



HAL
open science

VALORISATION DES SEDIMENTS FLUVIAUX POLLUES APRES INERTAGE DANS LA BRIQUE CUITE

Mazen Samara

► **To cite this version:**

Mazen Samara. VALORISATION DES SEDIMENTS FLUVIAUX POLLUES APRES INERTAGE DANS LA BRIQUE CUITE. Matériaux. Ecole Centrale de Lille, 2007. Français. NNT : 2007ECLI0019 . tel-00713676

HAL Id: tel-00713676

<https://theses.hal.science/tel-00713676v1>

Submitted on 2 Jul 2012

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Thèse

Valorisation des sédiments fluviaux pollués après inertage dans la brique cuite

Présentée devant
L'Ecole Centrale de Lille

Pour obtenir
le grade de docteur en génie civil

Ecole doctorale : Université des Sciences et Techniques de Lille

.....
Spécialité : Génie civil

Présentée et soutenue publiquement par

Mazen SAMARA

Le 04 décembre 2007

Jury

M. Jian Fu SHAO
Mme. Agnès JULLIEN
M. Ahmed LOUKILI
M. Guy DEPELSENAIRE
M. Christophe CHAPISEAU
M. Frédéric SKOCZYLAS
M. Zoubeir LAFHAJ

LML, Polytech'Lille-USTL
Directrice de recherche, LCPC
GeM, Ecole Centrale de Nantes
SOLVAY HSE, Bruxelles
Ingénieur, Briqueterie du Nord,
LML, Ecole Centrale de Lille
LML, Ecole Centrale de Lille

Président
Rapporteur
Rapporteur
Invité
Examineur
Directeur de thèse
Co-directeur de thèse

A mon père.....

Remerciements

Je souhaite remercier le directeur de cette thèse, M. Frédéric SKOZYLAS pour son soutien, pour la confiance qu'il a manifestée à mon égard durant cette thèse. La simplicité de son contact a largement contribué à rendre ces trois années agréables.

Mes plus sincères remerciements vont également à M. Zoubeir LAFHAJ co-directeur de cette thèse pour son soutien, ses conseils et critiques constructives et pour m'avoir encouragé tout en me laissant une grande liberté.

Je souhaite exprimer ma reconnaissance à Mme Agnès JULLIEN et à M. Ahmed LOUKILI qui ont accepté d'être les rapporteurs de cette thèse et pour l'intérêt qu'ils ont porté à mon travail. Je les en remercie, de même que pour leur participation au Jury.

Merci également aux autres membres du jury qui ont accepté de juger ce travail : M. Jian-Fu SHAO, et en particulier M. Guy DEPENSENAIRE pour son ouverture d'esprit, sa confiance et M. Christophe CHAPISEAU pour sa bienveillance et sa disponibilité.

Je remercie tous mes amis pour leur soutien, leurs suggestions, leurs encouragements et leur assistance aussi bien matérielle que morale qui m'ont permis de faire cette thèse dans de bonnes conditions, et je leur en suis très reconnaissant. Je pense ici en particulier à Franck AGOSTINI, Pierre Yves SKORDIA, Bassem ALI, Laurent LÉCONTE, Thierry DUBOIS, Alain LEBLANC, Nadine DESSEYN et Catherine DAVY.

Je passe ensuite une dédicace spéciale à tous les jeunes chercheurs que j'ai eu le plaisir de côtoyer durant ces quelques années, à savoir Jaouad NADAH, Fethi SOLTANI, Flore BRUE, Yixuan HAN, Wei CHEN et Xiaoting CHEN.

Je remercie mon épouse Roula pour sa présence à mes côtés, pour ses relectures attentives, son écoute et son soutien.

J'adresse ma gratitude à ma famille et ma belle famille pour leur soutien et leurs encouragements.

Mazen

Résumé

L'accumulation des sédiments en couches successives au fond des cours d'eau conduit à leur envasement. Le curage constitue ainsi une opération de d'entretien indispensable à la navigation et à la restauration du milieu naturel. Une grande quantité de ces sédiments est contaminée par des polluants organiques et inorganiques. Leur gestion soulève donc des défis technologiques, économiques et environnementaux de plus en plus importants. C'est dans ce contexte que la société Solvay a mis au point le procédé de traitement Novosol[®] qui se décompose en deux phases : l'immobilisation des métaux lourds par phosphatation et la destruction de la matière organique par calcination ($T \geq 650^{\circ}\text{C}$). La présente étude porte sur la valorisation des sédiments fluviaux pollués, après traitement avec le procédé Novosol[®], dans la brique cuite. Le sédiment traité est composé majoritairement de quartz, de calcite et d'hématite. Sa masse volumique absolue est de $2,66 \text{ g.cm}^{-3}$ comparable à celle du quartz. De plus, la présence d'hématite dans le sédiment traité est encourageante pour l'utilisation de ce dernier dans la production des briques cuite car le fer peut faire baisser la température de fusion des autres minéraux. L'étude expérimentale menée en laboratoire a montré la faisabilité d'incorporation des sédiments fluviaux traités dans la production des briques cuites comme un matériau de substitution au sable et à l'argile. Il a également été montré que la résistance à la compression est influencée par la quantité de sédiment dans le mélange. En effet, une augmentation de taux de substitution entraîne une diminution de la résistance à la compression. Ceci est lié aux propriétés non plastiques du sédiment traité ce qui rend la pâte de brique moins cohésive et plus poreuse. Deux essais industriels ont été réalisés à l'usine de Templeuve en se basant sur les résultats obtenus en laboratoire. Ils ont montré que les sédiments fluviaux traités peuvent se substituer au sable et à l'argile avec des taux de substitution allant jusque 28% sans aucun changement de processus de fabrication. Les briques produites avec 28% de sédiment traité ont une résistance mécaniques et au gel supérieure à celle de la brique standard de Templeuve. En fin, il a été également montré que la granulométrie et la minéralogie du sédiment sont des facteurs déterminants qui influencent la qualité des briques produites.

Mots clés : sédiments fluviaux, pollution, phosphatation, calcination, valorisation, brique cuite, essais industriels

Abstract

The accumulation of sediments in successive layers at the bottom of rivers and channels leads to their silting-up. Thus, they must be dredged regularly to maintain normal river activity and to restore the natural environment. An important part of these sediments is actually polluted by organic (PAHs, PCBs, TBT) and inorganic (heavy metals) contaminants. Therefore, their management has become an environmental and economical concern for a large number of countries. Treatment processes permit a reduction in toxicity and volume of dredged material. Thus, raw sediments were subjected to a preliminary treatment using the Novosol® process developed and patented by the Solvay Company. It is based on the stabilization of heavy metals in the solid matrix by phosphatation and the destruction of organic matter by calcination ($T \geq 650^\circ\text{C}$). The objective of this study is to demonstrate the practical use of treated river sediments into brick production. Treated sediment is an odourless fine grained powder of a particle density of $2,66 \text{ g.cm}^{-3}$ (comparable to that of quartz). It is composed mainly of quartz with a marked presence of calcite and hematite. The granules making up the bulk material are generally angular to round in shape and composed mainly of agglomerates of fine sintered particles. The presence of hematite encourages the beneficial use of treated sediments in brick making, as iron is recognised to possess good fluxing properties. The laboratory experimental study has shown the feasibility of incorporation of treated river sediments in brick-making as a partial sand and clay substitute. The results of qualification tests (compressive strength, freeze and thaw resistance, water absorption) have shown that the substitution ratio has had an important impact on the quality of the brick. Increasing the sediment content resulted in a decrease of brick compressive strength and a decrease of its resistance to freezing and thawing. Subsequently, two factory proving experiments were carried out at the Briqueterie du Nord (BdN) to confirm their full-scale practical use as a brick raw material. They showed that treated river sediments can be used as sand and clay replacement with substitution rates up to 28% without any alteration of the manufacturing process. Bricks produced with 28% of treated sediment showed a higher compressive strength than the BdN standard ones. Finally, it was also shown that particle size and mineralogy of treated sediments are important factors which influence the quality of bricks.

Key words: river sediments, pollution, phosphatation, calcination, valorization, fired brick, industrial experiment

Sommaire

Introduction générale	1	
Chapitre I : Problématique des sédiments fluviaux pollués	4	
I.1	Introduction	4
I.2	Origines des sédiments	4
I.3	Composition minéralogique des sédiments	6
I.4	Contamination des sédiments	7
I.4.1	Les métaux lourds	7
I.4.2	Les polluants organiques	8
I.5	Le dragage	8
I.5.1	Problématique de dragage	8
I.5.2	Impact sur l'environnement	9
I.5.3	Réglementations	9
I.6	Traitement des sédiments pollués	11
I.6.1	Prétraitement	11
I.6.2	Traitement biologique	12
I.6.3	Traitement physico-chimique	13
I.6.4	Traitement par inertage	13
I.7	Le procédé Novosol®	15
I.8	La valorisation des sédiments fluviaux traités	18
I.9	Conclusion	18
Chapitre II : Caractérisation des sédiments fluviaux pollués avant et après traitement	20	
II.1	Introduction	21
II.2	Caractérisation du matériau brut	21
II.2.1	Caractérisation environnementale	21
II.2.1.1	Teneur en métaux lourds	21
II.2.1.2	Essais de lixiviation	23
II.2.2	Caractérisation physico-chimique	25
II.3	Caractérisation du matériau traité	27
II.3.1	DRX	27
II.3.2	Observation visuelle et binoculaire	28
II.3.3	Observation MEB (Microscope Electronique à Balayage)	29
II.3.4	Granulométrie laser	29
II.3.5	Surface spécifique	31
II.3.6	Granulométrie sur colonne	32
II.3.7	Limites d'Atterberg	33

II.3.8	Teneur en eau optimale (Essai Proctor)	34
II.3.9	Valeur au bleu	36
II.3.10	Absorption d'eau, Porosité accessible à l'eau, Masse volumique	37
II.3.11	Détermination de la teneur en matière organique par perte au feu	38
II.4	Conclusion	39
Chapitre III : Industrie de la terre cuite / matières premières et techniques de fabrication		41
III.1	Industrie française de la terre cuite	42
III.2	Position de l'industrie Française en Europe	43
III.3	Généralités sur les matières premières	43
III.3.1	Les argiles	44
III.3.1.1	Définition et origines des argiles	44
III.3.1.2	Composition minéralogique	44
III.3.1.3	Principaux minéraux argileux et leurs propriétés	44
III.3.2	Eléments dégraissants	49
III.3.3	Eléments porosants	50
III.4	Techniques de fabrication	51
III.4.1	Préparation de la pâte	51
III.4.2	Façonnage	52
III.4.3	Séchage	52
III.4.4	Cuisson	53
III.5	Influence de la température sur les constituants	54
III.6	Cas des Briqueteries du Nord	55
Chapitre IV : Valorisation des sédiments fluviaux pollués après inertage dans la brique cuite : étude en laboratoire		58
IV.1	Introduction	59
IV.2	Protocole scientifique	60
IV.2.1	Préparation des échantillons	60
IV.2.1.1	Etude granulométrique des mélanges	61
IV.2.1.2	Etude de plasticité des mélanges	64
IV.2.1.3	Façonnage des échantillons de brique en laboratoire	68
IV.2.1.4	Séchage des échantillons de brique	69
IV.2.1.5	Cuisson des échantillons de brique	70
IV.2.2	Tests de qualification des briques produites en laboratoire	70
IV.2.2.1	Porosité	70
IV.2.2.2	Absorption d'eau	73
IV.2.2.3	Masse volumique apparente	74
IV.2.2.4	Résistance à la compression	76
IV.2.2.5	Résistance au gel-dégel	79

IV.2.2.6	Efflorescence	81
IV.2.2.7	Eclatement	83
IV.2.2.8	Dilatation conventionnelle à humidité	84
IV.2.2.9	Tests de lixiviation	85
IV.2.2.10	Conclusion	87
IV.3	Etude complémentaire sur l'influence de la température de cuisson et de la granulométrie de la brique pour l'optimum de 35%	88
IV.3.1	Influence de la granulométrie sur la plasticité du mélange	89
IV.3.2	Etude du retrait	90
IV.3.3	Etude de la porosité	93
IV.3.4	Etude de l'absorption d'eau	95
IV.3.5	Etude de la masse volumique	95
IV.4	Conclusion	96
Chapitre V	Valorisation des sédiments fluviaux pollués après inertage dans la brique cuite : Essais industriels	98
V.1	Introduction	99
V.2	Premier essai industriel (15% de sédiment traité)	99
V.2.1	Matériaux et méthodes	99
V.2.2	Tests de qualification des briques produites à l'échelle industrielle et contenant 15 % de sédiment traité	103
V.2.3	Présence des particules et des taches blanches sur le produit final	107
V.3	Deuxième essai industriel (27% de sédiment traité)	108
V.3.1	Matériaux et méthodes	109
V.3.2	Tests de qualification des briques produites à l'échelle industrielle et contenant 27 % de sédiment traité	110
V.4	Conclusion sur les essais industriels	113
	Conclusion générale	115
	Références bibliographiques	119
	Annexes	128

Liste des figures

Fig. 1-1	Formation des sédiments	6
Fig. 1-2	Impact des sédiments pollués sur l'environnement	8
Fig. 1-3	Le procédé Novosol [®]	15
Fig. 1-4	Pilote mobile Novosol [®] : (A) unité de phosphatation, (B) unité de calcination	17
Fig. 2-1	Région Nord de la France représentée en bleu (59)	21
Fig. 2-2	Lixiviation à l'eau : a) L'ensemble (liquide + solide) ; b) Agitateur à plateau ; c) Plasma à couplage inductif (ICP : Inductively Coupled Plasma) ; d) Centrifugeuse ; e) pH-mètre	23
Fig. 2-3	Diagramme triangulaire de classification des sédiments en fonction de leur granulométrie [Campy et Meybeck, 1995]	26
Fig. 2-4	Observation visuelle et binoculaire [Scordia, 2007] du sédiment fluvial traité	28
Fig. 2-5	Distribution granulométrique du sédiment fluvial traité (Lille) et de l'argile de Templeuve (Lille)	30
Fig. 2-6	Distribution des tailles de particules pour le sédiment traité et l'argile de Templeuve	30
Fig. 2-7	Isotherme d'adsorption-désorption d'un échantillon de sédiment traité et d'argile	31
Fig. 2-8	Courbes granulométriques du sédiment traité avant et après malaxage et du sable de Templeuve utilisé pour la production des briques	33
Fig. 2-9	Variations de la masse volumique sèche en fonction de la teneur en eau.	35
Fig. 2-10	Le four rotatif avec le système de circulation d'air	39
Fig. 3-1	Images MEB des principaux minéraux argileux [Houseknecht and Pittman, 1992 ; Bjorlykke, 1989]	46
Fig. 3-2	Processus de production de brique en terre cuite	51
Fig. 3-3	Processus de production de brique à la BdN	56
Fig. 4-1	Composition de la brique utilisée actuellement à la BdN	60
Fig. 4-2	Répartition des grains pour la compacité maximale [Jouenne, 1984]	61
Fig. 4-3	Diagramme de Winkler	62
Fig. 4-4	Analyse granulométrique des mélanges (mélangés à la main)	63
Fig. 4-5	Analyse granulométrique des mélanges après malaxage au malaxeur à lame Z.	63
Fig. 4-6	L'indice de plasticité et les limites d'Atterberg pour les quatre mélanges	65
Fig. 4-7	Influence de sédiment traité sur la surface spécifique du mélange	66
Fig. 4-8	Influence de sédiment traité sur le volume adsorbé	67
Fig. 4-9	Variation de la teneur en eau après façonnage en fonction	68

	de la quantité de sédiment ajoutée	
Fig. 4-10	Préparation en laboratoire des échantillons de brique	69
Fig. 4-11	Programme de séchage des briques	69
Fig. 4-12	Programme de cuisson des briques (four tunnel)	70
Fig. 4-13	a) La pompe à vide ; b) Dispositif pour la pesée hydrostatique	72
Fig. 4-14	Porosité ouverte à l'eau des quatre formulations de briques	72
Fig. 4-15	Coefficient d'absorption d'eau	73
Fig. 4-16	Densité des quatre formulations de briques	75
Fig. 4-17	Photos MEB des échantillons de : F ₀ , F ₂₅ , F ₃₅ et F ₄₅	75
Fig. 4-18	Test de compression simple (uni axiale)	76
Fig. 4-19	Effet de la proportion des sédiments sur la résistance à la compression (MPa)	76
Fig. 4-20	Relation entre la résistance à la compression et la densité [Ziegel Industrie Jahrbuch].	77
Fig. 4-21	Analyse MEB de la structure de la brique contenant de sédiment traité	79
Fig. 4-22	Relation entre la résistance au gel et le rayon médian des pores (Sveda).	81
Fig. 4-23	Influence des sédiments sur la dilatation thermique de la brique	85
Fig. 4-24	Variation du retrait en fonction de la granulométrie du mélange et de la température de cuisson des briques	90
Fig. 4-25	Présence de la phase vitreuse à 985°C dans : F ₀ , F _{35-Fin} et F _{35-Gros}	91
Fig. 4-26	Diffractogrammes de : a) F _{35-Gros} ; b) F _{35-Fin} ; c) F ₀	93
Fig. 4-27	Influence de la granulométrie du mélange et de la température de cuisson sur la porosité de la brique.	94
Fig. 4-28	Influence de la granulométrie et de la température de cuisson sur le coefficient d'absorption d'eau	95
Fig. 4-29	Influence de la granulométrie et de la température de cuisson sur la masse volumique apparente	96
Fig. 5-1	Briques 22x22 produites avec 15% de sédiment fluvial traité	103
Fig. 5-2	Préparation des échantillons et réalisation du test de porosité	104
Fig. 5-3	1 ^{er} essai industriel : Test de porosité ouverte à l'eau	104
Fig. 5-4	1 ^{er} essai industriel : Test d'absorption d'eau	104
Fig. 5-5	Distribution granulométrique de sédiment traité utilisé dans les deux mélanges (A et B) du 2 ^e essai industriel	109
Fig. 5-6	2 ^e essai industriel : Test de porosité ouverte à l'eau	111
Fig. 5-7	2 ^e essai industriel : Test d'absorption d'eau	111
Fig. A-1	Influence de sédiment traité sur la surface des micropores	130
Fig. A-2	Influence de sédiment traité sur le volume des micropores	131
Fig. B-1	Au cours du frittage les surfaces solide/solide augmentent	133

	et les surfaces solide/vapeur diminuent afin de minimiser l'énergie de surface du système	
Fig. B-2	Formation du pont, entre deux grains sphériques de même taille, par diffusion de la matière	134
Fig. C-1	Spectre de l'objet 1 (gypse)	135
Fig. C-2	Spectre de l'objet 3 (barytine)	136
Fig. C-3	Cartographie (MEB) de la zone autour du grain de calcaire	137

