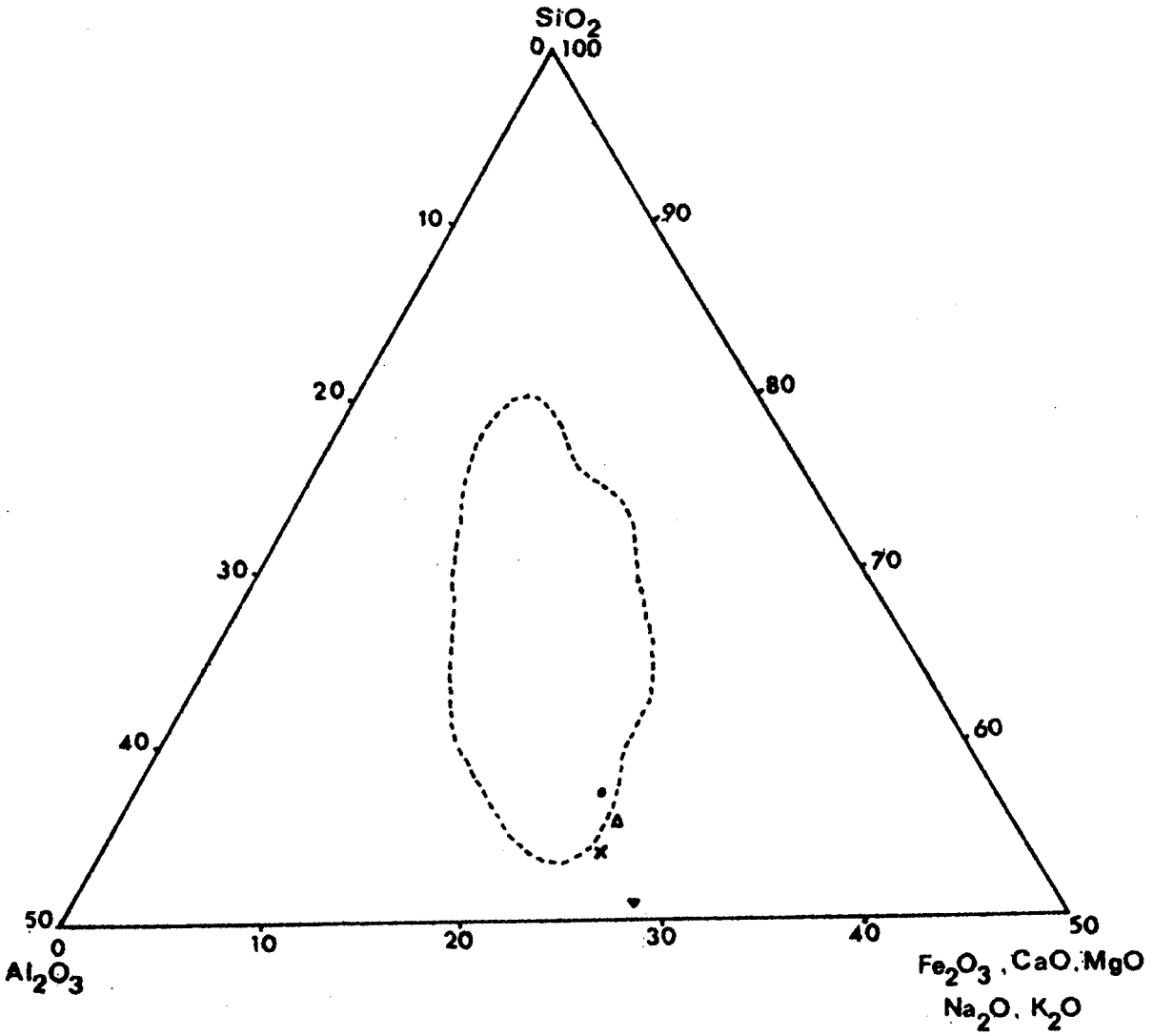
3-3-1. Argile AE 2 + 3 % de coke

La composition élémentaire de l'argile AE 2, ramenée à ses principaux constituants permet de placer le point représentatif de l'échantillon dans le diagramme de RILEY, Il se situe en dehors de la zone d'expansion naturelle (cf. fig. 10).

Nous avons entrepris plusieurs essais, deux seulement ont été reportés dans le tableau 11. Les températures extrêmes -1 100°C et 1 220°C-, avec un temps de cuisson assez long (10 minutes), n'ont amené aucune vitrification des granules. Ils acquièrent une couleur et un aspect qui rappellent ceux de la brique. La densité moyenne obtenue, proche de 1,40, confirme l'échec des essais.

Fig 10 – Localisation des Argiles AE 2

dans le diagramme de RILEY



× AE 2 sans ajout

▼ AE 2 et 2% K_2O + 2% MgO

△ AE 2 et 10% SiO_2 + 2% K_2O + 2% MgO

• AE2 et 10% SiO_2

BUS LILLE

Les températures et temps de cuisson élevés montrent que le phénomène d'expansion ne peut se réaliser dans ces conditions.

3-3-2. Argile AE 2 + 2 % MgO

Nous avons procédé à une deuxième série d'expériences, mais nous avons mélangé à cette argile du potassium sous forme de potasse, et du magnésium sous forme de magnésite. Les quantités ajoutées sont calculées de telle manière qu'elles représentent les pourcentages énoncés en oxydes de ces éléments chimiques.

Dans le tableau 3, nous constatons que les pourcentages de ces deux éléments sont nettement en dessous de la limite inférieure, admise par SOLOVIEVA. Nous pensons que cet ajout, modifiant ainsi les rapports existants entre la silice, l'alumine et les autres alcalino-terreux, permettra une vitrification et une expansion des granules. Nous rappelons que le potassium intervient au niveau de la température de fusion et de la viscosité.

De ce fait, sa composition élémentaire devient :

SiO_2 : 51,03

Al_2O_3 : 20,96

K_2O, CaO, FeO : 28,00

Il se situe encore à l'écart de la zone d'expansion (cf. fig. 10). En fonction des trois paramètres physiques, les résultats de l'expansion obtenus lors des essais, sont regroupés dans le tableau 12.

Nous constatons que la température de cuisson est assez élevée, supérieure à 1 200°C. Mais ces essais sont négatifs si l'on considère le paramètre densité comme décisif. Tous les granules ont une masse volumique supérieure à $1 g/cm^3$.

L'observation du premier granule, après cassure, permet de mettre en écidence deux parties :

- l'une compacte, non expansée, moins cuite au centre
- l'autre, vacuolaire mais peu importante, forme la croûte vitrifiée.

	Température (°C)	Temps (mn)	Densité	Expansion
231	1110	10	1,44	R
232	1220	10	1,35	R

Tableau 11

Argile AE 2 + 3% de coke.

	Température (°C)	Temps (mn)	Densité	Expansion
241	1230	6	1,24	R
242	1280	10		F
243	1290	3	1,60	R

Tableau 12

Argile AE 2 + 2% K_2O + 2% MgO + 3% de coke.

Les essais suivants, ont pu, avec une température approchant 1 300°C et des temps de cuisson variés, cerner les conditions favorables à l'expansion. Un granule a fondu sans aucun début d'expansion pendant toute la durée de la cuisson. Un autre, bien que vitrifié, présente une masse volumique élevée. Ces essais sont encourageants car ils montrent un timide début de vitrification et d'expansion.

3-3-3. Argile AE 2 + 2 % K_2O + 2 MgO + 10 % SiO_2

L'apport de potassium et de magnésium seuls n'amène qu'une très faible amélioration dans la recherche des paramètres optimum du phénomène d'expansion. Nous constatons que cet échantillon présente un déficit en silice que nous avons comblé par un ajout de 10 % de quartz finement broyé.

La composition centésimale devient après cet ajout :

SiO_2 : 55,32 %

Al_2O_3 : 19,12 %

K_2O, CaO, FeO : 25,52 %

Cet échantillon se situe toujours en dehors de la zone d'expansion naturelle définie par les expériences de RILEY (fig. 10) mais s'en est nettement rapproché.

Les nombreux essais entrepris et classés par ordre croissant de température sont exposés dans le tableau 13.

A température constante, 1 200°C, une variation du temps de cuisson ne déclenche pas ou peu le phénomène d'expansion. Le granule 25-2 présente une pellicule vitrifiée et légèrement expansée en surface. Ceci pour une température de 1 200°C et pour un passage au four de 8 minutes (Planche II, photo n° 4).

Seuls les essais 25-3, 25-5, 25-10 présentent une vitrification et une vacuolisation satisfaisante, qui amène la densité au-dessous de l'unité, au niveau de 0,90 environ.

L'observation des granules brisés permet de voir des vacuoles de petite taille qui entourent des masses assez importantes peu ou pas expansées. La densité se ressent de la mauvaise structure vacuolaire des granules et se situe près de l'unité bien qu'en dessous.