Liste des tableaux

Tableau 1-1	Principaux minéraux composants les sédiments d'eau	6
-------------	--	---

	douce [Hakanson et Jansson, 1983 ; Ramade, 1998]	
Tableau 1-2	Devenir des sédiments dragués [Agence de l'Eau, 2002]	9
Tableau 1-3	Niveaux de référence pour les métaux lourds et les polychlorobiphényles (mg/kg de la masse sèche)	11
Tableau 1-4	Traitement biologique des sédiments pollués [Agostini, 2006]	12
Tableau 1-5	Les différentes techniques d'extraction des contaminants [Agostini, 2006]	13
Tableau 1-6	Les techniques d'inertage [Agostini, 2006]	14
Tableau 2-1	Comparaison des concentrations totales en éléments traces des sédiments de Lille, bruts et traités, aux niveaux Geode N1 et N2.	22
Tableau 2-2	Test de lixiviation réalisé sur les sédiments de Lille (bruts, phosphatés et phosphatés et calcinés) selon la norme française en mg/kg de la masse sèche	24
Tableau 2-3	Test de TCLP : les concentrations des métaux lourds dans les lixiviats sont en mg/kg de la masse sèche	25
Tableau 2-4	Caractérisation physico-chimique des sédiments fluviaux bruts [Kribi, 2005 ; Boucard, 2006]	27
Tableau 2-5	Composition de la fraction argileuse de sédiment de Lille	28
Tableau 2-6	Diamètre médian des particules < 80µm de sédiment traité et de l'argile de Templeuve obtenus par granulométrie laser (µm)	31
Tableau 2-7	Surface spécifique BET de : sédiment fluvial phosphaté, phosphaté et calciné (traité) et argile de Templeuve	32
Tableau 2-8	Limite de liquidité du sédiment traité de Lille	34
Tableau 2-9	Résultats de l'essai Proctor normal effectué sur les sédiments fluviaux traités de Lille et de Dampremy (région Charleroi-Bruxelles)	36
Tableau 2-10	Valeur au bleu du sédiment de Lille (0/2mm)	37
Tableau 2-11	Les valeurs de perte au feu (PAF) du sédiment fluvial traité de Lille et de l'argile naturelle de Templeuve (région Nord-Pas-de Calais)	39
Tableau 3-1	Production française de terre cuite en 2005 [FFTB]	42
Tableau 3-2	Répartition de la production française de briques en 2005 [FFTB]	42
Tableau 3-3	Répartition de la production française de briques de structure en 2005 [FFTB]	43
Tableau 3-4	Comparaison des ventes européennes [Kornmann, 2005]	43
Tableau 3-5	La composition chimique de la kaolinite, de l'illite et des roches argileuses [Alvise, 1987]	46
Tableau 3-6	Surface spécifique des particules argileuses en m ² /g [Eslinger & Peaver, 1988].	47
Tableau 3-7	Limites d'Atterberg et indice de plasticité de certains minéraux argileux [Cornell, 1951]	47
Tableau 3-8	Les principales argiles utilisées dans la production des	48

	produits de terre cuite en France [Kornmann, 2005]	
Tableau 3-9	Les principales conséquences liées à la minéralogie de l'argile [Kornmann, 2005]	49
Tableau 3-10	L'effet des dégraissants sur les propriétés des produits en terre cuite	50
Tableau 3-11	Les défauts liés au séchage	53
Tableau 3-12	Température de cuisson de différents produits en terre cuite [Kornmann, 2005]	54
Tableau 3-13	Composition minéralogique et distribution granulométrique du sable et de l'argile de Templeuve	55
Tableau 4-1	Teneurs en métaux lourds des déchets utilisés dans la production de briques cuites, en mg/kg de la masse sèche.	59
Tableau 4-2	Les 4 mélanges adaptés pour la préparation des échantillons de brique (% de la matière sèche)	60
Tableau 4-3	Comparaison granulométrique des quatre mélanges F ₀ , F ₂₅ , F ₃₅ , et F ₄₅ (%)	64
Tableau 4-4	Densités apparentes de divers tessons de terre cuite et porosités associées ($\rho_s = 2.5 \text{ g/cm}^3$).	74
Tableau 4-5	Perte de masse de la brique après 25 cycles de gel-dégel (%)	80
Tableau 4-6	Les sulfates les plus fréquents et qui provoquent des efflorescences [Kornmann, 2005]	82
Tableau 4-7	Test d'efflorescence	83
Tableau 4-8	Test d'éclatement	84
Tableau 4-9	Test de lixiviation réalisé sur des échantillons de brique selon la norme française en mg/kg de la masse sèche	86
Tableau 4-10	Valeurs de TCLP en mg/kg de la masse sèche	87
Tableau 4-11	Composition et distribution granulométrique des mélanges préparés	88
Tableau 4-12	Distributions granulométriques des sédiments traités G1, G2 et de l'argile de Templeuve.	88
Tableau 4-13	Influence de la granulométrie sur la plasticité de la pâte	90
Tableau 5-1	Caractérisation physico-chimique du sédiment fluvial traité de Dampremy	101
Tableau 5-2	Composition de la brique standard de Templeuve et celle du premier essai industriel	102
Tableau 5-3	Distribution granulométrique du sable de Templeuve et du Rhein (utilisés comme dégraissant à la BdN)	102
Tableau 5-4	Résultats du test de retrait	103
Tableau 5-5	Valeurs moyennes de la résistance à la compression en MPa	105
Tableau 5-6	Perte de masse (%) des échantillons de brique suite à 50 cycles de gel-dégel	106
Tableau 5-7	Test de lixiviation réalisé sur des échantillons de brique selon la norme française en mg/kg de la masse sèche	107
Tableau 5-8	Valeurs de TCLP en mg/kg de la masse sèche	107

Tableau 5-9	Résultats du test de retrait du 2 ^e essai industriel	110
Tableau 5-10	Valeurs moyennes de la résistance à la compression en MPa	111
Tableau 5-11	Perte de masse (%) des échantillons de brique du mélange A suite à 40 cycles de gel-dégel	112
Tableau 5-12	Perte de masse (%) des échantillons de brique du mélange B suite à 40 cycles de gel-dégel	112
Tableau 5-13	Valeurs de TCLP en mg/kg de la masse sèche	113

Liste des photos

Photo 2-1	Grains de sédiment fluvial : Formes et tailles variables	29
Photo 2-2	Agglomération des grains de plus petite taille ($\approx 1 \mu\text{m}$) [source : Scordia, 2007]	29
Photo 2-3	Détermination de la limite de liquidité avec l'appareil de Casagrande	34
Photo 2-4	Humidification	35
Photo 2-5	Mise en moule	35
Photo 2-6	Schéma d'application des coups	35
Photo 2-7	Les gouttes centrales entourées d'une zone humide teintée.	37
Photo 4-1	Gel-dégel	80
Photo 4-2	Test d'efflorescence	82
Photo 4-3	Test d'éclatement	83
Photo 4-4	Les échantillons après le séchage et la cuisson : a) les échantillons après le séchage. b) les particules blanches de calcaire sur les échantillons de $F_{35\text{-Gros}}$. c) le four électrique programmable utilisé pour la cuisson des brique. d) les échantillons après la cuisson : F (fin), G (grossier) et S (sans sédiment) désignent $F_{35\text{-Fin}}$, $F_{35\text{-Gros}}$ et F_0 . e) les particules de calcaire sur les échantillons de $F_{35\text{-Gros}}$ après la cuisson.	89
Photo 5-1	Le site de Dampremy	100
Photo 5-2	Le site de Dampremy	100
Photo 5-3	Présence des tâches blanches sur la surface des briques cuites	108
Photo 5-4	Présence de la calcite dans le sédiment traité	108
Photo 5-5	Présence des tâches blanches sur les briques du mélange B: a) avant cuisson ; b) après cuisson	110
Photo D-1	Présence des taches blanches à la surface des briques	

Introduction générale

Le territoire français compte 525 000 km de cours d'eau qui transportent chaque année, en moyenne 6 millions de m³ de sédiments dont une grande partie est fortement polluée [Bertheau, 1993].

La contamination des sédiments est liée aux activités industrielles et urbaines qui au cours du dernier siècle ont introduit une multitude de toxiques inorganiques (métaux lourds) et organiques (hydrocarbures, HAP, PCB...) dans les eaux polluant ainsi la faune et la flore.

L'accumulation des sédiments en couches successives conduit à l'envasement des cours d'eau. Le curage constitue donc une opération de restauration et d'entretien indispensables au rétablissement du tirant d'eau pour la navigation, et aussi à la restauration du milieu naturel.

Selon l'étude recommandée par le Ministère de l'Aménagement du Territoire et de l'Environnement (MATE) sur l'historique des opérations de curage d'entretien des sédiments continentaux en France, le coût de ces opérations est de 26 millions d'euros par an pour 2.8 M m³ de sédiments [Agence de l'Eau, 2002]. Les principaux devenir de ces sédiments sont la mise en dépôt, la remise en suspension le réemploi, qui concerne leur utilisation dans le domaine de génie civil (comblement, sous couche routière, ...) et le régalage le long des berges. La mise en décharge monopolise un espace de plus en plus rare et entraîne la pollution de l'air et de l'eau. De plus, ces activités sont strictement contrôlées par les réglementations mises en place pour définir les seuils réglementaires qui s'appliquent aux sédiments dragués et permet de décider du devenir de ces matériaux.

L'étude menée dans le cadre de cette thèse par le Laboratoire de Génie Civil porte sur la valorisation des sédiments fluviaux traités par le procédé Novosol® dans les matériaux de terre cuite, et plus spécifiquement, les briques cuites. Nous avons cherché à comprendre les mécanismes mis en jeu lors de l'introduction de sédiments traités en substitution du sable et de l'argile naturelle actuellement utilisés dans la production des matériaux de terre cuite.

Le premier chapitre présente la problématique des sédiments fluviaux ainsi que les difficultés liées au dragage, aux quantités mises en jeu et à la pollution des matériaux dragués. Les principales réglementations en vigueur sont exposées ainsi que les avantages et les inconvénients des principales techniques de traitement et de valorisation. Enfin, le procédé de traitement Novosol[®] utilisé dans cette étude est présenté.

Le deuxième chapitre s'intéresse à la caractérisation des sédiments fluviaux traités par le procédé Novosol[®]. Afin de connaître les propriétés de ce nouveau matériau une caractérisation chimique et minéralogique a été réalisée, puis les propriétés physiques (à l'échelle microscopique et macroscopique) ont été déterminées.

Le troisième chapitre est consacré à l'industrie française de la terre cuite, à la position de cette industrie en Europe et aux principales techniques de fabrication de briques. Les principales caractéristiques des argiles françaises sont présentées ainsi que celles de l'argile de Templeuve (Nord de France) utilisée pour la préparation des échantillons de brique. L'action de la température sur les constituants est détaillée.

Le quatrième chapitre porte sur la présentation et l'interprétation des résultats d'une campagne expérimentale menée au laboratoire de génie civil de l'Ecole Centrale de Lille sur la valorisation des sédiments traités qui substituent une partie du sable et de l'argile actuellement utilisés dans la fabrication des briques en terre cuite. L'évolution des caractéristiques physiques et mécaniques telles que la porosité, l'absorption d'eau, la masse volumique et la résistance à la compression, a été étudiée en fonction de différents paramètres de formulation comme le taux de substitution, la granulométrie de substitution ou la température de cuisson.

Enfin, le cinquième chapitre détaille les deux essais industriels effectués en partenariat avec la Briqueterie du Nord (BdN). Les résultats obtenus dans ces essais seront commentés et analysés. Le passage à l'échelle industrielle est conditionné par le processus de préparation de la pâte. En effet, la préparation de la pâte est une phase cruciale dans le processus de production des briques. La composition de la pâte dépend en partie du procédé de fabrication et des qualités souhaitées pour le produit fini. Une base plastique est indispensable pour les objets façonnés par voie humide, par conséquent l'argile demeure le composant principal de la plupart des produits en terre cuite.

Chapitre 1

Problématique des sédiments fluviaux pollués

I.1. Introduction

Le territoire français compte 525000 km de cours d'eau qui transportent chaque année, en moyenne 6 millions de m³ de sédiments dont une grande partie est fortement polluée [Berteau, 1993]. Leur dépôt provoque l'envasement de ces cours d'eau, des canaux, et des plans d'eau.

Ce phénomène est accentué par les faibles débits, les processus d'érosion, ainsi que par les rejets industriels et urbains. Par conséquent les cours d'eau ne peuvent plus fonctionner correctement car les capacités d'écoulement se réduisent entraînant des risques d'inondation avec l'envasement progressif du lit (fig1-1).

De plus la présence de polluants issus des industries, d'agriculture intensive et des eaux urbaines dans les sédiments aggrave la situation.

I.2. Origines des sédiments

La sédimentation est un phénomène naturel, dont l'amplification quantitative est progressivement devenue problématique d'autant plus qu'une altération de la qualité des sédiments est souvent suspectée, voire observée.

Le sédiment est un dépôt de matériaux détritiques minéraux et organiques. Ces dépôts sont d'origine :

- Soit allochtone quant ils sont issus de l'érosion du bassin versant, de ruissellement des fleuves, des effluents ou de l'atmosphère.
- Soit autochtone quand ils sont formés par la précipitation des composés minéraux et organique [Ramade, 1998].

Les processus physico-chimiques de floculation, agrégation et de décantation participent aussi à l'accumulation des sédiments sur le fond. Un sédiment se caractérise essentiellement par : sa composition minéralogique, sa granulométrie, et sa teneur en eau et en matière organique.

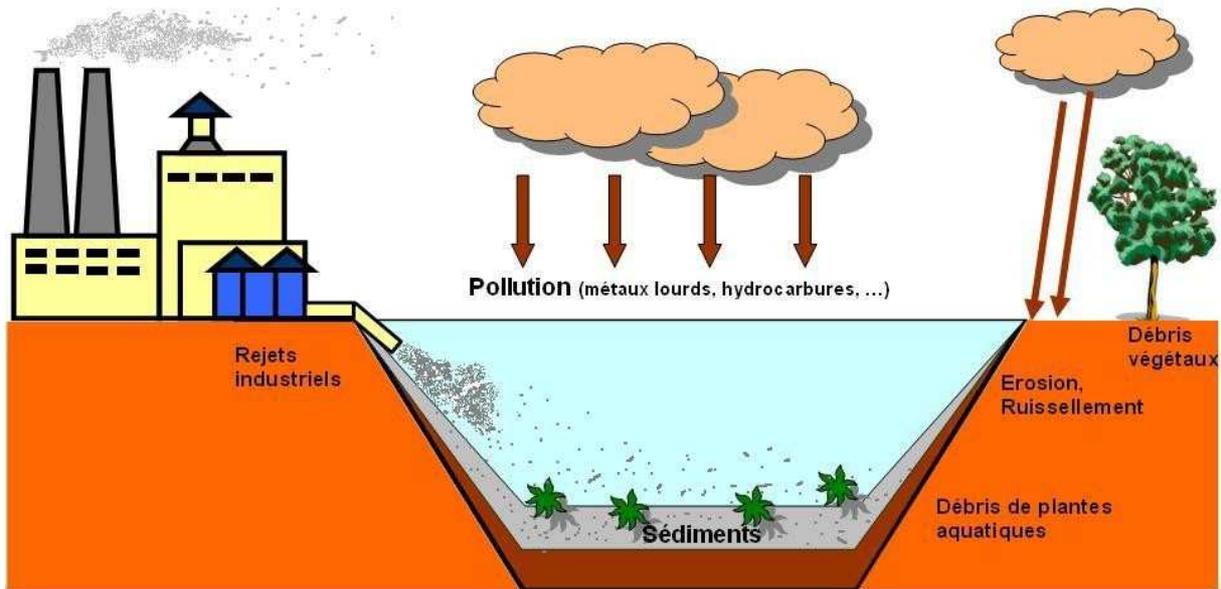


Fig. 1-1 : Formation des sédiments

I.3. Composition minéralogique des sédiments

Le sédiment est une matrice relativement hétérogène constituée d'eau, de matériaux inorganiques et organiques [Power *et al.*; 1992]. Les composés inorganiques sont les argiles, les carbonates et les silicates dont la taille varie de 0.1 μm jusqu'à plusieurs mm [Sigg *et al.*; 1992]. L'activité humaine peut influencer cette composition naturelle. Le **tableau 1-1** présente les principaux minéraux constituant les sédiments d'eau douce.

Tableau 1-1

Principaux minéraux composants les sédiments d'eau douce [Hakanson et Jansson, 1983 ; Ramade, 1998]

MINÉRAUX	DÉNOMINATION	FORMULE CHIMIQUE
SILICATES	Quartz (Silice)	SiO_2
	Mica	$\text{K}(\text{Mg, Fe, Al})_3\text{AlSi}_3\text{O}_{10}(\text{OH})$
	Feldspath	$(\text{Na, Ca, K})\text{AlSi}_3\text{O}_8$
	Amphibole	$(\text{Ca, Mg, Fe, Al})_3\text{Si}_4\text{O}_{11}(\text{OH})$
	Pyroxène	$(\text{Ca, Mg, Fe})_2\text{Si}_2\text{O}_6$
ARGILES	Illite	$\text{KMgAl}_2\text{Si}_3\text{O}_{10}(\text{OH})_2$
	Smectite (Montmorillonite)	$\text{XmgAlSi}_3\text{O}_{10}(\text{OH})_2$
	Chlorite	$\text{Mg}_5\text{Al}_2\text{Si}_3\text{O}_{10}(\text{OH})_8$
	Kaolinite	$\text{Al}_3\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4$
CARBONATES	Calcite	CaCO_3
	Dolomite	$\text{CaMg}(\text{CO}_3)_2$
	Sidérite	FeCO_3
HYDROXYDES de FER	Goethite	FeOOH
	Magnétite	Fe_3O_4
PHOSPHATES	Apatite	$\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3(\text{OH, F})$
	Vivianite	$\text{Fe}_3(\text{PO}_4)_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$
SULFURES	Pyrite	FeS_2

I.4. Contamination des sédiments

Les sédiments constituent un réservoir naturel des contaminants (fig. 1-2). Leur matrice complexe possède de multiples possibilités d'association avec les contaminants présents dans l'environnement [Förstner, 1989 ; Calmano et *al.*, 1996 ; Chapman et *al.*, 1998]. Ces contaminants sont d'origine naturelle ou anthropique (métaux issus des industries minières et métallurgiques, produits organiques issus des industries agro-alimentaires et des rejets industriels domestiques ou urbains). Ils sont généralement classés en deux grands groupes.

I.4.1. Les métaux lourds

Les métaux, naturellement présents dans l'écorce terrestre, proviennent généralement de l'altération et de l'érosion des roches. Cependant des activités anthropogéniques particulières (métallurgie, galvanoplastie, production de teinture, industrie du textile) sont la source principale de la contamination des sédiments dans les cours d'eau par les métaux lourds.

Les principaux métaux lourds sont le cadmium, le chrome (Cr), le cuivre (Cu), le plomb (Pb), le mercure (Hg), le nickel (Ni), le sélénium (Se), l'arsenic (As) et le cadmium (Cd). Ils peuvent se fixer sur les sédiments par adsorption physique (liaison électrostatique), ou par adsorption chimique (liaison par force de valence). Ils peuvent également précipiter sous forme d'oxydes, d'hydroxydes de carbonates, de phosphates solubles ou de sulfures insolubles ou former des complexes organiques ou inorganiques. Ils existent sous différentes formes chimiques dans les sédiments :

- Forme bio-disponible : métaux dissous, métaux échangeables. Ils sont relativement disponibles pour les organismes vivants.
- Formes potentiellement bio-disponibles : carbonates métalliques, oxydes et hydroxydes métalliques, métaux adsorbés sur ou emprisonnés dans les oxydes de fer.
- Formes non bio-disponibles : métaux emprisonnés dans la structure cristalline des argiles.

Les métaux lourds dans les sédiments sont en général en équilibre avec l'eau interstitielle, mais la moindre perturbation des conditions environnementales peut entraîner des mécanismes de remobilisation des métaux. Ce relargage est d'autant plus problématique que les métaux lourds sont considérés comme dangereux pour les organismes vivants, par toxicité à court, moyen ou long terme.

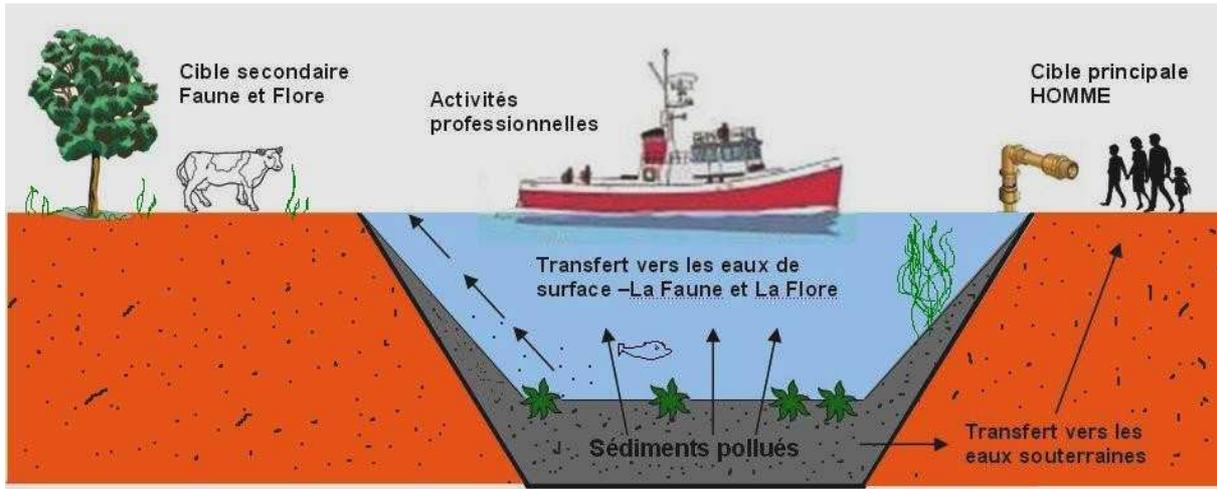


Fig. 1-2 : Impact des sédiments pollués sur l'environnement

1.4.2. Les polluants organiques

Les principaux composés organiques sont les hydrocarbures aliphatiques, les hydrocarbures monocycliques, les hydrocarbures aromatiques polycycliques (*HAPs* : présents à de fortes concentrations dans les sédiments proches des zones industrielles et des plateformes pétrolières) et les pesticides organochlorés (*PCBs*). Ils sont souvent très toxiques, solubles ou adsorbés sur les matières en suspension et peuvent présenter des risques lors de l'extraction des matériaux de curage.

1.5. Le dragage

1.5.1. Problématique de dragage

Le curage constitue une opération de restauration, d'entretien voire d'assainissement indispensable à la prévention des risques d'inondation, au rétablissement du tirant d'eau pour la navigation ainsi que lors de certains travaux d'aménagement et aussi à la restauration du milieu naturel.

En France, les besoins en curage d'entretien permettant d'assurer la navigabilité et l'écoulement normal des eaux sont évalués à 9 millions de m³ par an. Selon une enquête réalisée par le Service de la Navigation Nord-Pas de Calais sur les eaux intérieures (cours d'eau, étangs, lac, etc.) hors domaine maritime, environ 6 millions de m³ sont extraits tous les ans [AEAP, 2000]. Le déficit est donc de 3 millions de m³ et concerne majoritairement les cours d'eau non navigués [Bogusz et al., 1999]. Selon l'étude recommandée par le Ministère de l'Aménagement du Territoire et de l'Environnement (MATE) [Agence de l'Eau, 2002] sur l'historique des opérations de curage d'entretien des sédiments continentaux en France, le coût de ces opérations est de 26 millions d'euros par an pour 2.8 M m³ de sédiments. Les principaux devenir de ces sédiments sont la mise en dépôt, la remise en suspension le réemploi (utilisation dans le domaine de génie civil : comblement, sous couche routière) et le régalaie le long des berges (cf. **tableau 1-2**).