	Température (°C)	Temps (mn)	Densité	Expansion
243 S	1100	5	1,62	R
244 S	1150	5	1,51	R
251	1200	6	1,36	P
252	1200	8	1,40	P
257	1220	5	0,85	AB
256	1200	3	1,14	P
258	1200	5	1,35	P
259	1220	8	1,39	B
251	1220	7	0,90	B
255	1240	3	Casse	B
253	1240	5	0,87	B
254	1250	4		F
241 S	1290	3	1,38	F
242 S	1290	3		F

BUS LILLE

Tableau 13

Argile AE 2 + 2% K_2O + 2% MgO + 10 % SiO_2

Une augmentation de 50°C de la température de cuisson, amène assez rapidement la fusion de l'échantillon (granule 21-45). Cela est dû, pensons-nous, au potassium qui intervient sur la viscosité et diminue l'intervalle de température dans lequel celle-ci est optimale.

Cette série d'essais permet d'obtenir des granules vitrifiés et expansés correctement, bien que la densité reste voisine de l'unité. Les paramètres définis par ces expériences sont 1 240°C et 5 à 7 minutes.

3-3-4. Argile AE 2 + 10 % SiO_2

Dans les expériences précédentes, un apport de silice combiné avec du potassium et du magnésium a donné des résultats encourageants en ce qui concerne l'expansion.

Mais c'est surtout l'ajout de silice qui joue le rôle essentiel et rapproche la composition de l'échantillln de la zone d'expansion. Nous avonc donc entrepris une série d'expériences avec de l'argile AE 2, à laquelle nous avons mélangé 10 % de silice.

La composition des principaux éléments s'établit alors de la manière suivante :

SiO_2 : 57,33%

Al_2O_3 : 19,81 %

K_2O, CaO, FeO : 22, 82 %

Elle le place dans la zone d'expansion naturelle définie par les recherches de RILEY (fig. 10). Nous pouvons escompter, du fait de sa position, une expansion satisfaisante. Ces expériences se sont déroulées avec 3 % de coke comme pour les essais précédents et leurs résultats sont reportés sur le tableau 14.

Les trois premiers essais dont le temps de cuisson varie de 6 à 15 minutes pour une température constante de 1 200°C donnent des granules qui commencent seulement à se vitrifier en surface. L'échantillon 23e présente quelques particularités (Planche II, photo n° 9). On observe une partie vitrifiée et expansée au centre qu'entourent deux fragments à peu près identiques d'une croûte simplement cuite de couleur

	Température (°C)	Temps (mn)	Densité	Expansion
23 a	1100	6		R
23 b	1200	8	1,30	R
23 c	1200	15	1,13	P AB
23 d	1200	5	0,95	B
23 e	1250	5	0,84	TB
23 f	1250	5	0,84	TB
23 g	1250	5		TB
23 h	1250	5	0,84	TB

Tableau 14

Argile AE 2 + 10 % SiO_2 + 3 % de coke

BUS LILLE

beige. La section de ce granule montre que l'intérieur est parfaitement expansé et que les vacuoles sont petites mais régulièrement réparties (Planche III, photo n° 8). Une croûte épaisse est visible au sein de laquelle quelques micropores sont décelables. Du fait de son temps de cuisson très long, 15 minutes, le choc thermique n'est pas assez brutal pour vitrifier rapidement la croûte. Il y a simple décomposition des minéraux en surface alors que l'intérieur, préservé par celle-ci, peut se vitrifier et s'expanser en faisant éclater cette croûte protectrice.

La température de 1 250°C et un temps de cuisson au four de 5 minutes donnent à l'échantillon 23e une densité de 0,84 avec une vitrification totale de la croûte. Les essais suivants permettent de vérifier que les paramètres physiques ainsi définis donnent des résultats identiques à ceux de l'expérience. Un essai de "production" a été entrepris à partir de ces données. On obtient des granules bien expansés dont la densité est voisine de celle trouvée expérimentalement, et permet de conclure à la parfaite reproductibilité du phénomène d'expansion sur cette argile AE 2 avec l'ajout de silice.

Quatrième Partie

CONCLUSION

- C O N C L U S I O N -

Le but de ce travail consistait à rechercher des argiles s'expansant dans des conditions satisfaisantes pour obtenir les granulats les plus réguliers et les plus légers possibles.

Par conditions satisfaisantes, il faut entendre l'ensemble des facteurs physiques mis en oeuvre au cours de la réalisation du produit. Sans qu'une hierarchie soit donnée, citons parmi les principaux la plasticité, le temps de passage au four et la température de celui-ci.

Des données économiques nouvelles apparues au cours du travail ont finalement donné une importance plus grande au facteur température et nous avons cherché la possibilité d'abaissement de la température à laquelle le phénomène prenait son plein développement.

Cette étude a porté principalement sur des argiles du Bassin Parisien car la finalité industrielle était de trouver un gisement favorable proche de la région parisienne, grosse consommatrice de matériaux à bétons.

Diverses techniques de recherches sont successivement mises en oeuvre pour connaître la composition chimique et minéralogique des différents niveaux argileux échantillonnés. Elles font apparaître que seulement deux argiles, parmi celles que nous avions sélectionnées, les argiles et lignites du Soissonnais (AE 2) et les marnes vertes (AE 9) peuvent prétendre à une expérimentation plus élaborée. Elles sont constituées par de l'illite et des chlorites pour la marne AE 9 et de la kaolinite et de l'illite pour l'argile AE 2. La composition chimique de cette dernière montre cependant un net déficit en Silice.

Le niveau AE 8, les glaises à Cyrènes, trop riche en gypse est éliminé définitivement ; on connait l'effet néfaste de la présence de sulfate dans un matériau cuit ou un béton. Les autres argiles échantillonnées dans les marnes bleues d'Argenteuil (AE 6) et dans les marnes blanches de Pantin (AE 7) présentent une trop grande perte au feu, un trop faible pourcentage en silice, en alumine et un excés en carbonate de calcium. Elles ne peuvent prendre place dans le diagramme de RILEY. Les ajouts trop importants ne seraient compensés que par une expansion faible et aléatoire. Les expériences entreprises permettent de constater qu'une des conditions nécessaires à l'expansion est bien que l'échantillon se situe dans la zone d'expansion naturelle définie par RILEY.

Nous avons procédé ensuite aux expériences de cuisson de ces deux argiles. Par sa composition chimique favorable, l'argile AE 9 s'est expansée naturellement à une température de 1 200°C pour un temps de cuisson de 5 minutes. L'ajout de 1 % de coke n'avait pour but que de faciliter certaines réactions d'oxydation des minéraux à haute température et libérer ainsi des gaz qui interviennent dans le phénomène d'expansion. L'expérience avec l'argile seule montre que celle-ci est capable de s'expanser naturellement et avec les mêmes paramètres physiques. On peut considérer que l'argile AE 9 répond parfaitement tant du point de vue minéralogique, chimique et granulométrique aux critères d'un phénomène d'expansion excellent.

Quant à l'argile AE 2, elle ne peut être utilisée telle quelle. Après avoir tenté d'abaisser le point de fusion par un ajout de potassium sans résultats décisifs, nous avons montré qu'un apport peu important de silice, adjuvant d'approvisionnement facile, aboutit à une excellente vitrification de la masse argileuse ainsi qu'à son expansion. Celle-ci est réalisée à la température de 1 250°C pour une cuisson de 5 minutes. Ces paramètres sont, dans l'industrie de transformation des silicates facilement réalisables.

Nous nous sommes attachés, par un essai de production réalisé avec les moyens du laboratoire, à vérifier que les paramètres obtenus lors de l'étude expérimentale de ces argiles permettent une parfaite reproductibilité du phénomène d'expansion. Nous avons obtenu ainsi régulièrement des granules de densité comprise entre 0,60 et 0,80. Notons que l'argile AE 9 conduisait toujours aux densités les plus basses.

A ce stade de l'étude, nous pouvons considérer que le but fixé est atteint. Il reste malgré tout un cap difficile à franchir, celui de l'industrialisation. Il faut en effet tester les valeurs obtenues en utilisant des fours rotatifs ou à grille mobile.

Les granulats d'argile expansée donnent des bétons qui, par leur isolation et leur légèreté, se prêtent merveilleusement aux nouvelles possibilités d'expression architecturale.

Bien que conduisant à des granulats de nature un peu différente, de nouvelles techniques de cuisson ont été envisagées et notamment la cuisson en flamme d'injection. Dans ce dispositif, le choc thermique est très brutal et les éléments n'ont plus le temps de se

décomposer et de perdre les gaz avant que n'intervienne la fusion. Cette technique nouvelle en cours d'expérimentation au laboratoire permettra peut-être des fabrications plus économiques.