Tableau 1-2*Devenir des sédiments dragués [Agence de l'Eau, 2002]*

Devenir des sédiments curés	Volume curé
Mise en dépôt	38 %
Remise en suspension	39.5 %
Réemploi des sédiments	24 %
Régalaie le long des berges	13 %
Epannage en champ	2 %
Mise en décharge	1 %
traitement	3 %

1.5.2. Impact sur l'environnement

Le dragage remanie les sédiments et modifie les équilibres géochimiques. La remobilisation des contaminants, au cours des opérations de dragage, peut nuire à la qualité physico-chimique de l'eau et donc à l'écosystème. Même si l'impact d'un dragage peut paraître local et temporaire, les risques d'eutrophisation dus à une turbidité excessive et la présence de conditions hydrauliques (courant) défavorables peuvent étendre ses effets bien au-delà de la zone concernée. Entre autre, la recolonisation par la végétation d'une zone draguée peut prendre plusieurs années et la remise en suspension de sédiments peut aboutir à la création de zones d'accumulation (potentiellement contaminées) en aval de la zone de dragage. Ainsi, le dragage peut engendrer une augmentation de la turbidité, une augmentation de la concentration de matières en suspension, la dispersion d'éléments nutritifs ou polluants, une baisse de la teneur en oxygène dissous un enfouissement de la faune, et une migration des polluants. En effet, la solution la plus communément employée pour se débarrasser des sédiments marins dragués était le relargage en mer. Plusieurs centaines de millions de mètre cubes de sédiments côtiers sont dragués et immergés chaque année dans le monde [Pinet, 1999].

Actuellement les sédiments dragués représentent de 80 à 90% (en volume) de tous les matériaux d'origine anthropique immergés dans les océans du globe.

1.5.3. Réglementations

La réglementation des sédiments fluviaux (continentaux) est basée sur une note juridique du Ministère de l'Ecologie et du Développement Durable [MEDD, 2002] sur la gestion des sédiments extraits de cours d'eau et des canaux.

Selon la notion définie à l'article L 541-1 [Legifrance] du code de l'environnement, les sédiments extraits des cours d'eau sont, dans de nombreux cas, considérés comme des déchets. Le décret n°2002-540 du 18 avril 2002 [Aida] classe les sédiments sous la rubrique 17 05 05* boue de dragage contenant des substances dangereuses. L'astérisque qui suit le code indique qu'il s'agit d'un déchet dangereux. Un déchet est considéré dangereux s'il possède au moins un des 14 critères de dangerosité définis à l'annexe I du décret du 18 avril 2002. Aucune méthode claire n'existe aujourd'hui pour pouvoir caractériser l'écotoxicité

d'un déchet. Dans le cas des sédiments, le critère H14, relatif à l'écotoxicité du déchet, peut être adapté pour savoir si un déchet est dangereux ou non.

En l'absence de valeurs guides, les acteurs de la gestion des sédiments comme par exemple les Voies Navigables de France (VNF), ont établi leurs propres seuils de caractérisation des sédiments continentaux, qui permettent de définir 3 catégories de sédiments selon leurs teneurs en polluants:

- Catégorie 1 (en dessous de seuil 1): aucune restriction dans le devenir des matériaux de dragage.
- Catégorie 2 (entre seuil 1 et seuil 2) : les produits de dragage peuvent être valorisés et stockés, seul le régalage sur des terres agricoles est à proscrire.
- Catégorie 3 (au-dessus de seuil 2) : des études complémentaires sont nécessaires pour la sensibilité du milieu aux substances concernées.

Le seuil 1 correspond aux valeurs limites « sol » définies dans l'arrêté de 8 janvier 1998 applicables aux épandages des boues, issues du traitement des eaux usées, sur les terres agricoles. Les valeurs du seuil 2 sont comprises entre les valeurs limites « sol » et « boues » du même arrêté. En France le Groupe d'Etude et d'Observation sur les Dragages et l'Environnement (GEODE) a proposé des valeurs guides pour les métaux lourds et les PCB (polychlorobiphényles) relatives au dragage et immersion [Alzieu, 1999]. Cette réglementation a été complétée par la circulaire de 14 juin 2000 relative aux niveaux de référence à prendre en compte lors d'une analyse des sédiments marins ou estuariens en milieu naturel ou portuaire. Elle a été publiée dans le Journal Officiel le 10 août 2000 [Aida]. Ce texte, en accord avec les lignes directrices de la convention de Paris du 22 septembre 1992 (OSPAR) qui régit l'immersion des matériaux de dragage en mer, fixe des seuils de contamination à partir desquels doit être appréciée l'incidence de l'opération sur le milieu. Le **tableau 1-3** indique les seuils de contamination utilisés pour évaluer l'incidence de l'opération sur le milieu. Au-dessous de niveau N1, l'impact potentiel est jugé neutre ou négligeable. Entre le niveau N1 et le niveau N2, une investigation complémentaire peut s'avérer nécessaire en fonction de degré de dépassement du niveau N1. Au-dessus de niveau N2, une investigation complémentaire est nécessaire pour évaluer la sensibilité du milieu aux substances concernées. On peut conclure que la réglementation française ne répond pas aux problèmes liés à la toxicité des produits de curage et à leur devenir, mis à part les seuils de mise en décharge Géode.

Tableau 1-3

Niveaux de référence pour les métaux lourds et les polychlorobiphényles (mg/kg de la masse sèche)

	Niveau N1	Niveau N2
Métaux lourds		
As	25	50
Cd	1.2	2.4
Cr	90	180
Cu	45	90
Hg	0.4	0.8
Pb	100	200
Ni	37	74
Zn	276	552
Polychlorobiphényles		
CB 28	0.025	0.050
CB 52	0.025	0.050
CB 101	0.050	0.100
CB 118	0.025	0.050
CB 138	0.050	0.100
CB 153	0.050	0.100
CB 180	0.025	0.050
ΣPCB	0.5	1

I.6. Traitement des sédiments pollués

Lorsque les sédiments sont trop pollués, leur gestion soulève des défis technologiques, économiques, juridiques et environnementaux de plus en plus importants. Les solutions traditionnelles de mise en dépôt ou la mise en suspension ne sont plus applicables car ces méthodes sont une voie de transfert des contaminants vers l'écosystème. Face à ce problème, les acteurs de la gestion des sédiments se sont tournés vers les procédés de traitement. Le traitement des sédiments pollués est une préoccupation majeure, en raison d'une part, de l'impact de cette pollution sur l'environnement et la santé, liée notamment à la propagation des molécules dangereuses dans le milieu et leur transfert dans les nappes phréatiques et dans la chaîne alimentaire, et d'autre part des coûts exorbitants engendrés par les techniques utilisées. Il existe plusieurs types de traitement issus de la technologie du traitement des sols pollués [IN VIVO 2002 ; Alzieu 1999 ; Gardner 2004 ; Mulligan 2001]. Ils permettent de rendre aux sédiments des teneurs en polluants acceptables pour une éventuelle réutilisation.

I.6.1. Prétraitement

Le prétraitement a pour but de réduire le volume des sédiments pour améliorer leur qualité ou faciliter un traitement ultérieur, favoriser ou accélérer la sédimentation des parties solides, réduire la teneur en eau (jusqu'à 50%) afin de faciliter le transport, séparer les matériaux valorisables de ceux à mettre en dépôt. Plusieurs techniques de prétraitement sont actuellement utilisées comme la séparation (attrition, bassin de séparation, coagulation/floculation, criblage, hydrocyclone, séparateur magnétique électrostatique et électrodynamique) et la déshydratation (consolidation sous vide, bassin de décantation, centrifugeuse, évaporateur, filtre presse et filtre bande).

I.6.2. Traitement biologique

Il s'agit des techniques qui exploitent les propriétés d'un organisme vivant (microorganisme, plantes). Elles sont regroupées dans deux catégories principales : les techniques de bioremédiation et de phytoremédiation.

Les techniques de bioremédiation utilisent les propriétés dépolluantes de microorganismes (des bactéries essentiellement, mais également des champignons) pour dégrader les substances organiques ou pour accélérer la décomposition naturelle des contaminants organiques (huiles et HAP). Les techniques de phytoremédiation exploitent les propriétés de certaines espèces végétales (strates herbacées, plantes, arbustes, arbres, algues) pour bloquer, extraire, accumuler, transformer ou détruire un polluant. Deux techniques sont actuellement utilisées : la phytoextraction et la phytostabilisation. La phytoextraction consiste à extraire les métaux du sol par l'utilisation de plantes accumulatrices qu'il faut ensuite éliminer. La technique de phytostabilisation consiste à immobiliser les métaux dans le sol à l'aide de végétaux spécifiques et ainsi empêcher toute dispersion de la pollution (érosion éolienne ou percolation). L'efficacité de procédés biologiques est conditionnée par la température, l'humidité, la présence de nutriments et d'oxygène, ainsi que le degré de contamination des sédiments. Les avantages et les limites de chaque méthode sont donnés dans le **tableau 1-4**.

Tableau 1-4

Traitement biologique des sédiments pollués [Agostini, 2006]

Les traitements biologiques			
In situ		Hors site	
Points forts	Points faibles	Points forts	Points faibles
<ul style="list-style-type: none"> Extraction d'une gamme variée de polluants Solution environnementale 	<ul style="list-style-type: none"> Application sur le terrain plus complexe Aléas du terrain : composition et propriétés du terrain Conditions climatiques (les fluctuations saisonnières affectent le métabolisme des microorganismes et la vie des plantes) Teneur en oxygène dissous Difficulté pour contrôler la réaction et les effets secondaires Odeurs Durée (plusieurs années) Peu de connaissance sur les effets à long terme Efficacité : contaminants : 50-80% 	<ul style="list-style-type: none"> Contrôle des paramètres (pH, éléments nutritifs, sels solubles) Efficacité 	<ul style="list-style-type: none"> Possibilités d'émissions Nécessité d'instruments de contrôle et de main d'œuvre qualifiée Coût : 60-100 €/tms Efficacité : Huiles 43% Nécessité de grandes superficies. Nécessité de remanier le sol régulièrement.

I.6.3. Traitement physico-chimique

Ce type de traitement s'appuie sur des interactions physico-chimiques (adsorption/désorption, oxydation/réduction, échange ionique) pour extraire, détruire, transformer ou immobiliser les contaminants. L'extraction enlève les contaminants sans détruire ou modifier leur structure chimique par dissolution dans un liquide qui est ensuite récupéré et traité. Plusieurs paramètres peuvent influencer les performances de ces procédés comme la nature et la concentration des polluants, la granulométrie des sédiments et la répartition des contaminants en fonction de cette granulométrie. Le **tableau 1-5** montre les avantages et les inconvénients des différentes techniques d'extraction des contaminants.

Tableau 1-5

Les différentes techniques d'extraction des contaminants [Agostini, 2006]

Technique d'extraction	Points forts	Points faibles
<p>Acide : Il s'agit de déposer les sédiments dans un bain d'acide et de les mélanger à un agent chélatant. Le tout est alors décanté et les sédiments sont alors lavés à l'eau.</p>	<ul style="list-style-type: none"> Extraction des métaux lourds 	<ul style="list-style-type: none"> Coûteux ($\approx 150 \text{ €/m}^3$) Peu recommandée si grandes teneurs en contaminants organiques Efficacité : 70%
<p>Sous vide</p>	<ul style="list-style-type: none"> Procédé d'extraction naturelle 	<ul style="list-style-type: none"> Coûteux ($\approx 150 \text{ €/m}^3$) Efficacité : 70%
<p>Lessivage : Utilisation d'eau et son action mécanique pour enlever les contaminants (PCB, dioxines, PAH, hydrocarbures) liés physiquement aux particules.</p>	<ul style="list-style-type: none"> Sédiments contaminés par des organiques Sédiments à grains fins Contrôle des émissions atmosphériques 	<ul style="list-style-type: none"> Coûteux ($\approx 120 \text{ €/m}^3$) Lent Lourd à mettre en œuvre
<p>Déchloration : Remplacement des atomes de chlore des composés dangereux par des métaux alcalins.</p>	<ul style="list-style-type: none"> PCB et autres contaminants chlorés 	<ul style="list-style-type: none"> Nécessité de contrôles Limité par la présence d'argiles Ne traite pas les inorganiques
<p>Flottation : Basée sur les différences de densité (les moins denses flottent à la surface et sont récupérées par écrémage) et le caractère hydrophobe et hydrophile des surfaces des solides.</p>	<ul style="list-style-type: none"> Technologie tirée de l'industrie minière Concentre des contaminants inorganiques (cuivre, zinc...) et des organiques (HAP, PCB...) Granulométrie de 0.2 à 0.005 mm Faibles besoins en énergie 	<ul style="list-style-type: none"> Agent de conditionnement parfois nécessaire Dépend de la granulométrie, peu efficace pour les argiles

I.6.4. Traitement par inertage

Il s'agit de fixer les contaminants dans la matrice solide de sédiment afin qu'ils ne soient plus mobiles. Des analyses à long terme sont donc nécessaires

pour assurer l'efficacité de ce type de traitement. Parmi les nombreuses techniques disponibles d'inertage on peut citer l'immobilisation et l'inertage thermique. Le **tableau 1-6** présentes les avantages et les inconvénients de ces techniques.

Tableau 1-6
Les techniques d'inertage [Agostini, 2006]

Les techniques d'inertage			
Immobilisation		Inertage thermique	
<ul style="list-style-type: none"> • Solidification et stabilisation : Ajout de liant minérale ou organique qui se lient aux métaux lourds diminuant ainsi leur mobilité. Les principaux réactifs utilisés sont les liants hydrauliques tels que les ciments, la chaux, le carbonate de calcium et les polymères. • Vitrification : Elle consiste à fondre les fractions argileuses contaminées à température supérieure à 1250°C et à les refroidir rapidement pour éviter la formation des structures cristallines non lessivables 		<ul style="list-style-type: none"> • Désorption thermique • Incinération • Pyrolyse • Réduction thermique • Oxydation humide • Lit fluidisé • Bain sur sels fondus 	
Points forts	Points faibles	Points forts	Points faibles
<ul style="list-style-type: none"> • Métaux lourds et hydrocarbures • Revalorisation possible : comme granulats pour la vitrification, et comme matériau de remplissage pour la solidification/stabilisation 	<ul style="list-style-type: none"> • Coût (surtout pour la vitrification : 90-130€/tms) 	<ul style="list-style-type: none"> • Possibilité de revalorisation des produits contaminés 	<ul style="list-style-type: none"> • coûteuse en énergie

Plusieurs techniques de dépollution sont alors disponibles, mais peu d'entre elles ont pu être transposées à grande échelle ([Mulligan 2001]) en raison de limitations techniques et économiques : sur le terrain, les techniques de traitement thermique et physico-chimique sont les plus répandues, tandis que les procédés de traitement biologique sont souvent considérés comme réservés à une catégorie restreinte de composés comme les hydrocarbures pétroliers légers ou adaptés à des conditions particulières. Cependant, la vitrification et l'incinération sont des techniques très efficaces mais au même temps très coûteuses car elles nécessitent un traitement des fumées, surtout pour les sédiments ayant un taux très élevé de polluants volatiles, et une réduction de taux d'humidité avant le traitement. L'utilisation de ces techniques peut engendrer une désagrégation des particules dans des proportions importantes, ce qui augmente la fraction fine et pénalise la décontamination. De plus, compte tenu de différents paramètres à contrôler (pH, taille des particules...), la technique de flottation implique souvent des études préliminaires [Vanthuyne, 2003]. Face à ces limitations techniques et économiques, l'entreprise Solvay a développé un procédé innovant pour l'inertage des sédiments pollués nommé le procédé Novosol® qui combine les techniques chimique et thermique.

1.7. Le procédé Novosol®

Le procédé Novosol® a été développé par la société Solvay pour le traitement des sols pollués, des résidus de broyage automobile et des sédiments de dragage. Ce procédé comporte deux étapes : le traitement chimique à l'acide phosphorique (phosphatation), le séchage convectif à l'air et la calcination des sédiments en conditions oxydantes (**fig.1-3**).

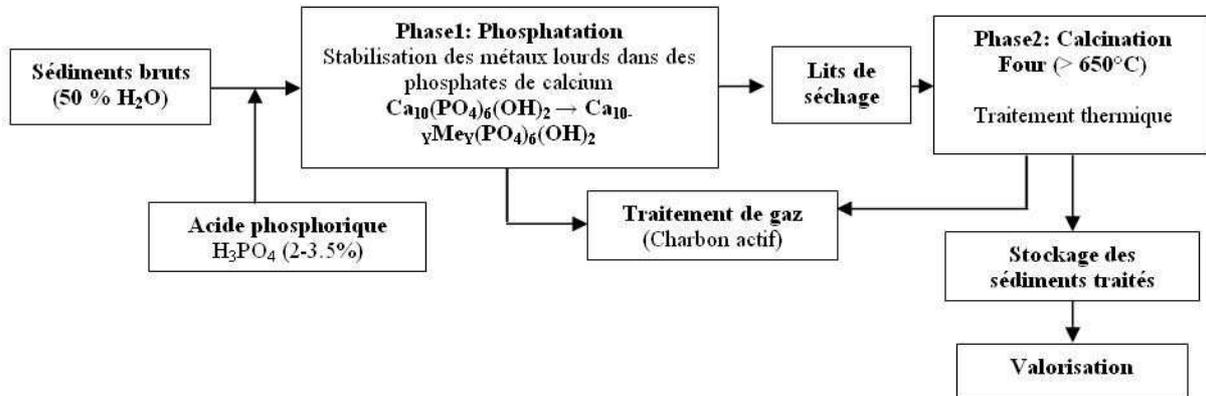


Fig. 1-3 : Le procédé Novosol®

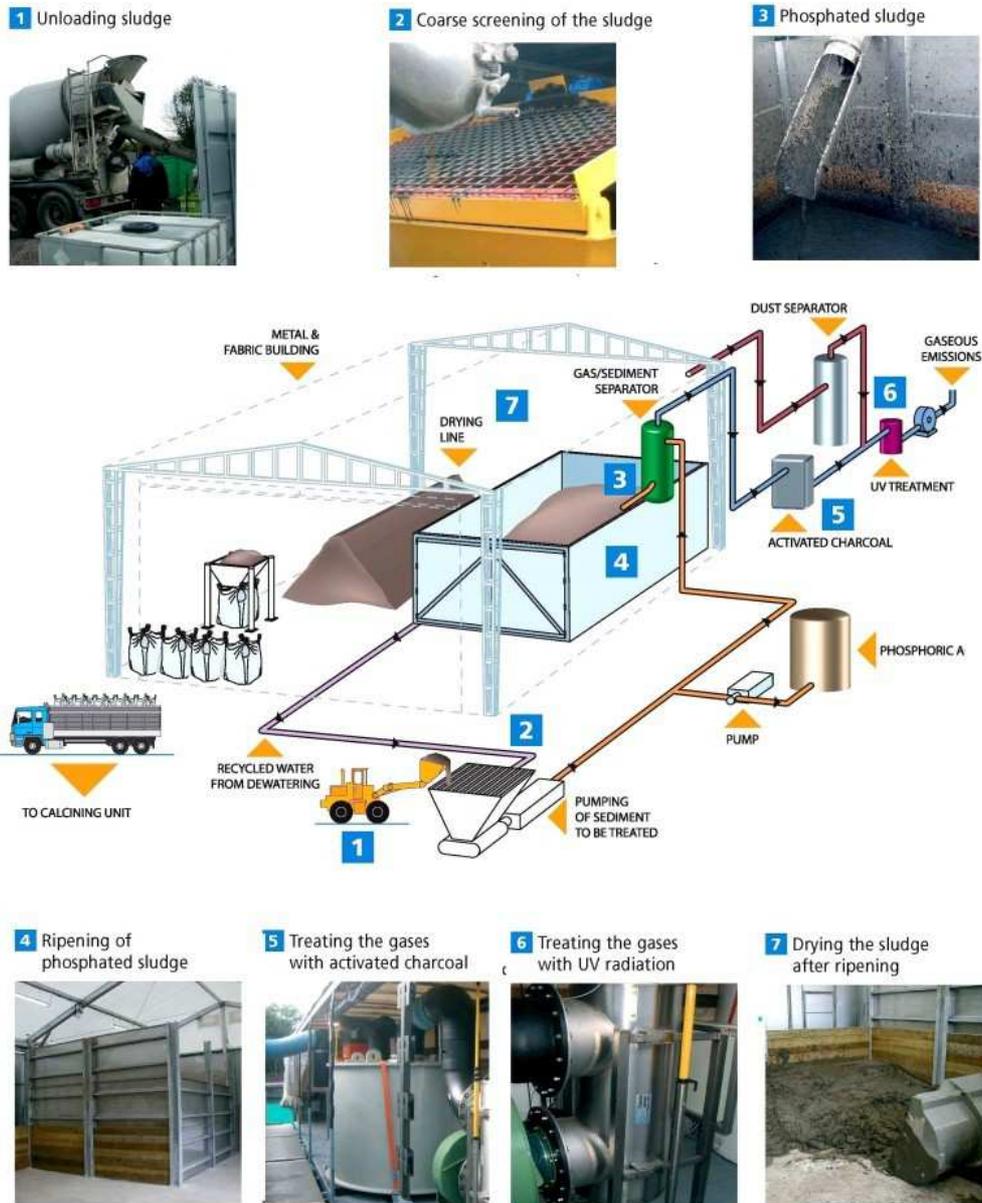
La **figure 1-4** présente le pilote mobile Novosol® avec ses deux unités, l'unité (A) de phosphatation et de séchage, et l'unité (B) de calcination. Ce pilote peut être mobilisé directement sur le site à traiter, ce qui réduit les coûts de transport des matériaux bruts et rend le traitement moins coûteux.

La phosphatation consiste en mélanger les sédiments bruts (teneur en eau \approx 50%) avec de l'acide phosphorique (2-3.5%) dans un réacteur tubulaire. L'objectif de cette phase est de former des phosphates calciques (de type apatitiques) de grande stabilité chimique et thermique [Kahalé, 2003]. L'utilisation des phosphates comme l'hydroxyapatite calcique $\text{Ca}_{10}(\text{PO}_4)_6(\text{OH})_2$, et l'acide phosphorique H_3PO_4 pour la stabilisation des métaux lourds dans les sols pollués, les cendres volantes et les sédiments de dragage a fait l'objet de nombreuses études. Dans certains cas ces phosphates ont été associés à d'autres composés comme la chaux (CaO) pour améliorer l'efficacité du traitement [Raicevic et al., 2005; Bournonville et al., 2004; Melamed et al., 2003; Piantone et al., 2003; Nzihou et al., 2002; Bournonville, 2002; Hettiarachchi, 2001; Seamam et al., 2001; Crannell et al., 2000; Boisson et al., 1999; Eighmy et al., 1998; Laperche et al., 1996]. La phosphatation conduit à un dégagement gazeux de CO_2 et H_2S qui engendre la formation de bulles au sein des sédiments. Cette formation de bulles génère pendant le séchage la formation de porosité.

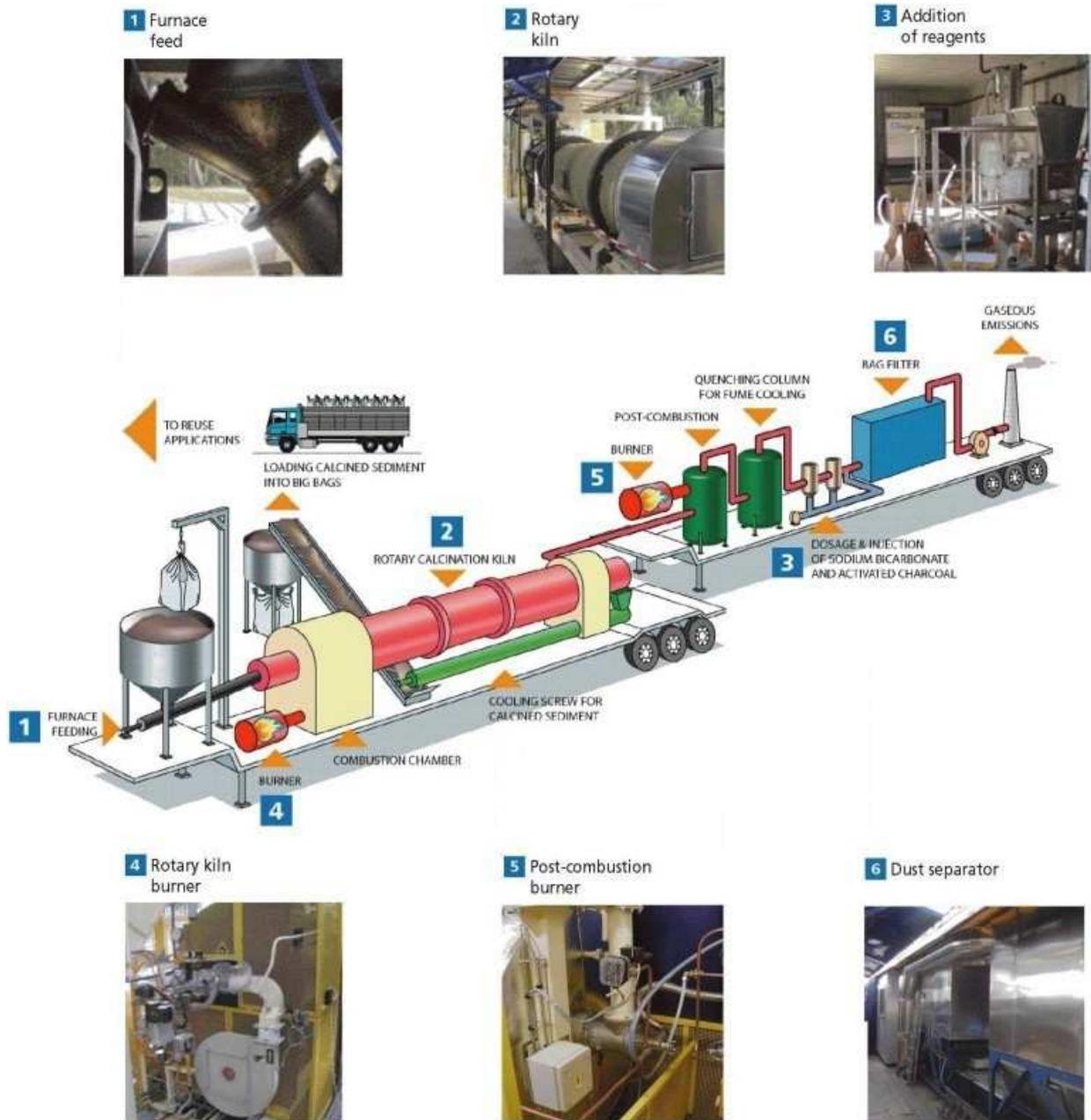
Le séchage et la maturation des sédiments se fait à l'air libre sur un lit de séchage puis sous forme d'andains. Cette technique combine l'évaporation naturelle et le drainage de l'eau vers le fond du lit à travers une couche filtrante de sable et de graviers. Cette étape est importante car elle permet l'élimination de l'excédent d'eau et la finalisation de la réaction de phosphatation.

La calcination consiste en calciner les sédiments sous atmosphère oxydante à des températures comprises entre 600 et 800°C dans un four rotatif. Elle permet la destruction de la matière organique, augmente la dureté du produit, réduit les volumes de matériaux traités et permet une meilleure stabilisation des

phosphates de calcium. La calcination permet également une cristallisation, voir un frittage des produits de la réaction de phosphatation.



(A) Unité de phosphatation



(B) Unité de calcination

Fig. 1-4 : Pilote mobile Novosol®: (A) unité de phosphatation, (B) unité de calcination

Les émissions gazeuses résultant du processus de traitement (essentiellement H₂S et CO₂ et des traces de métaux lourds) sont chimiquement traitées en utilisant le bicarbonate de sodium et le charbon actif (procédé Neutrec® d'épuration des fumées basé sur l'injection à sec, dans les fumées à épurer, de bicarbonate de sodium finement broyé) [Aubert, 2002]. Deux types de résidus solides sont produits par ce traitement : les cendres volantes (20 kg par tonne de sédiment) et des produits sodiques résiduels (PSR : 7-13 kg par tonne de sédiment) constitués majoritairement de chlorure de sodium, sulfate de sodium et carbonate de sodium. La composition chimique des cendres volantes est très complexe (basé sur des oxydes de métaux lourds). Ce résidu est chimiquement

stabilisé pour être en suite incorporé dans matériaux routiers. Les PSR sont chimiquement traités et filtrés où une saumure brute et un gâteau de filtration sont obtenus. La saumure est épurée et injectée dans la production de carbonate de sodium.

1.8. La valorisation des sédiments fluviaux

Les acteurs de la gestion des sédiments continentaux notent déjà un ralentissement du rythme de curage lié à la difficulté de gérer les sédiments pollués (diminution des espaces disponibles pour le stockage et la méfiance grandissante du public face à ce type d'alternatives, coût des procédés de traitement), ce qui peut engendrer au moyen terme des risques d'inondation, des perturbations de l'écosystème et des problèmes de navigation [Clozel, 2003]. Face à ces problèmes, les acteurs de la gestion des sédiments commencent à se tourner vers des voies possibles de valorisation. L'un des avantages du procédé de traitement Novosol[®] est que le matériau produit par ce procédé, contrairement aux autres techniques de traitement, n'est pas destiné à la mise en décharge mais à la valorisation. Il existe de nombreuses voies de valorisation : matériau de remplissage, de remblaiement, couche d'assise de chaussées, béton, brique. L'incorporation dans les produits de terre cuite et dans la céramique rouge est de nos jours une solution environnementale très prometteuse pour répondre au problème du devenir d'une grande variété de déchets solides. La variabilité naturelle des argiles et l'utilisation des techniques de traitement relativement simples facilitent la présence d'une quantité significative d'impuretés dans la structure finale du produit. L'étape de cuisson, fondamentale à la consolidation de produit final, permet la volatilisation des composés dangereux, le changement des structures chimiques et l'inertage des composés potentiellement toxiques et dangereux par la fixation de ces composés dans la phase vitreuse. D'autre part, cette voie de valorisation permettrait de répondre à un autre problème économique-environnemental actuel : l'appauvrissement des ressources naturelles. Il reste toutefois des limitations d'ordre technique comme le manque de connaissances sur le comportement à long terme notamment du produit traité.

1.9. Conclusion

Le curage régulier des cours d'eau est indispensable pour maintenir des activités normales maritimes et fluviales. Au cours des quinze années à venir, un volume de 3 millions m³ de sédiments fluviaux pollués doit être dragué dans le nord de la France. Ces sédiments contiennent des contaminants organiques (hydrocarbures aliphatiques, les hydrocarbures monocycliques, les HAP et les PCB) et inorganiques (métaux lourds) qui peuvent finir dans les sources d'eau polluant ainsi l'environnement. La pollution de ces sédiments est liée à l'histoire industrielle de la région, où certaines activités, comme les industries de sidérurgie, métallurgie des minerais non ferreux et secteurs d'énergie, demeurent polluantes. Puisque les lois internationales et européennes sont devenues plus rigoureuses, les sédiments doivent être traités en tant que déchets. Le dépôt en mer ne sera plus autorisé comme ceci endommage sérieusement la faune et la flore marine. Le stockage dans des installations confinées est une opération

couteuse qui exige des grands espaces et une surveillance à long terme et la mise en décharge n'est plus acceptée par l'opinion publique.

Par conséquent leur gestion est devenue un souci environnemental et économique pour un grand nombre de pays. L'opération de dragage et l'impact des matériaux dragués sur l'environnement ont été en grande partie étudiés. Le stockage dans des installations confinées exige des grands espaces et une surveillance à long terme et la mise en décharge n'est plus acceptée par l'opinion publique. Cependant, les processus de traitement permettent une réduction de la toxicité et du volume de matériau dragué, mais en comparaison avec le dépôt en mer, le coût de traitement n'est pas encore assez concurrentiel. Ceci souligne la nécessité de trouver des voies écologiques de valorisation pour que les processus de traitement soient économiquement abordables. Ainsi, les chercheurs ont commencé à étudier plusieurs alternatives pour incorporer des grandes quantités de sédiments dans les matériaux de construction, où les sédiments bruts devraient être traités avant d'être valorisés.

Chapitre 2

Caractérisation des sédiments
fluviaux pollués avant et après
traitement

II.1. INTRODUCTION

Un sédiment se caractérise essentiellement par sa composition minéralogique et sa granulométrie. Les sédiments qui font l'objet de ces travaux proviennent de la région Nord de la France (**fig.2-1**). Cette région est gestionnaire d'un grand nombre de cours d'eau (réseau fluvial de 680 km). Elle a une longue histoire industrielle. Cette histoire a laissé des traces dans les paysages et les sols de la région qui portent la marque de l'exploitation minière et de l'industrie carbochimique sidérurgique. Cette situation n'est pas l'apanage de la seule région Nord - Pas-de-Calais comme le montre l'inventaire national sur les sites et sols pollués qui comptait 896 sites en 1996 et quelques 3 789 sites actuellement. La région, à elle seule, compte aujourd'hui 513 de ces sites, proportion très supérieure à son poids économique.



Fig.2-1. Région Nord de la France représentée en bleu (59)

Les sédiments bruts ont été prélevés dans le canal de La Marque au bord duquel une ancienne usine métallurgique est construite et ont été fournis à Solvay par les Voies Navigables de France (VNF). Cette zone de prélèvement est restée une zone industrielle encore très active ce qui explique les fortes teneurs en métaux lourds dans ces sédiments. Une caractérisation physico-chimique (teneur en métaux lourds, composition minéralogique, granulométrie, ...) a été réalisée sur le matériau brut et traité.

II.2. Caractérisation du sédiment brut

II.2.1. Caractérisation environnementale

La caractérisation environnementale concerne la teneur en métaux lourds et leur solubilité lorsque les sédiments sont en contact avec une phase aqueuse.

II.2.1.1. Teneur en métaux lourds (NF X 31-151, 1996)

Le but de cette analyse est de mesurer la concentration totale des éléments traces considérés comme polluants tels que le Pb, Zn, Co, Cd, Cr, Cu, ainsi que d'autres métaux comme le Fe, P, Al. Ces données ne permettent pas de connaître la forme chimique sous laquelle se trouvent ces éléments dans le sédiment. Ils permettent de classer les sédiments bruts par rapport aux valeurs de référence GEODE et de justifier le traitement.

Protocole de l'essai

La solubilisation des métaux lourds est réalisée par minéralisation des échantillons des sédiments. Schématiquement la minéralisation est la dissolution des minéraux et de la matière organique par oxydation. Cette opération peut être obtenue par des différents modes, dont la méthode de mise en solution totale par attaque acide dans un milieu ouvert ou fermé et à chaud, est la méthode la plus

recommandée pour l'analyse des métaux lourds (NF ISO 11466). L'échantillon (0.5 g : fraction inférieure à 63 µm) est mis dans un godet d'attaque en Téflon à couvercle conique. Dans un premier temps on ajoute 10 ml d'acide fluorhydrique (HF 40%), ce qui permet de dissoudre les composés silicatés (ils forment des composés volatils avec l'acide fluorhydrique). On met l'ensemble sur une plaque chauffante à 100°C et on laisse évaporer à sec. Toujours sur la plaque, on ajoute 2 ml de l'acide nitrique (HNO₃ 65%) et 6 ml d'acide chlorhydrique (HCl 38%) [Eau régale] et on laisse évaporer à sec. Le résidu de l'attaque totale est ensuite dilué dans 20 ml d'eau ultra pure (pour solubiliser les métaux adsorbés sur les parois), filtré au moyen d'une seringue équipée d'un filtre de 0.45 µm et analysé en ICP (Plasma à Couplage Inductif, cf. **fig.2-2, c**).

Résultats et interprétations

Le **tableau 2-1** compare les teneurs totales en métaux lourds dans les sédiments bruts et traités aux valeurs limites « sol » telles que définies dans l'arrêté du 8 janvier 1998 applicables aux épandages des boues, issues du traitement des eaux usées, sur les terres agricoles.

Tableau 2-1

Comparaison des concentrations totales en éléments traces des sédiments de Lille, bruts et traités, aux valeurs limites « sol » définies dans l'arrêté du 8 janvier 1998.

Eléments traces	Concentration totale (en mg/kg de sédiment sec analysé sur la fraction inférieure à 2 mm)		
	Valeurs limites dans les sols	Brut	Traité
Arsenic (As)	-	99.5	110
Cadmium (Cd)	2	18.9	19.4
Chrome (Cr)	150	728.2	900
Cuivre (Cu)	100	307.7	247.5
Nickel (Ni)	50	212.1	229.9
Plomb (Pb)	100	620	436
Zinc (Zn)	300	2993	2669

Les teneurs en métaux lourds donnée dans le **tableau 2-1** dépassent largement les valeurs seuils (cas de nickel, de chrome, de cadmium et de zinc), ce qui illustre la nécessité du traitement. On observe aussi que le traitement ne diminue pas les teneurs en métaux lourds, car le procédé Novosol[®] n'élimine pas les éléments trace mais il les stabilise (en les fixant dans la matrice solide). Le fait que les concentrations des métaux lourds dans les sédiments traités sont plus importantes que celles dans les bruts est lié à la perte au feu (diminution du volume du matériau suite au traitement thermique). Les incertitudes de mesure, participent aussi à cette explication (échantillonnage).

II.2.1.2. Essais de lixiviation

La lixiviation est une méthode d'extraction largement utilisée pour évaluer le potentiel de relargage de polluants vers le milieu naturel. Elle nous permet ainsi d'évaluer l'efficacité de stabilisation des métaux lourds dans la matrice de

sédiment après le traitement. Deux tests de lixiviation ont été choisis : l'essai selon la norme française (AFNOR) se trouvant dans la catégorie Déchets décliné XP X31-210 (1998) ainsi que l'essai selon la norme américaine développée par l'U.S. Environmental Protection Agency nommée TCLP (Toxicity Characteristic Leaching Procedure, 1992).

Lixiviation à l'eau (Norme Française XP X 31-210 Mai 1998)

Protocole d'essai

Un échantillon de 100 g de sédiment sec de granulométrie égale ou inférieure à 4 mm est mis en contact avec de l'eau déminéralisée (pH compris entre 5 et 6) dont le rapport Liquide/Solide (L/S) est égal à 10. L'ensemble subit une agitation constante de 60 cycles par minute pendant 24 h. Au terme de cette opération, l'éluat est séparé du matériau résiduel par centrifugation. Le lixiviât est en suite récupéré en filtrant l'éluat au moyen d'un filtre de 0.45 μ m et analysé en ICP.

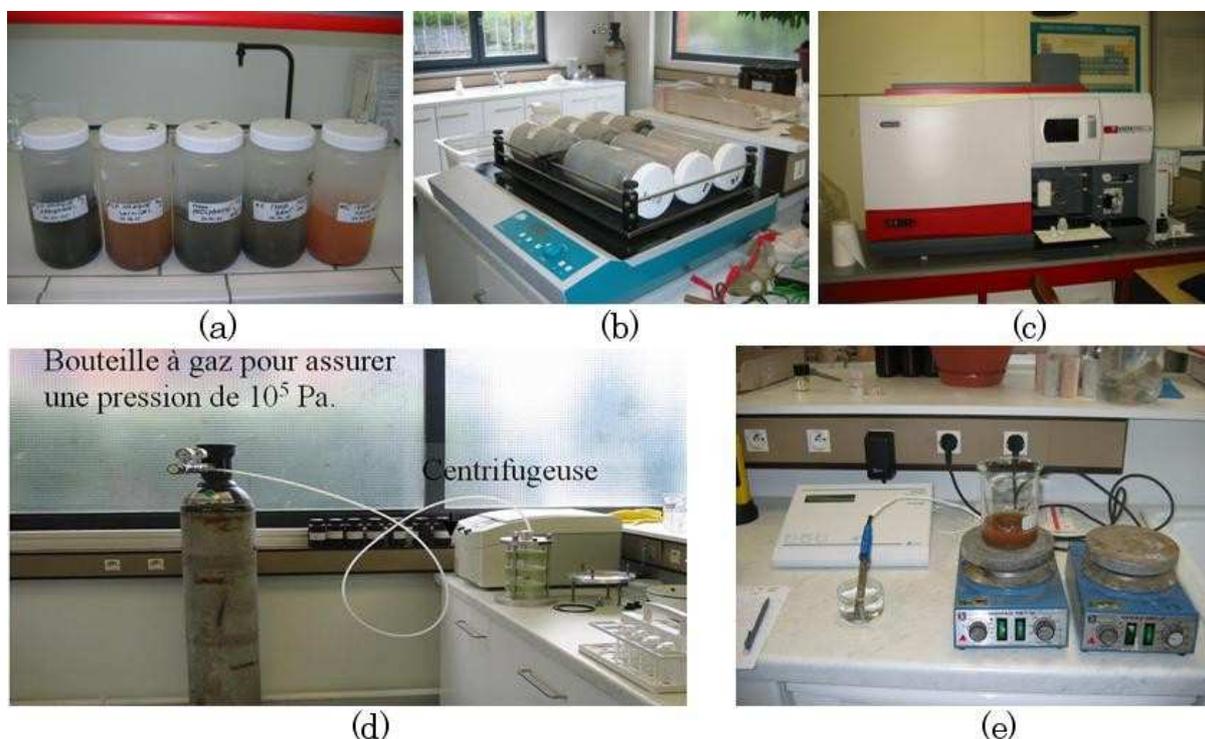


Fig.2-2. Lixiviation à l'eau : a) L'ensemble (liquide + solide) ; b) Agitateur à plateau ; c) Plasma à couplage inductif (ICP : Inductively Coupled Plasma) ; d) Centrifugeuse ; e) pH-mètre

L'avantage de la norme française de lixiviation est sa simplicité de mise en œuvre. Cependant, l'éluat à l'eau déminéralisée peut être considérée comme une évaluation simple, valable à court et moyen terme, mais qui ne tient guère compte du caractère acide que pourraient prendre les eaux de percolation (pluies, lixiviats d'anciennes décharges...) [Derie, 1995]. Il est donc nécessaire de lixivier avec une solution acide (exemple lixiviation TCLP). Néanmoins, ce test d'éluat à l'eau est celui préconisé par la commission européenne dans le choix et l'élaboration de la directive décharge. Le test de lixiviation a été réalisé sur les sédiments : bruts, phosphatés et phosphatés et calcinés (traités).