Cinquième Partie

BIBLIOGRAPHIE

PLANCHES

- B I B L I O G R A P H I E -

BAUDET G. (1970).- Les matières premières expansibles. Aperçu sur la sélection des matières premières et les essais. *Rapport BRGM 70 RME 028 VDM.*

BROWN G. (1961).- The X ray identification and cristal structures of clays minerals. *Mineralogical Society.*

CONLEY J.E., WILSON H., KLINEFELTER T.A. (1948).- Production of lightweignt Concrete Aggregate from clays, Shales, Slates and others Materials. *U. S. Bureau of Mines Rept. Invest.*, n° 4401, 121 p.

CUBAUD J.C., MURAT M. (1968).- Fabrication industrielle de l'argile expansée. *Silicates Industriels*, n° 5, 4 fig., 1 tab. dans le texte.

DEMANDER (1969 août).- L'argile expansée, ses propriétés, son traitement, ses emplois. *Rapport BRGM, 69 SGL 190.*

DENNERT H.V. (1966 nov.).- *Ziegelindustrie, Dtsch*, n° 22, p. 827-833.

EHLERS E.G. (1958).- The mechanism of lightweight Aggregate formation. *Am. Ceram. Soc. Bull.*, vol. 37, n° 2, p. 95-99, 4 fig., 3 tab. dans le texte.

FONTES J.Ch., FRITZ P., GAUTHIER J., KULBICKI G. (1967 déc.).- Minéraux argileux, éléments traces et composition isotopiques dans les formations gypsifères de l'Eocène supérieur et de l'Oligocène de Cormeilles en Parisis. *Bull. Centre Recherche Pau - S. N. P. A.*, vol. 1, n° 2, p. 315-366, 9 fig. et 2 tab. dans le texte.

GILARD P. (1947).- Les études des composés siliceux, t. II, p. 11-18.

GUENNELON R., SOUTY N. (1969 nov.).- L'utilisation de la fluorescence X en Pédologie, *C. R. Monaco*, p. 38-45, SIEMENS revue.

JAVET C. (1967).- L'argile expansée, *Rapport B. R. G. M., D. S. 67 B 68.*

JAVET C. (1971).- Les argiles, matières premières pour l'industrie, la construction et les travaux publics. *Rapport B. R. G. M. 71 SGN 381 GTC.*

JOUENNE C.A. (1960).- Importance de la grosseur des grains en Céramique. Céramique générale, notions de physico-chimique, t. II, ch. 1, p. 114-124, Gauthier Villard éd.

KAINARSKI S., GAADU A.N. (1967 mars).- *Ziegelindustrie,* n° 20.

KARIAKINE L.I. (1956).- Edition de la Construction Industrielle, U. R. S. S.

KECHICHIANE T.N., KITCRIGORODSKI I.I. (1953).- Edition de la construction industrielle, U. R. S. S.

POMEROL Ch., FEUGUEUR L. (1968).- Guide géologique régional, Bassin de Paris, Masson éd.

RILEY C.M. (1951 avril).- Relation of chemical Properties of the bloating of clays. *Jour. Amer. Ceram. Soc.*, vol. 34, p. 121-128, 4 fig. et 3 tab. dans le texte.

SOLOVIEVA O.V. (1966).- Argile expansée et cuite. *Matériaux de Construction,* p. 17-26, Moscou.

STAMBOLIEV H. (1961 déc.).- *Jour. Amer. Ceram. Soc.*, vol. 40, n° 4, p. 257.

WILSON H.S. (1954).- *Brit. Clay.*, p. 377-378.

PLANCHE I : GRANULES OBTENUS AVEC L'ARGILE AP 9

Les éprouvettes ont tous été photographiés au grossissement 1

Photos 1 à 6 : ARGILE AP 9 SANS AJOUT DE COKE

La vitrification est excellente. L'expansion maximale pour le granule n° 1 une densité de 0,61.
Le granule n° 6 présente une anomalie due à son positionnement dans le four. Une partie seulement est vitrifiée.

Photos 7 à 12 : ARGILE AP 9 AVEC 1 % DE COKE

7 - Vitrification du granule 01-1 à 1 150°C, pendant 5 minutes, densité 0,69.

10 - Granule 01-5. Anomalie de surface.

11 - Granule 01-6. Granule cassé, montre la répartition des vacuoles à l'intérieur. La croûte est plus dense vacuolaire. Température 1 200°C ; temps de cuisson 5 minutes ; densité voisine de 0,65.

Photos 13 à 18 : ARGILE AP 9 avec 3 % de COKE

14 - Granule 02-1. Vitrification supérieure. Vacuoles isolées en surface.