Résultats et interprétations

Le **tableau 2-2** donne les concentrations des métaux lourds (Cd, Cr, Cu, Ni, Pb, Zn) dans les lixiviats comparées aux seuils définis par la directive décharge.

Tableau 2-2

Test de lixiviation réalisé sur les sédiments de Lille (bruts, phosphatés et phosphatés et calcinés) selon la norme française en mg/kg de la masse sèche

Elément	Bruts	Phosphatés	Phosphatés et calcinés	Valeurs limites applicables aux déchets admissibles dans les décharges pour déchets inertes L/S=10 (l/kg)	Valeurs limites applicables aux déchets admissibles dans les décharges pour déchets non dangereux L/S=10 (l/kg)
Cd	< 0.03	< 0.03	< 0.03	0.04	1
Cr	0.068	0.085	13.3	0.5	10
Cu	5.8	8.4	0.9	2	50
Zn	1.1	6	0.3	4	50
Ni	2.6	8.8	< 0.08	0.4	10
Pb	< 0.2	< 0.2	< 0.2	0.5	10

Les résultats montrent une baisse assez importante de la fraction lixiviable, à l'exception du chrome. En effet la calcination a conduit à l'augmentation de la concentration du Cr dans la fraction échangeable et celle liée aux carbonates (fractions mobiles). Cela est probablement dû à l'oxydation du Cr (III) en Cr (VI) plus soluble [Kribi, 2005]. La quasi totalité des valeurs sont en dessous de la limite pour une mise en décharge pour déchets inertes.

Lixiviation à l'acide [Norme Américaine : Toxicity Characteristic Leaching Procedure (TCLP)]

Protocole d'essai

La procédure TCLP est utilisée pour déterminer la mobilité des éléments organique et inorganiques présents dans un solide, un liquide ou des déchets multiphasiques. Le rapport liquide solide est de (L/S = 20). Le fluide d'extraction est choisi en fonction de l'alcalinité de la phase solide du déchet. L'agitation se produit en utilisant un agitateur permettant la mise en mouvement alternatif de 30 ± 2 tours/minute pendant 24 heures. La filtration se fait en utilisant des filtres de $0.45 \mu\text{m}$. On broie les échantillons pour avoir des particules $< 1 \text{ mm}$, en suite on met 5 g de solide mélangé avec 96.5 ml d'eau déminéralisée et on fait remuer pendant 5 min sur un agitateur magnétique. On mesure le pH (pH-mètre précis ± 0.05 unités à 25°C) (**fig.2-2, e**). Si le $\text{pH} < 5$: on utilise le fluide d'extraction #1. Si le $\text{pH} > 5$, il faut ajouter 3.5 ml HCL (1N) et faire chauffer à 50°C pendant 10 min. Si le $\text{pH} < 5$, on utilise le fluide #1, sinon il faut utiliser le fluide #2.

Fluide d'extraction #1 : on met 5.7 ml de $\text{CH}_3\text{CH}_2\text{OOH}$ (acide acétique) dans 500 ml d'eau déminéralisée + 64.3 ml de NaOH. On dilue pour obtenir un volume d'un litre. On obtient une solution de $\text{pH} 4.93 \pm 0.05$.

Fluide d'extraction #2 : on met 5.7 ml de $\text{CH}_3\text{CH}_2\text{OOH}$ dans 1 litre d'eau déminéralisée. On obtient une solution de $\text{pH} 2.88 \pm 0.05$.

Résultats et interprétations

Le **tableau 2-3** montre les résultats de TCLP effectuée sur les sédiments : bruts, phosphatés et phosphatés et calcinés. Les concentrations de la quasi-totalité des métaux lourds dans les lixiviats sont plus importantes que celles obtenues par la lixiviation à l'eau déminéralisée, mais ils restent au-dessous des normes de référence.

Tableau 2-3

Test de TCLP : les concentrations des métaux lourds dans les lixiviats sont en mg/kg de la masse sèche

Elément	Bruts	Phosphatés	Phosphatés et calcinés
Cd	0.12	0.8	0.28
Cr	0.32	0.33	23.2
Cu	0.14	0.98	0.38
Zn	103.3	71	10.2
Ni	70.2	30	1.05
Al	4.7	0.7	1

II.2.2. Caractérisation physico-chimique (composition chimique, composition minéralogique, teneur en matière organique, masse volumique, granulométrie)

La connaissance de la composition chimique et minéralogique et d'autres propriétés physiques (granulométrie, masse volumique, porosité) des sédiments est très importante pour leur valorisation dans les produits de terre cuite. La composition minéralogique a été déterminée par la Diffraction aux Rayons X (DRX). Cette méthode permet la détermination des phases minérales micro et poly-cristallines des matériaux. Elle consiste à bombarder l'échantillon (une poudre homogène) avec des rayons X, et à regarder l'intensité de rayons X qui est diffusée selon l'orientation dans l'espace. On enregistre l'intensité détectée en fonction de l'angle de déviation 2θ du faisceau ; la courbe obtenue s'appelle le diffractogramme. La position des pics de diffraction permet l'identification des structures ou phases cristallines présentes et donc la détermination de la composition cristallographique de l'échantillon analysé. Les analyses DRX ont été conduites au laboratoire des processus et bilans des domaines sédimentaires de l'Université de Lille I, au moyen d'un diffractomètre à Rayons X, (Philips, PW 1729) muni d'une anticathode en Cuivre, d'un porte-échantillon tournant, et d'un passeur automatique à 42 positions. La baie de mesure (PW 1710) est pilotée par un micro ordinateur à l'aide du logiciel PC-APD.

Le dosage des éléments traces a été déterminé par attaque aux acides chlorhydrique et nitrique. Le carbone total et organique a été déterminé en utilisant la procédure décrite dans la norme NF X 31-409. Elle consiste à l'acidification de l'échantillon afin de libérer la totalité des carbonates pour n'avoir que du carbone organique. Le pourcentage massique de la matière organique a été mesuré en calcinant l'échantillon à 450°C pendant 3 heures et la perte de masse engendrée par la calcination est attribuée à la matière organique [Ausili *et al.*, 1998; Guevara-Riba, 2004].

La surface spécifique d'une poudre est la surface développée par l'ensemble des grains. C'est un paramètre important pour le choix des voies de valorisation. On la mesure le plus souvent en fixant un gaz (azote ou krypton) à basse température en monocouche sur la surface de chaque grain. C'est la méthode d'adsorption de Brunauer, Emmett et Teller (méthode BET) [Brunauer, 1943 ; Brunauer *et al.*, 1938]. Une description plus détaillée de cette méthode est donnée par Gregg & Sing [Gregg *et al.*, 1967].

L'analyse granulométrique permet de décrire le sédiment à partir de différentes fractions minérales regroupées en classes : les argiles de taille < 2µm, les limons de 2µm à 63 µm et les sables de 63 µm à 2mm. Les sédiments peuvent alors être typés selon la teneur respective de ces trois composés en utilisant, par exemple, un système de coordonnées triangulaires (**fig. 2-3**).

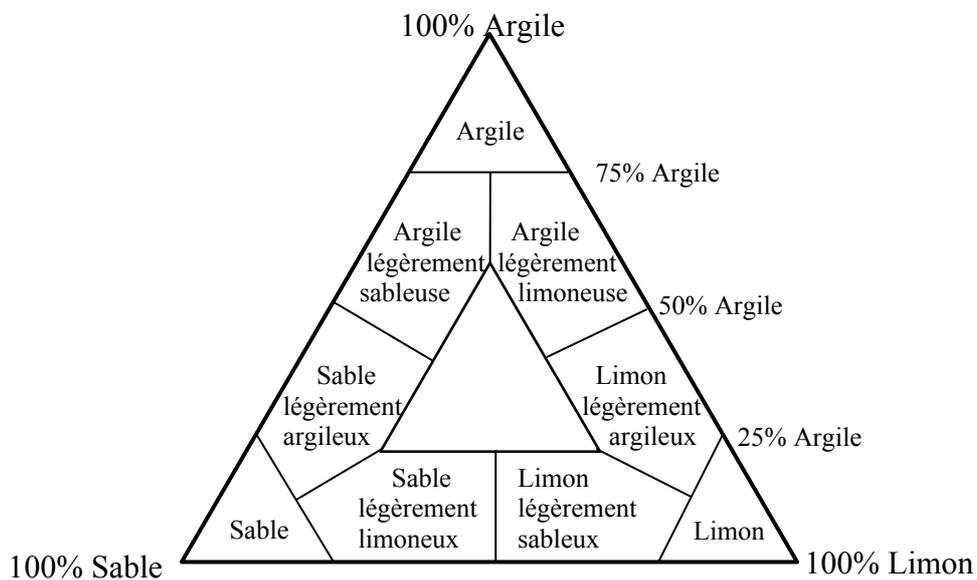


Fig. 2-3: Diagramme triangulaire de classification des sédiments en fonction de leur granulométrie [Campy et Meybeck, 1995]

Le **tableau 2-4** compare les résultats d'une caractérisation physico-chimique de deux types de sédiments fluviaux bruts : de Lille et de Vraimont (Belgique). On note que les caractéristiques physiques des deux sédiments sont très proches. En revanche les caractéristiques chimiques (teneur en métaux lourds, en carbonates et en matière organique) sont assez variables. En effet, les teneurs en matière organique et en carbonates dans le sédiment de Lille sont beaucoup plus importantes que celles de Vraimont.

Tableau 2-4

Caractérisation physico-chimique des sédiments fluviaux bruts [Kribi, 2005 ; Boucard, 2006]

Caractérisation chimique et minéralogique		
	Sédiment de Lille	Sédiment de Varaimont (Belgique)
<i>Humidité</i>	Humidité à 40°C : 66.6%	Humidité à 40°C : 52.5%
<i>pH</i>	Humidité résiduelle : 2.6%	Humidité résiduelle : 1.3%
	7.4	7.2
<i>Dosage des éléments (mg/kg de matière sèche)</i>	Al : 50475.8 ; As : 149.2 ; Ca : 54810.1 ; Cd : 37.6 ; Co : 16.4 ; Cr : 638.7 ; Cu : 428.7 ; Fe : 32035.9 ; Mn : 636.3 ; Pb : 641.2 ; Zn : 4654.8	Al : 52401 ; As : 164.2 ; Ca : 27346.6 ; Cd : 4 ; Co : 15 ; Cr : 191.3 ; Cu : 142.2 ; Fe : 32975.4 ; Mn : 1061.2 ; Pb : 214.1 ; Zn : 1003.8
<i>Carbone organique</i>	8% massique	3% massique
<i>Carbonates</i>	17.5% massique	5.5% massique
<i>Matière organique</i>	15.6% massique	6.7% massique
<i>Soufre</i>	1.2% massique	< 0.2 (limite de détection)
<i>DRX</i>	Composés principalement de: Quartz (SiO ₂), de Calcite (CaCO ₃) et en moindre quantité de Feldspath et de Mica et une faible présence d'hématite (Fe ₂ O ₃)	Composés principalement de: Quartz (SiO ₂), de Calcite (CaCO ₃) et en moindre quantité de Feldspath et de Mica et une faible présence d'hématite (Fe ₂ O ₃)
Caractérisation physique		
<i>Analyse granulométrique</i>	Fraction de sable : 20.6%	Fraction de sable : 16.7%
	Fraction de limon : 74.4%	Fraction de limon : 77.1%
	Fraction d'argile : 5.0%	Fraction d'argile : 6.2%
	Limon sableux	Limon sableux
<i>Surface spécifique</i>	5.6 m ² /g	4.5 m ² /g

II.3. Caractérisation du matériau traité

II.3.1. DRX

L'analyse DRX réalisée sur le sédiment de Lille après traitement confirme la présence majoritaire de quartz et indique également une présence marquée de calcite, de feldspath [(Ca,Na)(Si,Al)₄O₈], de mica, d'hématite et d'anhydrite (CaSO₄). La présence d'anhydrite et d'hématite dans le sédiment traité est due à une dissolution des minéraux présents dans le matériau brut. La calcite se dissout partiellement en libérant le Ca qui se recombine sous la forme CaSO₄.2H₂O (gypse) et qui perd ensuite son eau lors de la calcination. La présence d'hématite dans le sédiment traité est encourageante pour 'utilisation de ce dernier dans la production des briques cuites car le fer peut jouer le rôle de flux [Anderson *et al.*, 1996; Anderson *et al.*, 2002].

Le **tableau 2-5** présente les résultats d'une analyse DRX sur la fraction argileuse de sédiment de Lille après traitement. On note que la fraction argileuse du sédiment traité est composée majoritairement d'illite. La kaolinite et la smectite présentes dans le matériau brut disparaissent totalement dès que la température dépasse 400°C en prenant une structure de mica de type illite.

Tableau 2-5

Composition de la fraction argileuse de sédiment de Lille

Sédiment fluvial (Lille)		
Composition (% de la fraction argileuse)	Sédiment brut	Sédiment traité
Smectite	60	0
Illite	25	90
Chlorite	10	0
Inter stratifié illite-chlorite	0	10
Kaolinite	5	0

III.3.2. Observation visuelle et binoculaire

Les grains composant le sédiment traité sont généralement anguleux, dont la surface est couverte d'une couche de particules fine. Cette géométrie est due au processus de traitement car pendant le séchage les sédiments sont manipulés par des pelles mécaniques qui leur donnent cette apparence angulaire (**fig. 2-4**).

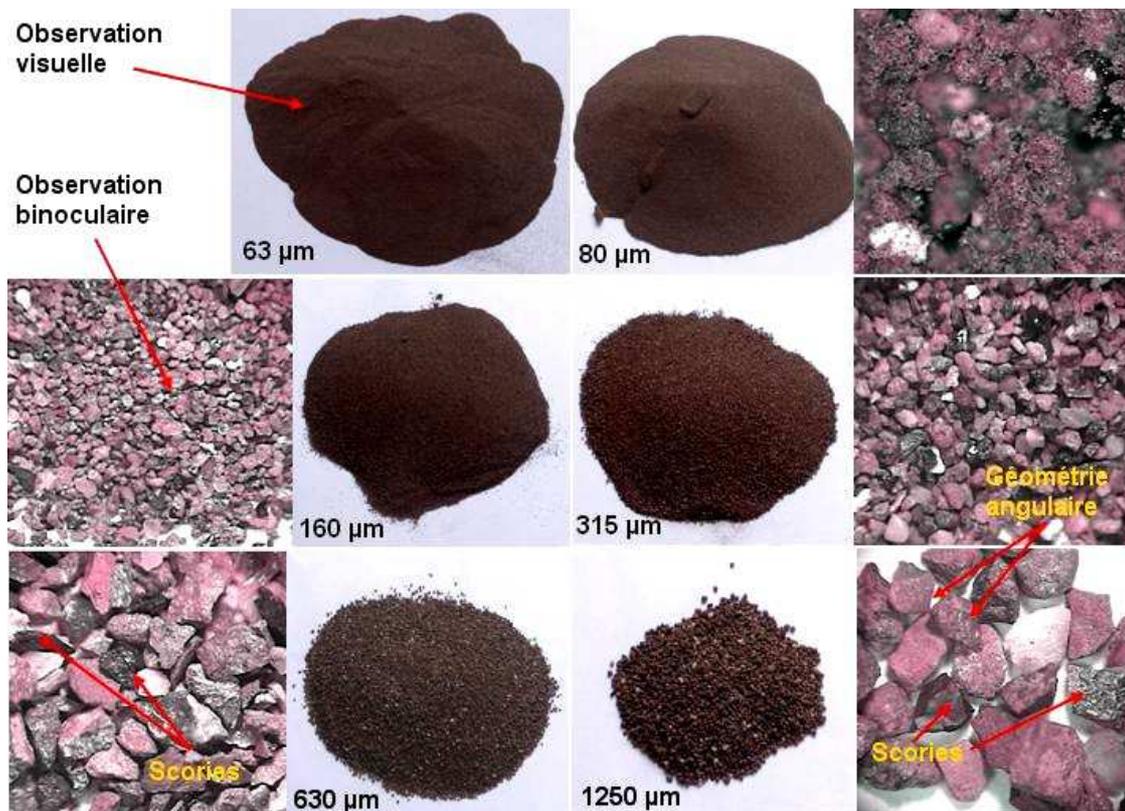


Fig. 2-4: Observation visuelle et binoculaire [Scordia, 2007] du sédiment fluvial traité

Les grains sont composés principalement d'agglomérats de grains plus petits de faible cohésion (friables), ce qui leur donne une porosité intra granulaire très élevée. L'observation binoculaire indique la présence de scories (résidus de l'industrie métallurgique) (cf. **fig.2-4**). La présence de ces résidus est due à l'histoire industrielle de la région.

II.3.3. Observation MEB (Microscope Electronique à Balayage)

L'observation au microscope électronique à balayage montre une morphologie comparable à celle de l'observation visuelle et binoculaire. Les grains sont de forme et de taille très variables (cf. **photo 2-1**). Ils sont formés par l'agglomération des grains de plus petite taille ($\approx 1 \mu\text{m}$) (cf. **photo 2-2**).

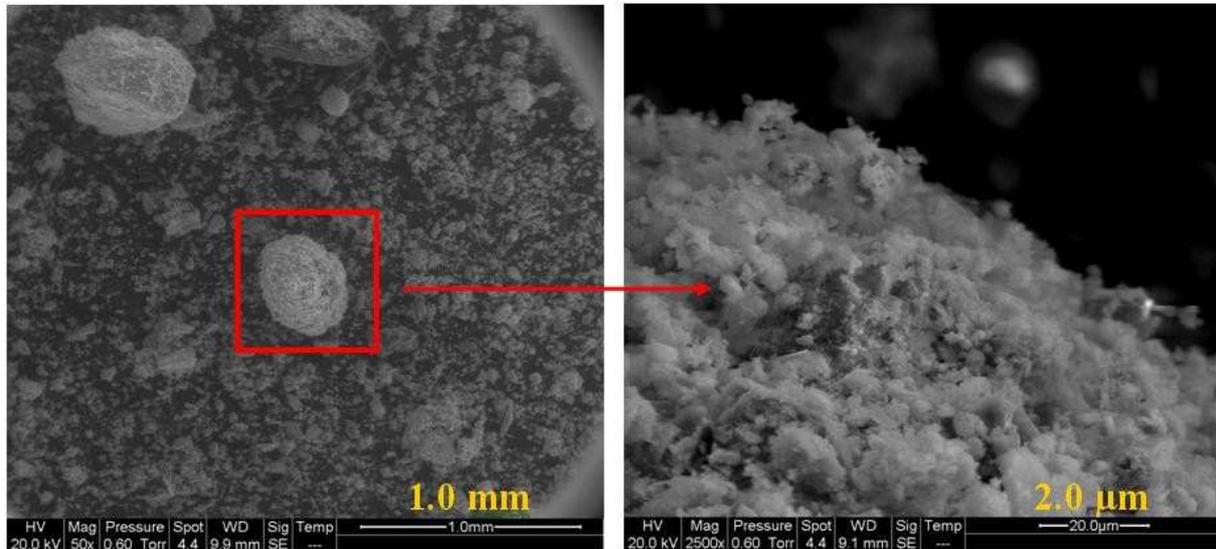


Photo 2-1 : Grains de sédiment fluvial :
Formes et tailles variables

Photo 2-2 : Agglomération des grains de plus
petite taille ($\approx 1 \mu\text{m}$) [source : Scordia, 2007]

L'agglomération des grains est due au frittage thermique. En effet le frittage (le passage d'un matériau pulvérulent à un matériau cohérent sous l'action de la chaleur) conduit à la formation des ponts entre grains (la soudure de deux grains) par la différence de l'énergie libre entre le secteur de pont et la surface de la particule [Kingery *et al.*, 1955]. La formation des ponts dépend du diamètre des particules et de la température de cuisson (cf. annexe B). L'apparition des premiers contacts entre les grains peut être due à des forces de type électrostatique ou à des liaisons chimiques entre les espèces superficielles (élimination d'eau entre les grains). La cohésion entre les particules dépend de leurs tailles. Ainsi, le broyage du sédiment traité donne des grains plus cohésifs.

II.3.4. Granulométrie laser

La granulométrie laser permet de déterminer la répartition granulaire des particules de diamètre inférieur à $80 \mu\text{m}$. L'argile a été broyée avant d'être analysée. La fraction inférieure à $80 \mu\text{m}$ a donc été séparée par tamisage, puis mise en solution qui sert de défloculant. Les **figures 2-5, 2-6** présentent la distribution des tailles des particules (moyenne de trois essais) du sédiment traité et de l'argile de Templeuve, utilisée dans la production de brique cuite à la Briqueterie du Nord (BdN). Le **tableau 2-6** donne les valeurs du diamètre médian ($D_{50\%}$). On note que ces valeurs sont comparables bien que la fraction argileuse dans le sédiment traité (3 %) est inférieure à celle de l'argile de Templeuve (8 %).

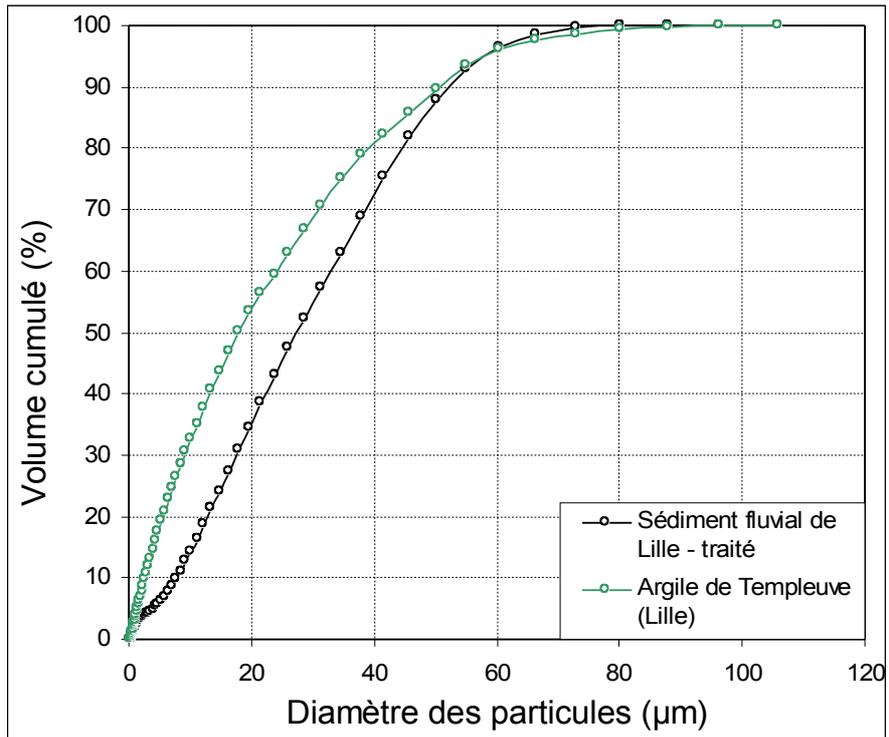


Fig. 2-5 : Distribution granulométrique du sédiment fluvial traité (Lille) et de l'argile de Templeuve (Lille)

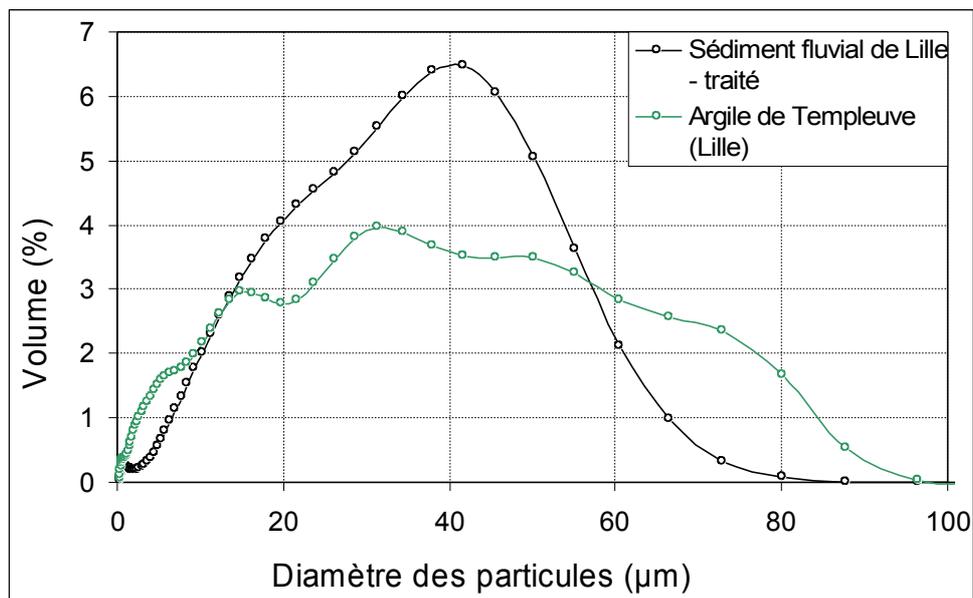


Fig. 2-6: Distribution des tailles de particules pour le sédiment traité et l'argile de Templeuve

Tableau 2-6

Diamètre médian des particules < 80µm de sédiment traité et de l'argile de Templeuve obtenus par granulométrie laser (µm)

	Sédiment fluvial traité	Argile de Templeuve
Diamètre médian des particules (µm)	27.69	19.7

II.3.5. Surface spécifique

La surface spécifique a été déterminée à l'aide d'un système ASAP 2010 (Micromeritics, USA), qui mesure (à une température donnée) une isotherme d'adsorption et de désorption et calcule la distribution de taille des pores selon la méthode BET. Cette isotherme d'adsorption représente l'ensemble des états d'équilibre entre la phase gazeuse et la phase adsorbée à des pressions comprises entre 0 et la pression de vapeur saturante de la substance adsorbable (azote). Elle est généralement représentée sous une forme graphique en reportant la quantité adsorbée par un gramme d'adsorbant en fonction de la pression relative d'équilibre p/p_0 (rapport entre la pression d'équilibre du gaz adsorbable p et de sa pression de vapeur saturante p_0). **La figure 2-7** présente les isothermes d'adsorption/désorption mesurées sur des échantillons de : sédiment phosphaté, sédiment traité (phosphaté et calciné) et d'argile. Selon la classification de l'IUPAC [Sing et al., 1985] cette courbe est de type IV, obtenue généralement avec des adsorbants mésoporeux, et la boucle d'hystérésis est de type H3 (obtenue dans le cas où l'adsorbant forme des agrégats). Le **tableau 2-7** donne les valeurs de la surface spécifique de ces trois matériaux.

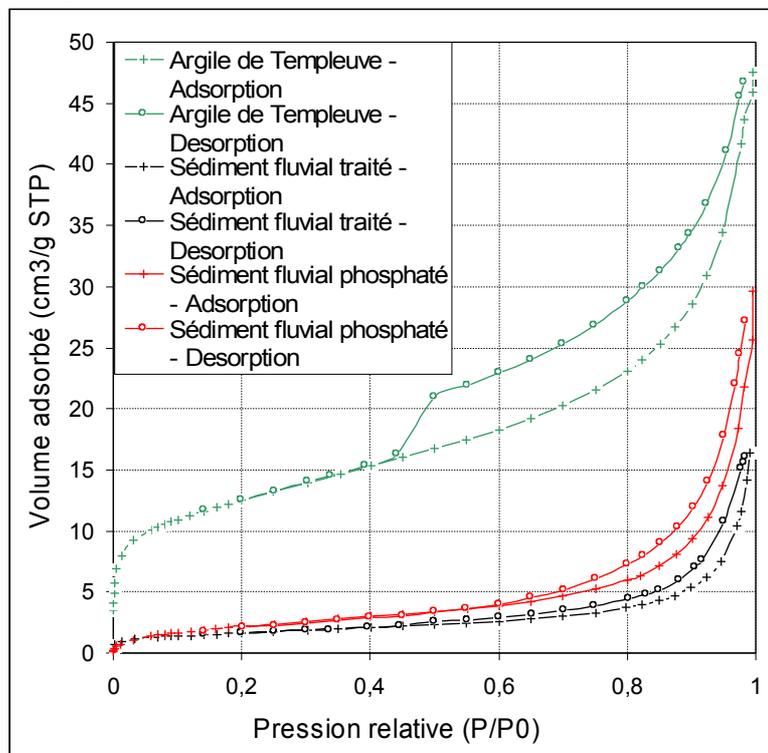


Fig.2-7 :
Isotherme

d'adsorption-désorption d'un échantillon de sédiment traité et d'argile
Tableau 2-7

Surface spécifique BET de : sédiment fluvial phosphaté, phosphaté et calciné (traité) et argile de Templeuve

	Sédiment fluvial traité (phosphaté et calciné à une température supérieure à 650°C)	Sédiment fluvial Phosphaté	Argile de Templeuve
Surface spécifique BET (m ² .g ⁻¹)	5.9	8.6	44.5

La valeur plus élevée de la surface spécifique du sédiment phosphaté (8.6 m².g⁻¹) par rapport au matériau brut (4.5 m².g⁻¹) est due au traitement à l'acide phosphorique qui engendre un dégagement gazeux et forme de bulles. Le départ de ces bulles est accompagné par la formation de porosité au sein du sédiment [Kribi, 2005]. En revanche la calcination (T > 650°C) conduit à une diminution de la surface spécifique liée au frittage qui provoque le colmatage des microporosités au sein du sédiment et à la densification du matériau. La valeur élevée de la surface spécifique de l'argile de Templeuve est due à la présence des smectites dans la fraction argileuse (cf. DRX de l'argile de Templeuve donnée dans le chapitre 3).

II.3.6. Granulométrie sur colonne

La granulométrie sur colonne n'est pas une caractéristique intrinsèque du matériau traité car sa distribution granulométrique dépend de la manutention appliquée au sédiment pendant le processus de traitement (retournement à la pelle mécanique durant la maturation du sédiment phosphaté, émottage, éventuels broyages avant la calcination). L'analyse granulométrique a été réalisée à sec car une fois mélangés à l'eau, les sédiments traités s'agglomèrent ce qui influence leur distribution granulométrique. Pour étudier l'influence du malaxage sur la distribution granulométrique, une analyse granulométrique a été réalisée avant et après malaxage (malaxeur électrique pendant 15 minutes). L'influence des autres constituants (sable, argile) n'a pas été prise en compte. La courbe granulométriques du sédiment traité est donnée sur la **fig. 2-8** avec celle du sable de Templeuve utilisé pour la confection des briques.

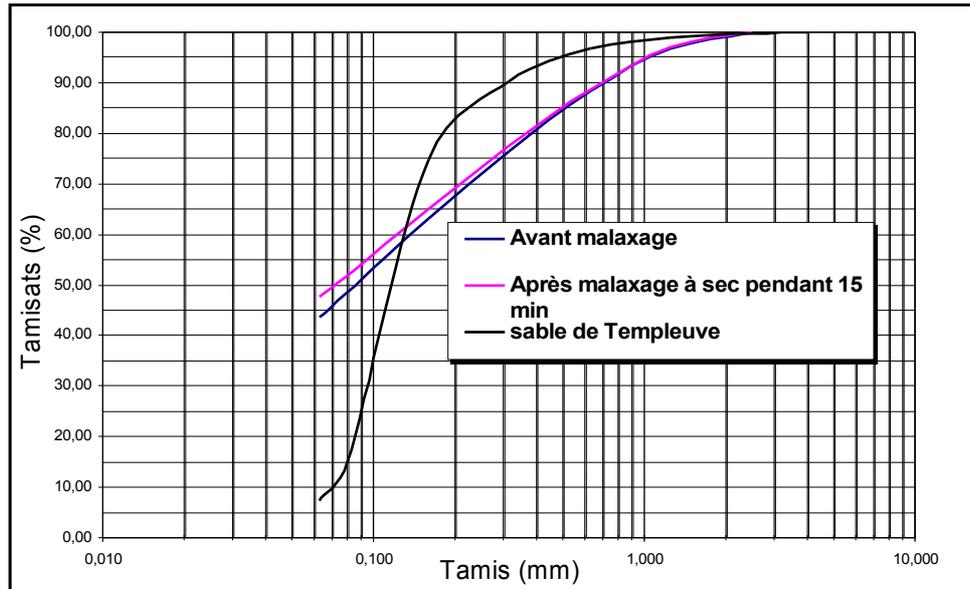


Fig. 2-8 : Courbes granulométriques du sédiment traité avant et après malaxage et du sable de Templeuve utilisé pour la production des briques

Le malaxage conduit au concassage des gros grains du sédiment traité, ce qui fait augmenter la fraction fine ($< 200 \mu\text{m}$). Cela est dû à la faible cohésion entre les particules du matériau traité. En utilisant le système de coordonnées triangulaires donné dans la **figure 2-3**, le sédiment traité (avant et après malaxage) peut alors être classifié comme sable limoneux.

II.3.7. Limites d'Atterberg

Les teneurs en eau qui délimitent les états de consistance d'un sol sont appelées les limites de consistance ou les limites d'Atterberg. Ces limites, qui s'expriment en pourcentage, sont les : la limite de plasticité et la limite de liquidité. Elles servent surtout à identifier et à classer les sols fins dont les particules sont invisibles à l'œil nu. Elles fournissent des informations complémentaires aux celles obtenues par la granulométrie laser et la granulométrie sur colonne. La limite de plasticité d'un sol w_p est la teneur en eau qui sépare l'état plastique de l'état semi-solide. Elle varie de 0% à 100% (généralement inférieure à 40%). La limite de liquidité w_L est la teneur en eau qui sépare l'état liquide de l'état plastique. Dans la plupart des cas elle ne dépasse pas 100%. L'indice de plasticité IP, correspondant à la différence entre la limite de liquidité et la limite de plasticité, permet de déterminer la zone dans laquelle le sol est à l'état plastique. Plus l'indice est élevé, plus cette zone est grande et, de façon générale, plus le sol contient de l'argile. Les sols non plastiques ont un indice de plasticité (IP) qui est compris entre 0 et 5, tandis que pour les sols à faible plasticité cet indice varie entre 15 et 30 [Wray, 1985]. Si l'IP est plus grand que 35, le sol est considéré très plastique. Pour déterminer la limite de liquidité, on a utilisé l'appareil de Casagrande, décrit dans la norme française NF P94-051. Cet appareil est constitué d'une coupelle de bronze, d'une base en caoutchouc dur et d'une came entraînée par une manivelle. On estime que le sol atteint la limite de liquidité lorsque, tombant d'une hauteur de 10 mm,

doit frapper la base 25 fois pour refermer, sur une distance de 13 mm, une rainure qui a été pratiquée sur l'échantillon de sol (**photo 2-3**).

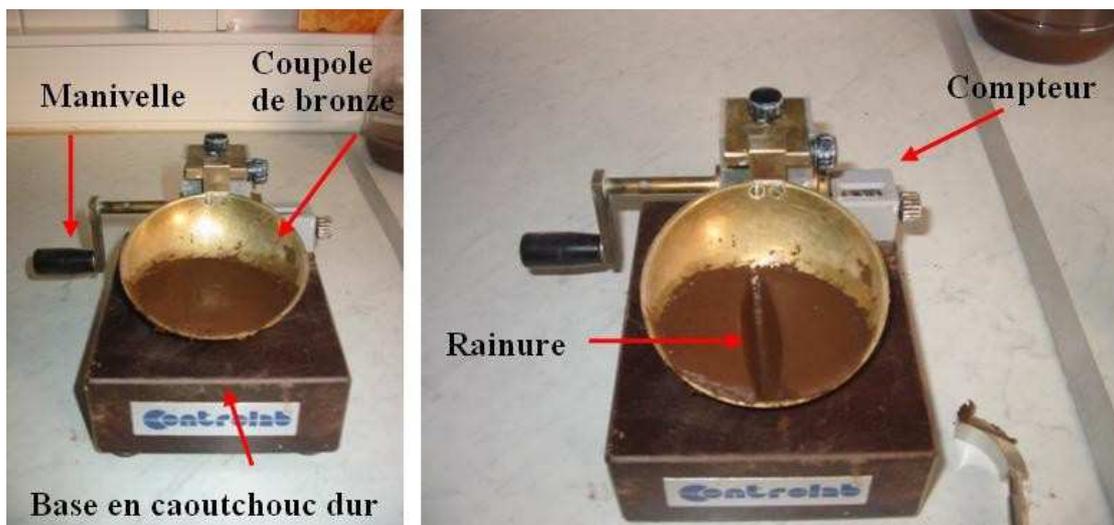


Photo 2-3 : Détermination de la limite de liquidité avec l'appareil de Casagrande

Le **tableau 2-8** donne la limite de liquidité du sédiment traité. Cette limite est comparable à celle d'une kaolinite (cf. **tableau 3-9**: chapitre 3).

Tableau 2-8

Limite de liquidité du sédiment traité de Lille

	Sédiment fluvial traité (Lille)
Limite de liquidité (%)	50.2
Limite de plasticité (%)	–
Indice de plasticité	–

L'essai de détermination de la limite de plasticité consiste à former un rouleau de 3 mm de diamètre à partir d'une boulette de 15 g environ. Le rouleau, au moment où il atteint ce diamètre, doit avoir environ 10 cm de longueur. La limite de plasticité est obtenue lorsque, simultanément, le rouleau se fissure et que son diamètre atteint 3 mm (± 0.5 mm).

On n'a pas pu déterminer la limite de plasticité du sédiment traité à cause de sa faible plasticité. En effet la plasticité est liée à l'activité électrochimique des minéraux argileux. Les fines sont présentes d'avantage dans le sédiment traité, mais la présence des minéraux argileux qui offrent une bonne plasticité comme les smectites est pratiquement nulle (cf. **tableau 2-5**).

II.3.8. Teneur en eau optimale (essai Proctor)

L'essai Proctor, décrit dans la norme française NF P 94-09, permet de déterminer la teneur en eau optimale pour laquelle un sol est mieux compacté. C'est un paramètre important qui peut influencer les propriétés des briques façonnées sous pression en utilisant des moules [Weng *et al.*, 2001]. De plus, c'est

un paramètre important pour la valorisation en techniques routières (couche de forme ou d'assise) car la compacité influence le comportement mécanique de la couche. Le principe de cet essai consiste à humidifier le sol à plusieurs teneurs en eau et à le compacter selon un procédé et une énergie conventionnels. Pour chacune des valeurs de teneur en eau considérées, on détermine la masse volumique sèche du sol et on établit la courbe des variations de cette masse volumique en fonction de la teneur en eau. La quantité de 3 kg de sédiments a été divisée en trois parts. Chaque part a été humidifiée en introduisant la quantité d'eau correspondant à la teneur en eau considérée et en malaxant pour obtenir une couche homogène (**photo 2-4**). Après humidification, chaque part est conservée dans une boîte de plastique étanche le temps nécessaire pour parfaire la diffusion de l'eau (15 min). En suite elle est mise dans le moule (**photo 2-5**) et compactée en appliquant 55 coups et en répétant huit fois le cycle suivant : six coups adjacents entre eaux et à la paroi du moule et le septième coup au centre sauf au huitième cycle (**photo 2-6**).

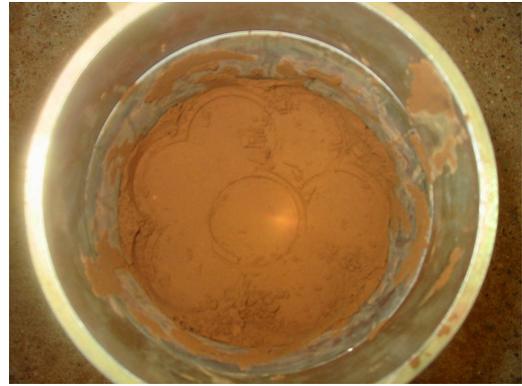


Photo 2-4 : Humidification **Photo 2-5** : Mise en moule **Photo 2-6** : Schéma d'application des coups

La **figure 2-9** représente la courbe des variations de la masse volumique sèche en fonction de la teneur en eau. Un phénomène de ressuage a été observé pour des teneurs en eau supérieures à 29.5 %. Ceci est dû au caractère drainant du matériau traité.

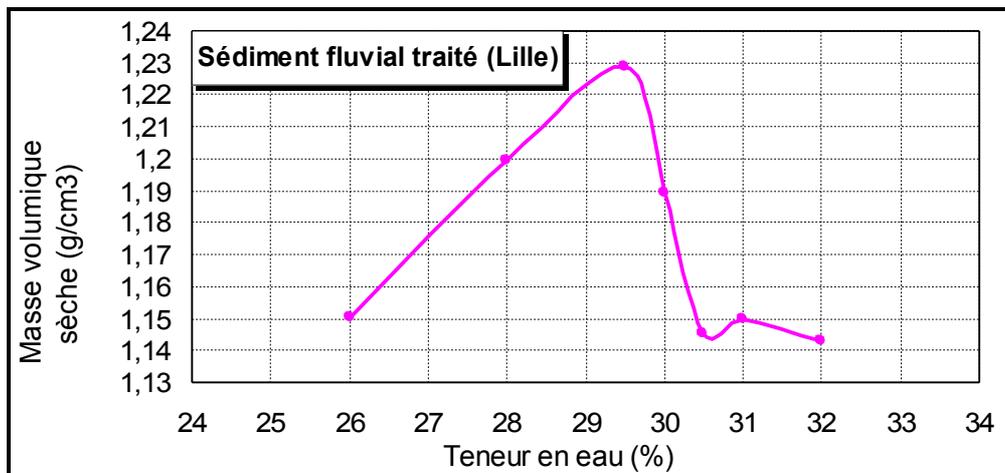


Fig. 2-9 : Variation de la masse volumique sèche en fonction de la teneur en eau.

Le **tableau 2-9** donne la densité sèche maximale et la teneur en eau optimale du sédiment traité de Lille, ainsi que celles du sédiment traité de Dampremy (région Charleroi). Pour ce dernier, ces valeurs ont été mesurées au laboratoire d'EUROVIA (délégation Nord). L'influence des autres constituants (sable, argile) n'a pas été prise en compte. Pour une argile destinée à la production des briques en terre cuite, la teneur en eau (humidité de façonnage) varie entre 20 et 27 % selon la composition minéralogique et la concentration en fines.