15 - Granule 02-2. Température 1 200°C ; temps 10 minutes ; densité 0,66. Il faudrait le refroidir par trempe d'huile et non pas l'on refroidissait dans le four.

16 - Granule 02-3. Température 1 200°C ; temps 5 minutes ; densité 0,67. Vacuoles un peu grosses, expansion importante et brusque.

18 - Granule de contrôle. Fissuré, expansé et vitrifié. Les points blancs représentent les grains de sable qui évitent que le granule se colle à la coupelle.

PLANCHE I : GRANULES OBTENUS AVEC L'ARGILE AE 9

Les échantillons ont tous été photographiés au grossissement 1

Photos 1 à 6 : ARGILE AE 9 SANS AUCUN AJOUT DE COKE

La vitrification est excellente, l'expansion satisfaisante donne pour le granule n° 4 une densité de 0,61.
Le granule n° 6 présente une anomalie due à son mauvais positionnement dans le four. Une partie seulement est vitrifiée.

Photos 7 à 11 : ARGILE AE 9 AVEC 1 % DE COKE

7 - Vitrification du granule 91-1 dès 1 150°C, pendant 5 minutes, densité 0,60.

10 - Granule 91-5. Anomalie de cuisson.

11 - Granule 91-6 Granule cassé, montre la répartition des vacuoles à l'intérieur. La croûte est elle-même vacuolaire. Température 1 200°C ; temps de cuisson 5 minutes ; densité voisine de 0,65.

Photos 12 à 16 : ARGILE AE 9 avec 2 % DE COKE

12 - Granule 92-1. Vitrification superficielle. Vacuoles éclatées en surface.

13 - Granule 92-2. Température 1 150°C ; temps 10 minutes ; densité 1,12. Il indique la taille des granules d'argile crue que l'on introduisait dans le four.

15 - Granule 92-5. Température 1 200°C ; temps 5 minutes ; densité 0,67. Vacuoles un peu grandes, expansion importante et brusque.

16 - Granule de contrôle. Bien, expansé et vitrifié. Les points blancs représentent les grains de sable qui évitent que le granule ne colle à la coupelle.

Planche I.

1

2

3

4

5

6

7

8

9

10

11

12

13

14

15

16

PLANCHE II : GRANULES OBTENUS AVEC L'ARGILE AE 2

Les photographies 1 à 8 sont faites au grossissement 2
Les suivantes représentent leur taille normale

Photo 1 : ARGILE AE 2 AVEC LE SEUL AJOUT DE 3 % DE COKE

Granule 23-1. Aucun phénomène de vitrification. Aspect rugueux et fendillé d'une argile à brique, cuite.

Photos 2 et 3 : ARGILE AE 2 AVEC AJOUT DE POTASSIUM ET MAGNESIUM

Granule 24-1, 24-3. Totalement fondus. Quelques vacuoles sur le granule 24-1, mais le centre reste compact.

Photos 4 à 8 : ARGILE AE 2 AVEC AJOUT DE POTASSIUM, MAGNESIUM ET 10 % DE SILICE

7 - Le granule 25-7, montre une parfaite expansion avec des vacuoles réparties dans toute la masse. Densité 0,85.

Photos 9 à 14 : ARGILE AE 2 ET 10 % DE SILICE

9 - Granule 23 e présente une anomalie de cuisson.

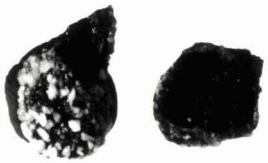
12 - Granule 23 g montre des vacuoles grandes. Echantillon fragile.

13 et 14 - Granule de production. Bonne expansion et vitrification.

Planche II.

1

2

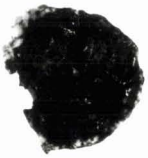


3

4

5

6



7

8

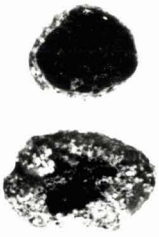
9

10

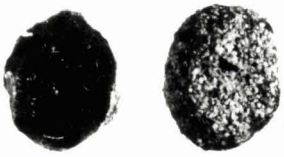
11

12

13



14



BIBLIOTHÈQUE

PLANCHE III : SECTION DE QUELQUES GRANULES

Les photographies de ces sections sont au grossissement 2

Photos 1 à 7 : ARGILE AE 9 + 3 % DE COKE

1 - Granule 93-5. Vacuoles forment une pellicule superficielle. Masse centrale peu ou pas expansée. Densité 1,03 ; température 1150°C ; temps 5 minutes.