Tableau2-9

Résultats de l'essai Proctor normal effectué sur les sédiments fluviaux traités de Lille et de Dampremy (région Charleroi-Bruxelles)

	Sédiment fluvial traité (Lille)	Sédiment fluvial traité (Dampremy) [Scordia, 2007]
Densité sèche maximale (g/cm ³)	1.23	1.33
Teneur en eau optimale (%)	29.5	30.6

II.3.9. Valeur au bleu (NF P 94-068)

La structure cristalline des argiles leur confère un ensemble de propriétés de comportement lié à leur affinité pour l'eau, ce qui entraîne les phénomènes de gonflement, de plasticité et de cohésion constatés sur ce sol [Dupain *et al.*, 2000]. L'essai au bleu de méthylène permet d'apprécier d'une manière globale l'activité de la fraction argileuse d'un sol en mesurant la surface interne et externe des grains argileux. Pour ce faire, on fixe sur les grains d'argile des molécules de bleu de méthylène et on évalue la quantité de bleu fixé. On en déduit la valeur au bleu du sol (V_{BS}), qui est un indicateur essentiel dans la classification des sols pour les travaux de terrassement.

L'essai a été réalisé sur trois échantillons de 120 g de sédiment calciné. L'échantillon a été mis à tremper dans 500 ml d'eau déminéralisée et dispersé avec un agitateur à ailettes tournant à 700 ± 100 tr/min pendant au moins cinq minutes, et jusqu'à disparition de tout agglomérat de matériaux. Le tout est maintenu en agitation pendant toute la durée de l'essai, à une vitesse de 400 ± 100 tr/min. Le dosage consiste à injecter successivement des doses déterminées de bleu de méthylène dans la suspension de sédiments jusqu'à atteindre la saturation des particules d'argile. On prélève une goutte de liquide et on la dépose sur un papier filtre (papier filtre sans cendre, grammage : 95 g /m², épaisseur : 0.2 mm, vitesse de filtration : 75). Le papier filtre doit être maintenu horizontalement et le diamètre de dépôt compris entre 8 et 12 mm. Deux cas sont possibles :

- La goutte centrale est entourée d'une zone humide incolore : le test est négatif.
- La goutte centrale est entourée d'une zone humide teintée de bleu : le test est positif.

Si le test est positif, on effectue 5 fois la confirmation (toutes les minutes pendant cinq minutes). Si à la fin de la cinquième minute le test est positif, on arrête le dosage.

La **photo 2-7** montre les gouttes centrales entourées d'une zone humide teintée qui subsiste après avoir effectué la confirmation du test.



Photo 2-7 : Les gouttes centrales entourées d'une zone humide teintée.

La valeur au bleu est ensuite calculée par l'équation suivante : $V_{BS} = 10 * V_1/M_1$, où : M_1 est la masse de la prise d'essai en grammes et V_1 le volume total de solution de colorant injectée en millilitres. Cet essai permet d'évaluer la sensibilité des sols à l'eau.

Le **tableau 2-10** donne la valeur au bleu du sédiment de Lille calciné à une température supérieure à 650°C. On note que le sédiment traité n'est pas sensible à l'eau ($V_{BS} < 0.1$). Ainsi, les fines présentes dans les sédiments traités y sont en grandes quantités mais la présence des minéraux argileux de forte activité électrochimique dans la fraction fine des sédiments est très faible. En effet la smectite, présente dans le matériau brut et qui possède l'une des plus fortes activités électrochimiques chez les minéraux argileux, se transforme pendant la calcination en illite (cf. **tableau 2-5**) dont l'activité électrochimique est beaucoup plus faible. Cette faible activité argileuse explique le comportement non plastique du sédiment traité, car la plasticité des argiles est une fonction de l'activité électrochimique des minéraux argileux [Carter *et al*, 1991] (cf. III.1.4. du chapitre 3). Ce comportement non plastique va influencer les propriétés du produit final (brique) comme on le verra dans le chapitre 4.

Tableau 2-10

Valeur au bleu du sédiment de Lille (0/2mm)

	V_{BS}
Sédiment de Lille (traité)	0.07

II.3.10. Absorption d'eau, Porosité accessible à l'eau, Masse volumique

L'absorption d'eau, la porosité et la masse volumique sont des paramètres importants pour la formulation d'une brique cuite. L'absorption d'eau et la porosité intra granulaires influencent le dosage d'eau pendant la préparation des échantillons de brique car une partie de cette eau reste à l'intérieur des particules agglomérées et sera ensuite chassée pendant le séchage. Les mesures

de porosité et de coefficient d'absorption d'eau ont été réalisées d'après la norme française NF P18-554 servant à caractériser les granulats d'origine naturelle ou artificielle. Cette procédure est basée sur des méthodes hydrostatiques, où il faut peser les granulats à l'état sec, à l'état saturé surface sèche et dans l'eau. La masse des granulats à l'état saturé surface sèche est difficile à déterminer car la présence de pores ouverts en surface ne permet pas d'établir à quel moment cet état est atteint et la friabilité des granulats rend toute manipulation des grains susceptible d'influer sur le résultat de l'essai. ([Neuville, 2000-1 ; Agostini, 2006]).

La porosité intra granulaire du sédiment augmente avec l'augmentation de taille des grains. Elle est de l'ordre de 10, 30, et 40 % pour les fractions 0.63, 1.25, et 5 mm respectivement. Cela est expliqué par le fait que les gros grains sont formés par l'agglomération des grains de taille plus petite, ce qui leur donne une porosité intra granulaire plus élevée. Les valeurs de porosité sont comparables à celles de certaines roches comme le grès (0 – 48%), le quartzite (1.9 – 15.1%), le calcaire (0 – 37.6%) ou le granite (0.4 – 3.8%) [Neuville, 2000-2].

L'humidité de façonnage d'une brique en terre cuite varie normalement entre 20 et 27 % selon la minéralogie et la granulométrie de l'argile utilisée. Dans le cas de la Briqueterie du Nord (BdN) cette valeur est autour de 22 %. Vu la nature absorbante des sédiments traité, la quantité d'eau de façonnage utilisée dans l'étude de valorisation (cf. chapitre 4) était proche de 23 %.

La masse volumique absolue (masse volumique des grains solide ou de la matière pleine) a été mesurée en utilisant un pycnomètre à hélium. Une valeur de 2.66 g.cm^{-3} a été obtenue. Cette valeur est comparable à celle de calcite ($2.6 - 2.8 \text{ g.cm}^{-3}$) ou de quartz (2.6 g.cm^{-3}). Cela rejoint les analyses DRX qui ont montré que le sédiment traité est composé majoritairement de quartz avec une présence marquée de calcite et d'hématite.

II.3.11. Détermination de la teneur en matière organique par perte au feu (NF P 94-047)

Cette méthode est utilisée pour déterminer la teneur en matière organique par calcination. L'échantillon de sédiment traité est placé dans un récipient et séché dans une étuve à 65°C jusqu'à masse constante. La masse de l'échantillon sec est déterminée (masse **A**). Ensuite, l'échantillon est calciné à 1000°C pendant 1h dans un four rotatif avec un système de circulation d'air pour l'évacuation du dégagement gazeux pendant la calcination (**fig. 2-10**). On détermine la masse de l'échantillon calciné (masse **B**). La perte au feu (PAF) est déterminée par la relation suivante :

$$\text{PAF} (\%) = \frac{A - B}{A} * 100$$

Le **tableau 2-11** présente les valeurs de PAF du sédiment traité et de l'argile naturelle utilisée pour la préparation de nos échantillons de brique.

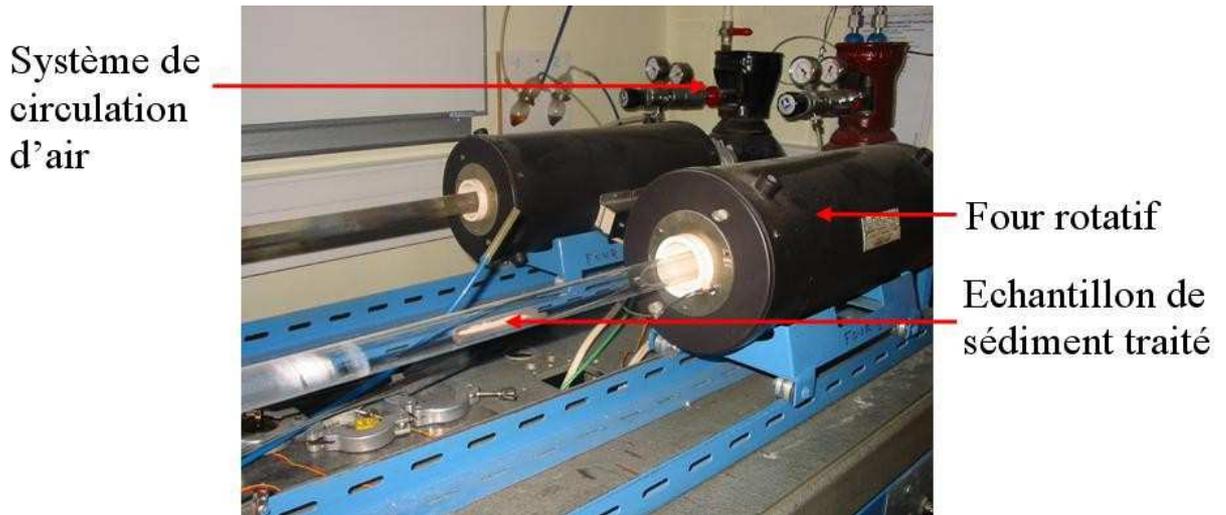


Fig. 2-10: Le four rotatif avec le système de circulation d'air

Tableau2-11

Les valeurs de perte au feu (PAF) du sédiment fluvial traité de Lille et de l'argile naturelle de Templeuve (région Nord-Pas-de Calais)

	Sédiment fluvial traité (Lille)	Argile naturelle (Templeuve-Nord- Pas de Calais)
Perte au feu (PAF%)	2.8	6.5

On note que la teneur en matière organique du sédiment traité est faible par rapport à celle de l'argile naturelle due au traitement thermique (calcination à 650°C). Cela a un effet bénéfique sur la valorisation car la matière organique a une influence notable sur les propriétés du produit final. En effet, la forte teneur en matière organique peut engendrer des microfissures au sein de la brique ce qui affaiblie ses propriétés mécaniques et sa résistance au gel [Hamer *et al.*, 2002 ; Okuno *et al.*, 1997].

II.4. Conclusion

Le sédiment brut est un matériau fin composé majoritairement de quartz et de calcite. Après traitement avec le procédé Novosol®, l'analyse DRX confirme la présence majoritaire de ces deux minéraux dans le matériau traité. En plus, elle indique une présence marquée d'hématite et d'anhydrite due à la dissolution des minéraux présents dans le matériau brut. La présence d'hématite encourage l'utilisation du sédiment traité dans la production de brique cuite car l'oxyde de fer joue le rôle de flux. La présence majoritaire de quartz permet au sédiment traité de substituer au sable et à l'argile naturelle composée généralement de quartz et des minéraux argileux. La caractérisation environnementale des sédiments bruts et traités indique des fortes teneurs en métaux lourds qui dépassent largement les seuils de référence GEODE. Les tests de lixiviation réalisés sur le matériau brut et traité, notamment celui de la TCLP (lixiviation avec de l'acide acétique), ont montré que le procédé de traitement Novosol® a stabilisé les métaux lourds en les fixant dans la matrice solide.

Le traitement thermique a conduit à une faible activité argileuse du matériau traité due à la transformation de smectite, présente dans la fraction argileuse, en illite. Cette faible activité argileuse explique le comportement non plastique du sédiment traité (limite de plasticité non déterminé).

La granulométrie laser, la surface spécifique et les observations au MEB révèlent une morphologie constituée par l'agglomération des particules de petites tailles (diamètre moyen : 29 μm) ce qui confère au sédiment traité une porosité intra granulaire et une nature absorbante assez importantes et dépendantes de la granulométrie. La masse volumique absolue de ce matériau (2.68 g.cm^{-3}) est comparable à celle de silice confirmant la présence majoritaire de quartz dans le sédiment traité.

Chapitre 3

Industrie de la terre cuite :
matières premières et techniques
de fabrication

III.1. Industrie française de la terre cuite

Selon la Fédération Française des Tuiles et de Briques (FFTB), la production actuelle française des produits en terre cuite est de l'ordre de 5 888000 t avec un chiffre d'affaires qui a atteint 1075 millions d'euros en 2006, soit 6 % du marché des produits de construction en France. Elle se répartit comme indiqué sur les **tableaux 3-1 à 3-3**. La brique de mur, dont le marché est directement lié à celui de nouvelles constructions, représente environ 45 % du tonnage de l'industrie. Récemment la production des briques de mur est en expansion grâce aux propriétés thermiques et mécaniques des briques à perforations verticales qui font à la fois la structure et l'isolation thermique.

Tableau 3-1

Production française de terre cuite en 2005 [FFTB]

	Kilo Tonne	% du total
Briques apparentes	378	6.4
Briques de structure	2319	39.4
Tuiles et accessoires	3150	53.5
Autres produits	41	0.7
Total	5888	100

Tableau 3-2

Répartition de la *production française de briques en 2005 [FFTB]*

	% du total
Briques pleines	33
Briques perforées	21
Blocs perforés apparents	31
Plaquettes	5
Pavage	1
Produits divers	9
Total	100

Tableau 3-3

Répartition de la production française de briques de structure en 2005 [FFTB]

	% du total
Briques de mur	75
Briques de cloison	21
Hourdis	2
Boisseaux	2
Total	100

III.2. Position de l'industrie française en Europe

Le tableau 3-4 donne une comparaison approximative entre les ventes françaises et celles des principaux pays européens.

Tableau 3-4

Comparaison des ventes européennes [Kornmann, 2005]

	Briques de façade (1000 m ³)	Brique de structure (1000 m ³)	Tuiles (1000 m ³)	Chiffre d'affaires (Millions €)	Personnel
France	237 (385 kt)	2 706 (2 042 kt)	55 410 (2 716 kt)	863	5 900
Espagne	(3 760 kt)	(18 980 kt)	(1 400 kt)	885	10 200
Italie	772	4 787	36 749	1 500	
Allemagne	959	7 498	48 304	1 250	11 000
Belgique	977	1 371			
Autriche	6	1 789	2 195	123	940
Portugal		5 440	18 122	260	4 700

On observe la position dominante de la France dans la production de tuile de terre cuite. En revanche pour la brique de façade et de structure la production française est faible en comparaison de celles des autres pays européens. A titre de comparaison, la production de briques en Allemagne est environ trois fois plus importante que celle en France.

III.3. Généralités sur les matières premières

Les matières premières utilisées dans la fabrication des produits de terre cuite sont principalement :

- les terres argileuses contenant une forte proportion d'argile qui leur donne leur aptitude au façonnage et leurs propriétés mécaniques après cuisson.
- Les dégraissants (sables de quartz, chamotte, cendre volante, des roches dures broyées : basaltes et micaschistes) pour fournir la structure à la céramique (squelette), pour réduire la température de fusion lors de la cuisson (fondant) et réduire la plasticité de la pâte
- L'eau : pour adapter la plasticité de la pâte.

III.3.1. Les argiles

III.3.1.1. Définition et origines des argiles

Le mot “argile” englobe deux connotations, l’une liée à la taille des grains et l’autre à la minéralogie. Les géologues considèrent comme “argile” tout minéral de faible granulométrie, la limite étant fixée à 2 μm . Les ingénieurs s’intéressent aux propriétés des argiles en tant que matériau réfractaire. Ils s’attachent donc aux propriétés de plasticité des matériaux argileux quelque soit leur taille.

Dans les ouvrages de référence il existe plusieurs définitions du terme “argile”. Eslinger & Peaver [Eslinger *et al.*, 1988] proposent de définir les argiles comme un minéral qui domine dans la fraction fine < 2 microns des roches et des sols. Par contre, Weaver [Weaver, 1989] regroupe tous les minéraux phyllosilicatés sans aucune connotation de taille. Quelle que soit la discipline, la structure cristalline des argiles est importante car elle est responsable des propriétés spécifiques du minéral.

Les argiles sont des matériaux sédimentaires de la couche superficielle de l’écorce terrestre. Les minéraux argileux résultent soit de l’altération physique, c’est à dire de la désagrégation d’une roche préexistante (minéraux primaires), soit de l’altération chimique (minéraux secondaires). Dans ce cas, ils sont formés par transformation d’un minéral ou par précipitation à partir d’une solution (minéraux néoformés). De façon générale, on distingue les argiles grasses ou maigres suivant qu’elles sont très ou peu plastiques, les argiles grésantes ou réfractaires selon leur comportement à la cuisson, les argiles smectiques (absorbantes et dégraissantes).

III.3.1.2. Composition minéralogique

Les principaux composants des argiles sont les minéraux argileux dominants (phyllosilicates), le quartz, les oxydes et hydroxydes de fer (hématite, goethite), le sulfure de fer (pyrite), la gibbsite, les carbonates (calcite, dolomite) et la matière organique.

III.3.1.3. Principaux minéraux argileux et leurs propriétés

Les minéraux argileux sont principalement des phyllosilicates, c.-à-d. qu’ils sont constitués par un empilement de feuillets.

Eléments structuraux

Les silicates constituent le modèle de base. Ils sont formés par un agencement de tétraèdres de SiO_4 dans lesquels un atome de Si est entouré de 4 atomes d’O. Les tétraèdres s’agencent en se partageant les oxygènes en maille hexagonales. Les hexagones s’agencent et forment une double chaîne. Les O non partagés pointent tous dans la même direction. La formule de base est $\text{Si}_4\text{O}_{10}^{4-}$. Les octaèdres sont composés d’un cation central et de 6 OH. Cette configuration permet d’accommoder des cations plus larges Al^{3+} , Fe^{3+} , Mg^{2+} , Fe^{2+} mais pas Ca^{2+} , Na^+ , K^+ (trop larges). Les feuillets sont formés par un agencement de couches octaédriques $[\text{Al}(\text{OH})_6]$ et tétraédriques $[\text{SiO}_4]$ reliées par les atomes O et OH mis en commun. L’espace inter-réticulaire sépare 2 feuillets successifs. D’après la structure du feuillet, on distingue principalement les argiles 1/1 [1 couche

tétraédrique (CT) +1 couche octaédrique(CO)] et les argiles 2/1 (2 tétra. pour 1 octaédrique).

Les minéraux argileux les plus importants pour la terre cuite sont les suivants :

La kaolinite $\{[Si_2O_5]Al_2(OH)_4$ ou sous une autre forme $Al_2O_3 \cdot 2SiO_2 \cdot 2H_2O\}$:

Minéral à deux couches (1/1, épaisseur de l'unité structurale $d=7.2 \text{ \AA}$) fréquent dans les sédiments argileux provenant de l'altération de roches acides (ex. granite). La kaolinite présente une faible activité électrochimique et montre de faible retrait au séchage et à la cuisson. Elle demande des températures de cuisson élevées et elle est assez réfractaire après cuisson. Les feuillets (**fig. 3-1**) sont liés par de fortes liaisons d'hydrogène (parmi les plus fortes chez les minéraux argileux). Par conséquence l'eau ne peut s'adsorber qu'autour des particules, ce qui explique le faible gonflement de cette argile.

L'illites (**fig. 3-1**) $\{KAl_2(OH)_2[AlSi_3(O,OH)_{10}]$, identifiée pour la première fois à Illinois} :

Minéral à trois couches (2/1, $d=10 \text{ \AA}$). Les liens entre les feuillets sont assurés par des atomes de potassium (K). Ils sont moins forts que ceux de la kaolinite, mais plus que ceux de la montmorillonite. L'illite apporte de la plasticité. C'est le type d'argile le plus utilisé dans la terre cuite.

Les Smectites comme **La Montmorillonite** (de Montmorillon en France appelée aussi bentonite aux USA) :

Minéral à trois couches (2/1), avec des teneurs variables en Na, Al, Fe, Mg. A la différence des kaolinites et des illites, les smectites ont la capacité d'incorporer dans leur structure des molécules d'eau (une couche d'eau de $2.5-5.2 \text{ \AA}$ d'épaisseur). Cette eau modifie la dimension de la couche en provoquant son gonflement (une augmentation de volume pouvant atteindre 95%). Les smectites offrent des capacités d'expansion beaucoup plus importantes que celles des autres minéraux argileux (Velde, 1992 ; 1995). De cette capacité d'absorption d'eau découlent leurs propriétés particulières de plasticité, de retrait/gonflement et d'absorbant.

Les Chlorites (**fig. 3-1, E**) $Mg_5(Al,Fe)(OH)_8(Al,Si)_4O_{10}$:

Minéral à trois couches (2/1, $d= 14 \text{ \AA}$) très fréquent dans les argiles pour terre cuite. Les chlorites existent en plus grands cristaux dans les roches magmatiques. Elles sont également formées pendant la diagenèse des roches sédimentaires.