2 - Granule 93-6. Densité 0,94. Vacuoles mieux réparties.

3 - Granule 93-8. Densité 0,67 ; température 1200°C ; temps 4 minutes. Grandes vacuoles. Expansion excellente.

4-5 - Granules 93-11 et 93-13 présentent une mauvaise vacuolisation. Expansion modeste et surtout mal répartie.

6-7 - Granules de production présentent une expansion et une excellente répartition des vacuoles assez petites.

Photos 8 à 12 : ARGILE AE 2 + 10 % SiO_2

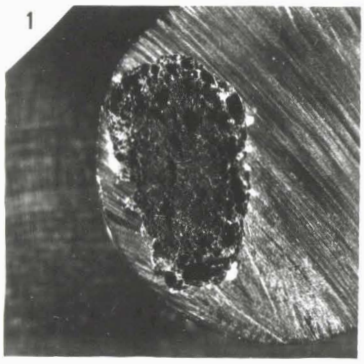
8 - Granule 23 c. Montre une croûte épaisse mais expansion à l'intérieur satisfaisante.

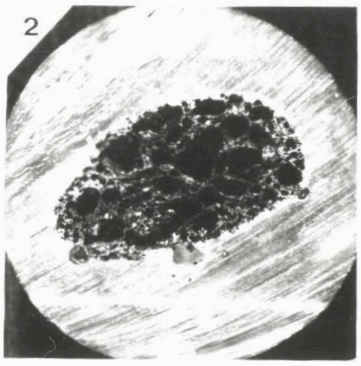
9 - Granule 23 b. Température 1200°C ; temps 8 minutes ; densité 1,30.

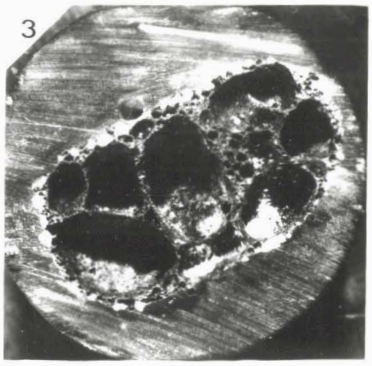
10 - Granule 23 d. Densité 0,95. Il subsiste une zone moins expansée.

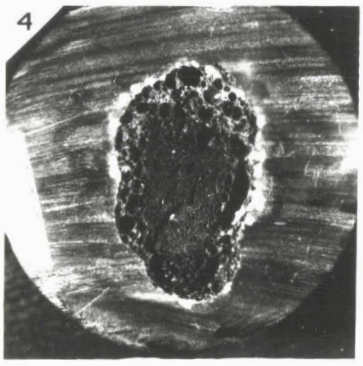
11-12 - Granule de production. Expansion pour le granule 12. Grandes vacuoles.

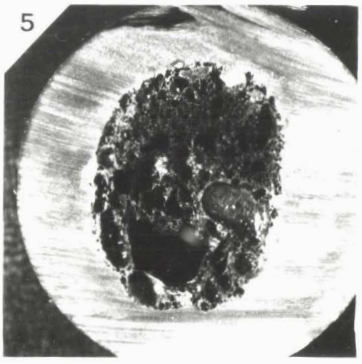
Planche III.

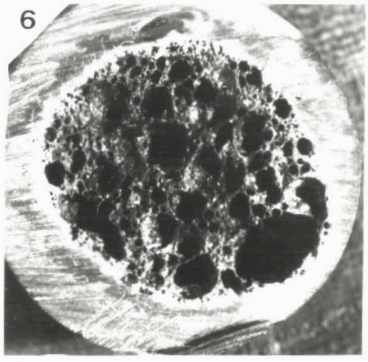

1

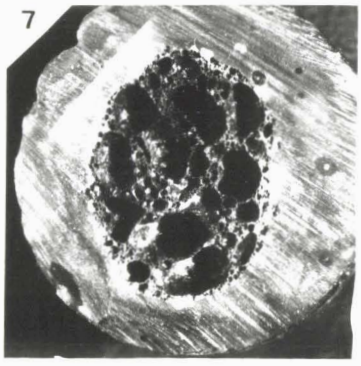

2

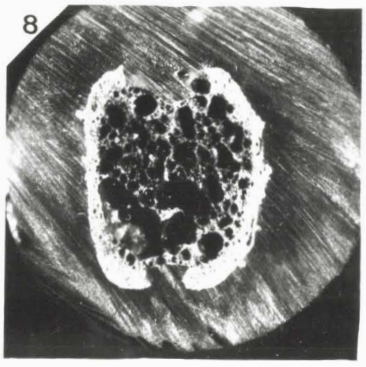

3

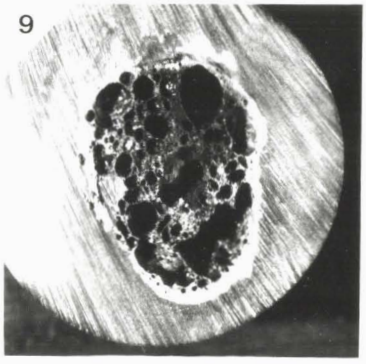

4

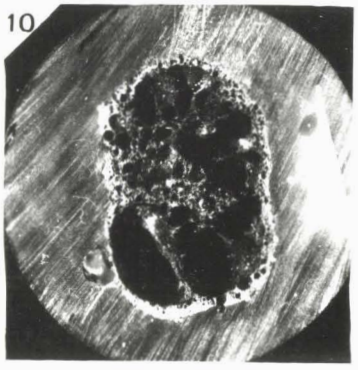

5

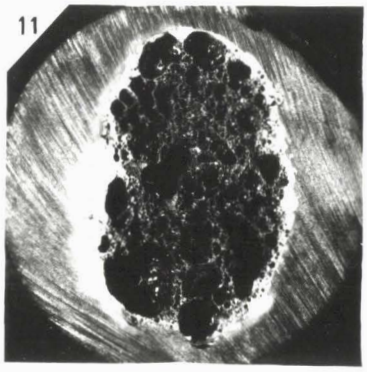

6

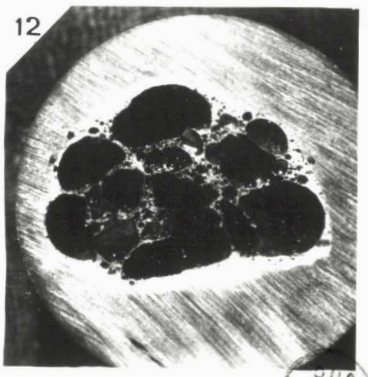

7


8


9


10


11


12

BUS LILLE

PLANCHE IV : GRANULES OBTENUS AVEC L'ARGILE AE 9

Photographie des granules à l'échelle 1

Photos 1 à 6 : ARGILE AE 9 ET 4 % K_2O

1 - Granule 3. Température 1200°C ; temps 5 minutes. Début de vitrificati

2-3 - Granules 4 et 5. Expansion à partir d'une cassure. Evolution du phénomène à la température de 1200°C ; temps 6 et 10 minutes.

4 - Granule 6. Montre deux grandes vacuoles.

5-6 - Granules totalement vitrifié. Température 1260°C ; temps 5 et 10 minutes ; densité 0,77.

Photos 7 à 14 : ARGILE AE 9 ET 3 % DE COKE

7 - Granule 93-1. Argile simplement cuite. Permet la comparaison avec les granules normalement expansés.

8-9 - Granules 93-2, 93-3. Brisés lors de la récupération.

10 - Granule 93-6. Température 1160°C ; temps 8minutes. Granule très vitrifié. Expansion faible.

11-12 - Granules 93-9 et 93-14. Température 1200°C ; temps 5 minutes. Vitrification bonne. Expansion moyenne.

13-14 - Granule de production, grosse et petite taille. Température 1200°C ; temps 5 minutes.

Planche IV.

1

2

3

4

5

6

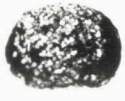
7

8

9

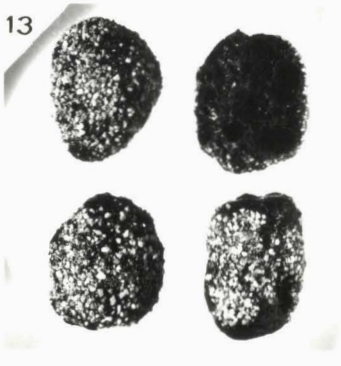
10

11

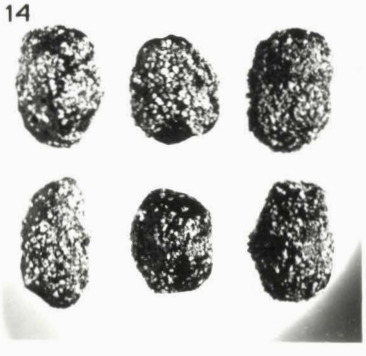


12

13



14



BUS LILLE