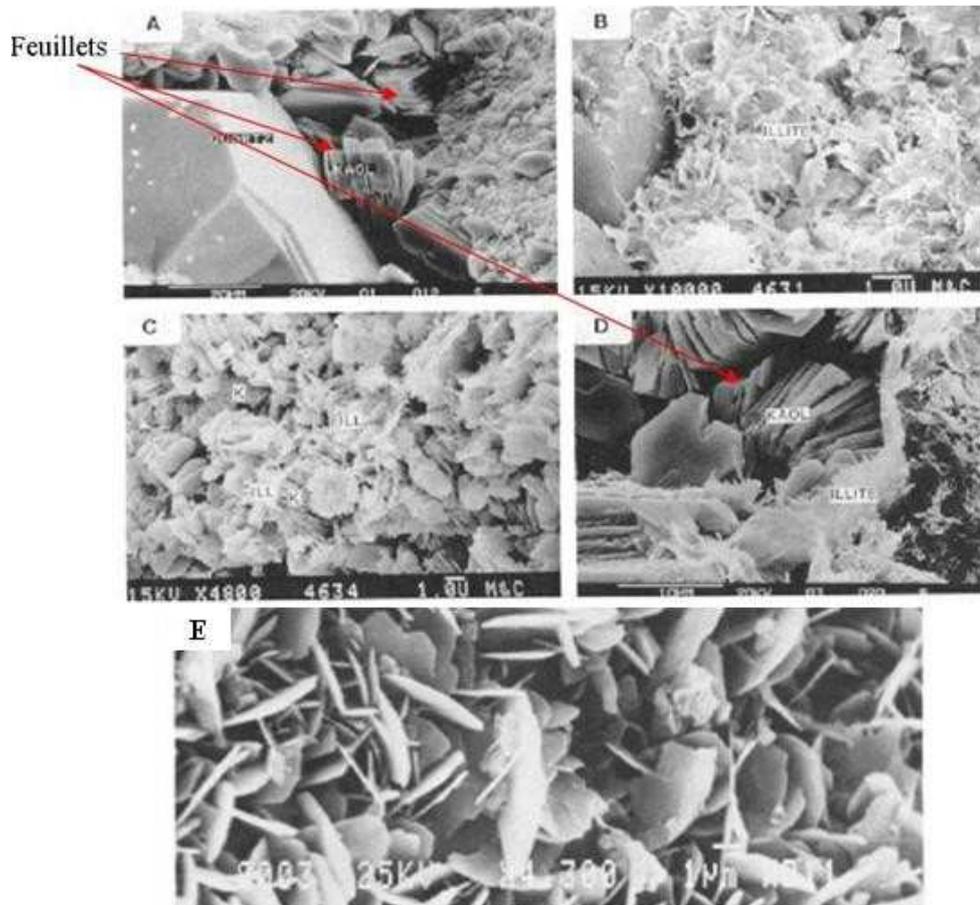


Fig. 3-1 : Images MEB des principaux minéraux argileux [Houseknecht and Pittman, 1992 ; Bjorlykke, 1989]

Plusieurs minéraux argileux peuvent se trouver dans un gisement, associés avec d'autres minéraux selon la sédimentation de la roche comme le quartz, les silicates (feldspath, mica), le calcaire, les oxydes et hydroxydes, les sels solubles et les matériaux organiques. Le **tableau 3-5** donne la composition chimique de minéraux et de roches argileuses.

Tableau 3-5

La composition chimique de la kaolinite, de l'illite et des roches argileuses [Alviset, 1987]

	kaolinite	Illite	Roches argileuse courantes
Formule	$Al_2O_3 \cdot 2SiO_2 \cdot 2H_2O$	$KAl_2(OH)_2[AlSi_3(O,OH)_{10}]$	%
SiO ₂	54	69	35/80
Al ₂ O ₃	46	23	8/30
TiO ₂	0	0	0.3/2
Fe ₂ O ₃	0	0	2/10
CaO	0	0	0.5/15
MgO	0	0	0/5
Na ₂ O	0	0	0.1/1.5
K ₂ O	0	7	0.5/4.5
CO ₂	0	0	0/15

Les observations démontrent que l'activité d'une argile est constante et que chaque type d'argile a une activité qui lui est propre. Plus la surface spécifique est grande, plus le nombre de substitutions est grand et cette activité est d'autant plus élevée (voir **tableaux 3-6** et **3-7**).

Table 3-6

Surface spécifique des particules argileuses en m²/g [Eslinger & Peaver, 1988].

Argile	Smectite	Illite	Kaolinite	Chlorite
Surface interne	750	5	0	0
Surface externe	50	25	15	15
Surface totale	800	30	15	15

Tableau 3-7

Limites d'Atterberg et indice de plasticité de certains minéraux argileux [Cornell, 1951]

Argile	Ions métalliques	Limite de plasticité (%)	Limite de liquidité (%)	Indice de plasticité (%)
Smectites	Na	54	710	656
	K	98	660	562
	Ca	81	510	429
	Mg	60	410	350
	Fe	75	290	215
Illite	Na	53	120	67
	K	60	120	60
	Ca	45	100	55
	Mg	46	95	49
	Fe	49	110	61
Kaolinite	Na	32	53	21
	K	29	49	20
	Ca	27	38	11
	Mg	31	54	23
	Fe	37	59	22

Les surfaces totales des smectites sont beaucoup plus importantes que celles des illites et des kaolinites et leur activité électrochimique est plus forte par rapport aux autres minéraux argileux. Par conséquent leur indice de plasticité est beaucoup plus grand.

Caractéristiques des principales argiles françaises pour terre cuite [Alviset, 1987]

Les roches argileuses employées en terre cuite en France sont souvent de nature chimique et minéralogique variées (de type illitique ou kaolino-illitique). Des données sur différentes argiles française sont présentées dans le **tableau 3-8**.

Tableau 3-8

Les principales argiles utilisées dans la production des produits de terre cuite en France [Kornmann, 2005]

	A	B	C	D	E	F	
Origine	bourgogne	Marseille	Schiste Lyon	Sud de Paris	Loess Alsace	Lehm Nord	Limites Courantes
Produit	Tuile	Tuile	Boisseau	Brique apparente perforée	Brique perforée	Brique pleine	
Perte au feu %	7	15	11	8	16	3	3/18
Composition chimique %							
SiO ₂	61.5	42.6	51.5	58.9	50.9	77.8	35-80
Al ₂ O ₃	18.7	17.5	20.7	24	7.3	9.3	8-30
Fe ₂ O ₃	8	6	6.2	5.4	2.9	4	2-10
CaO	1	12	5	0.7	17	1.3	0.5-18
MgO	1	2.6	1.9	0.4	2.6	0.8	0-5
Na ₂ O	0.4	0.4	0.7	0.1	0.9	0.9	0.1-1.5
K ₂ O	2	2.5	2.1	0.9	0.9	2	0.1-4.5
SO ₂	-	-	-	-	-	-	0-4
Minéralogie	Illite, Mica, Quartz	Illite, Calcaire, Quartz	Illite, Quartz	Kaolinite, Quartz	Calcite , Illite	Quartz, Illite	
Humidité de façonnage %	25	26	25	27	20	24	
Porosité après cuisson à 950°C %	4.6	18.5	18.6	12	32.4	12.6	

La faible humidité de façonnage de l'argile d'Alsace (E) est due à la faible concentration en fines. On note aussi que les argiles calcaires (cas de l'argile d'Alsace) sont les plus poreuses après cuisson (présence de calcite).

Influence de la composition minéralogique

La composition minéralogique de l'argile peut avoir certaines conséquences sur les propriétés du produit final et sur le procédé de fabrication. Le **tableau 3-9** présente les principales conséquences liées à la minéralogie de l'argile.

Tableau 3-9

Les principales conséquences liées à la minéralogie de l'argile [Kornmann, 2005]

Minéral	Plasticité, cohésion, susceptibilité aux feuilletages	Difficulté de séchage	Cuisson
Kaolinite	Augmente la plasticité	Difficulté limitée	Rend plus réfractaire, élargit la zone de vitrification
Illite	Possède une bonne plasticité	Difficulté moyenne	Agit comme flux grésant/fondant
Smectite Montmorillonite	Possède une très grande plasticité et grande cohésion	Grande difficulté, retrait important et rétention capillaire	Améliore la compacité
Mica (muscovite)	Réduit la plasticité, favorise les feuilletages, effet dégraissant	Limitée	
Quartz	Réduit la plasticité et la cohésion, effet dégraissant et favorise les feuilletages	Limitée	Rend plus réfractaire, apporte sensibilité au refroidissement (point de quartz)
Feldspath	Réduit la plasticité, effet dégraissant	Limitée	Agit comme flux grésant au-dessus de 1000°C
Carbonates	Effet dégraissant	Limitée	Action sur la couleur, augmente la porosité
Oxyde de fer	Limitée	Limitée	Action sur la couleur, agit comme flux grésant

III.3.2. Eléments dégraissants

Vu leur forte plasticité, les argiles naturelles peuvent entraîner des difficultés de fabrication (une forte humidité de façonnage, un séchage lent et un retrait de séchage important). Pour réduire la plasticité de l'argile, il est donc nécessaire d'utiliser des éléments de nature non plastique « dégraissants » qui donnent aux produits une texture moins compacte. Cela facilite l'évacuation d'eau pendant le séchage et les dégagements gazeux pendant la cuisson et permet une meilleure oxydation à cœur des produits en limitant ainsi l'apparition de cœur noir. En revanche, l'utilisation des dégraissants diminue la plasticité du mélange et réduit la compacité et les propriétés mécaniques après cuisson. Parmi les éléments dégraissants les plus utilisés, on peut citer :

- Le sable de granulométrie 0.2 à 1 mm, à des doses pouvant atteindre 30 %. Le sable est généralement constitué de silice, de feldspaths et de mica. Le quartz est stable thermiquement, mais il subit des transformations allotropiques à 573°C (point de quartz : cf. IV.2.2.4).
- La chamotte : il s'agit de l'argile déjà cuite. Elle est fréquemment utilisée pour la production de boisseaux de terre cuite. L'ajout de la chamotte donne une

texture grossière et engendre une baisse de la dilatation thermique et donc une amélioration de la résistance au choc thermique. Elle diminue le grésage et favorise la production de produits poreux [Fabbri *et al.*, 1997].

- Les cendres volantes de centrales thermiques. Ce matériau est utilisé dans différents pays comme l'Allemagne, l'Angleterre et la Chine, à des doses variant entre 10 et 50 % [Kalwa *et al.*, 1983 ; Mukherji *et al.*, 1993 ; Guler *et al.*, 1995 ; Yuping, 1998 ; Guo, 2000 ; Shangyou, 2000 ; Zejiang, 2000].
- Les roches broyées (basaltes, micaschistes, granite). L'utilisation des roches dures provoque, suivant la température de fusion de la roche, un effet comparable à celui de la chamotte ou un grésage [Menezes *et al.*, 2005 ; Segadães *et al.*, 2005].

Le **tableau 3-10** montre l'efficacité du dégraissage pour une argile très plastique.

Tableau 3-10

L'effet des dégraissants sur les propriétés des produits en terre cuite

%	Argile plastique 100 %	Argile 80 % Sable 20 %	Argile 70 % Sable 30 %
Humidité de façonnage	35	26	24
Retrait de séchage	8	7.2	6.7
Retrait après cuisson 900°C	0.8	0.3	0.3
Retrait après cuisson 1000°C	4.4	3	2.2
Porosité 900°C	8	8	8.2
Porosité 1000°C	2.6	4	5.9

On note que les dégraissants limitent l'humidité de façonnage et le retrait de séchage et de cuisson (surtout au-delà de 900°C), mais ils augmentent la porosité et affaiblissent les propriétés mécaniques des produits finals.

III.3.3. Éléments porosants

Dans le but de diminuer la conductivité thermique de la brique pour obtenir des résistances thermiques élevées des murs, les fabricants utilisent des ajouts dits porosants, qui augmentent la porosité de produit final. Il existe plusieurs types d'ajout qui augmentent la porosité comme :

- Le calcaire/carbonates qui ont un effet porosant et créent des microporosités à haute température [Esbert *et al.*, 1997 ; Moropoulou *et al.*, 2001].
- Les composés inertes et stables thermiquement : argile poreuse, vermiculite (phyllosilicates), verre poreux.
- Les composés organiques : déchets organiques (boue de papeterie, de brasserie, de tannerie, de station d'épuration), déchets végétaux, sciures et écorces de bois, papier, polystyrène expansé, poudre de charbon. Ces composés vont se décomposer, brûler et dégager du CO₂, ce qui engendre une augmentation de porosité [Elert *et al.*, 2003]. La quantité maximale d'additions porosant est limitée par la baisse associée des propriétés mécaniques de la brique.

III.4. Techniques de fabrication

Bien que les produits en terre cuite soient multiples, leur processus de fabrication est similaire et se succède dans un ordre identique. La **figure 3-2** présente le schéma principal de fabrication d'un produit en terre cuite.

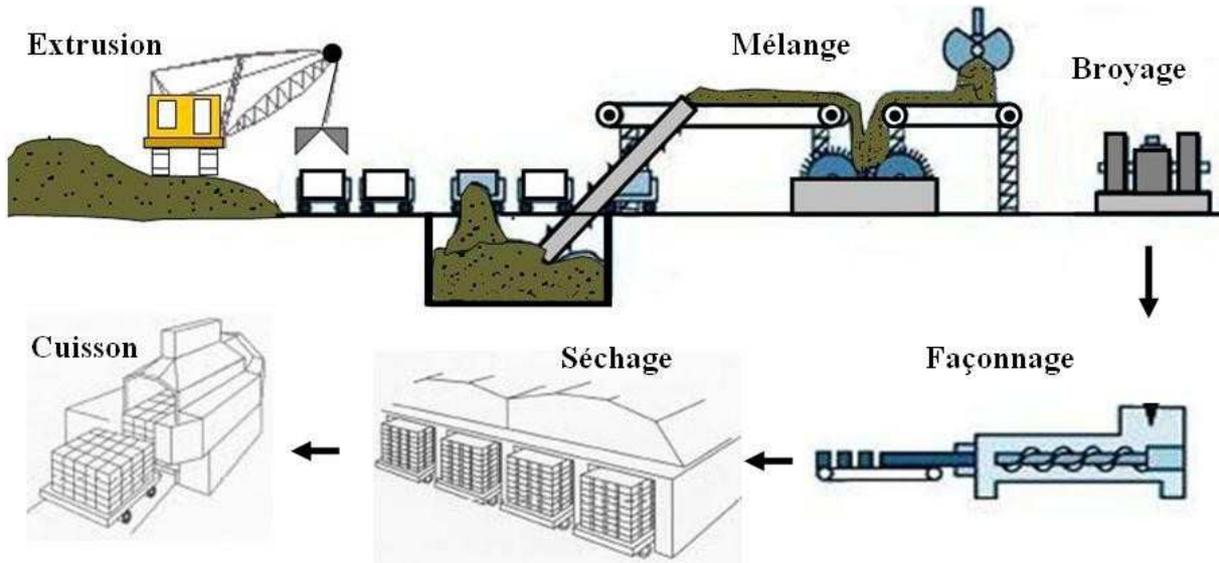


Fig.3-2 : *Processus de production de brique en terre cuite*

III.4.1. Préparation de la pâte

La préparation de la pâte a pour but d'éliminer les cailloux et les impuretés, doser les composants, homogénéiser et humidifier le mélange pour obtenir la bonne plasticité de la pâte.

La préparation peut être sèche, semi-humide et humide selon l'humidité de l'argile de la carrière, le procédé de mise en forme, la qualité recherchée du mélange (particulièrement sa granulométrie).

Préparation sèche

La préparation sèche s'applique aux argiles ayant une humidité jusqu'à 10 %. Elle est développée dans les régions sèches, car à la sortie de la carrière, l'argile est pratiquement sèche. Elle se développe aussi dans les régions à climat humide, mais elle est plus coûteuse à cause des coûts de séchage. Industriellement la préparation sèche permet d'atteindre des granulométries maximales de 150 µm, soit cinq fois meilleures que celles obtenues par la préparation semi-humide car les particules sèches s'effritent alors que les particules plus humides s'écrasent par déformation plastique. Elle permet donc d'obtenir des granulométries très fines. Cette granulométrie assure une grande homogénéité du produit, une grande qualité de peau et un bel aspect esthétique, un frittage à plus basse température et une meilleure résistance mécanique. La préparation sèche est particulièrement intéressante pour les argiles calcaires, car la granulométrie fine permet d'éviter les grains de chaux responsable de ce qu'on appelle le phénomène

de point de chaux décrit dans le chapitre 4. Les matières premières sont broyées et malaxées dans des broyeurs à meules verticales ou à cylindres horizontaux. Ensuite, la plasticité de la pâte est réglée par ajout d'eau lors de la mise en forme.

Préparation semi-humide

La préparation semi-humide est la méthode la plus fréquente en France, car les deux autres méthodes sont plus coûteuses. Elle comprend les étapes suivantes :

- Elimination des impuretés : cailloux, racines, déchets métalliques, gros blocs de calcaire.
- Dosage et mélange des différents composants: argile, dégraissant, ajouts.
- Broyage : il s'effectue au moyen des broyeurs à meules verticales, où deux ou quatre meules roulent autour d'un axe vertical et presse l'argile au travers d'un fond perforé.
- Humidification et homogénéisation : cette opération s'effectue au moyen des malaxeurs à tamis.

III.4.2. Façonnage

Le façonnage donne à la pâte une cohésion suffisante, grâce à l'élimination de l'air occlus dans l'argile (désaération) et à l'amélioration de l'état plastique de la pâte, soit par mouillage additionnel, soit par une injection de vapeur 'eau. Deux procédés sont principalement utilisés dans l'industrie de terre cuite : le filage (moulage ou extrusion) et le pressage. Le procédé de mise en forme le plus couramment appliqué aux pâtes plastiques est l'extrusion. Elle permet d'obtenir un produit de forme définitive.

III.4.3. Séchage

Le séchage a pour but d'éliminer la plus grande partie de l'eau qui se trouve dans les produits après façonnage (15-30 % par rapport à la masse sèche). C'est une phase délicate et importante de la fabrication qui doit être minutieusement contrôlée pour éviter des fissurations, des retraits différentiels importants et des distorsions des produits en terre cuite. Le séchage est réalisé progressivement en contrôlant deux paramètres: la température et l'humidité. On distingue deux phases:

- Le départ de l'eau colloïdale qui sépare les différentes micelles d'argile et intervient dans la plasticité. Le volume de retrait correspond au volume de l'eau retiré.
- Le départ de l'eau d'interposition qui se trouve libre dans les pores de l'argile. Le départ de l'eau est totalement compensé par la création de porosité (sans retrait). L'argile dans cette phase perd complètement sa plasticité.

Après leur passage au séchoir, les produits ne contiennent plus que 1 à 2 % d'eau résiduelle. Le **tableau 3-11** présente quelques défauts qui sont liés directement au séchage.

Tableau 3-11*Les défauts liés au séchage*

manifestations	Causes probables	Remèdes
Déformation du produit à l'entrée par absorption d'humidité	Condensation de l'air humide sur les produits entrant	Filage à chaud, changement des paramètres de l'air d'entrée
Microfissures	Vitesse de séchage non adaptée	Diminution de la vitesse de séchage. Augmentation de la longueur du séchoir. Amélioration du mélange.
Baisse des performances mécaniques du produit cuit	Séchage trop rapide. Microfissures	Diminution de la vitesse de séchage. Augmentation de la longueur du séchoir. Amélioration du mélange
Efflorescence : taches blanches en sortie de séchoir	Présence de sels solubles comme CaSO_4 dans la matière première, drainés en surface au séchage.	Ajout de carbonate de baryum BaCO_3
Fentes en long ouvertes d'épaisseur décroissante, apparaissant n'importe où à partir de la périphérie	Vitesse de séchage trop importante. Prise de retrait trop rapide en première phase	Diminution de la vitesse de séchage. Augmentation de la longueur du séchoir. Amélioration du mélange
Fentes diverses obliques et transverses sur toute la périphérie	Trop fort gradient d'humidité dans le produit. Superposition des zones de séchage	Retarder la zone de séchage rapide. Améliorer l'homogénéité
Produits sortant trop sec, formation de microfissures sur certaines argiles	Reprise d'humidité créant des variations dimensionnelles	Diminution de la température et du pouvoir séchant en fin de séchage

III.4.4. Cuisson

La cuisson donne aux produits séchés leurs caractéristiques finales adaptées à leur utilisation pour la construction. Cette phase doit répondre à des impératifs techniques et économiques et doit être conduite de façon à obtenir des produits de caractéristiques fonctionnelles satisfaisantes. Il s'agit donc de contrôler plusieurs paramètres qui influencent la phase de cuisson tels que la température, la durée de cuisson et l'atmosphère à l'intérieur du four.

Les températures de cuisson sont comprises en général entre 800 et 1.500 C. Le **tableau 3-12** donne les températures de cuisson de différents produits céramiques et en terre cuite.

Tableau 3-12

Température de cuisson de différents produits en terre cuite [Kornmann, 2005]

Produit	Intervalle de température (°C)
Briques pleines	1000 - 1250
Briques perforées	900 - 1000
Briques de pavage	1050 - 1200
Tuiles	980 - 1100
Carreaux céramiques	1150 - 1250
Porcelaines	1150 - 1250

III.5. Influence de la température sur les constituants

Différentes réactions chimiques et physiques complexes se produisent dans le mélange avec la montée de température pendant la cuisson, ce qui provoque des modifications de porosité, de masse volumique, de dimensions et de propriétés mécaniques du produit final.

- Jusqu'à 200°C environ, dégagement de l'eau résiduelle de séchage et de l'eau d'hydratation.
- De 200 à 450°C, destruction des matières organiques en s'oxydant avec l'air qui diffuse dans les pores. Si le milieu n'est pas oxydant, des résidus carbonés se décomposent et forment des hydrocarbures et du carbone qui reste à l'intérieur de la brique, ce qui peut faciliter la présence du cœur noir. Les hydroxydes de fer [goethite : $\text{FeO}(\text{OH})$] se transforment selon la possibilité d'oxydation soit en hématite (Fe_2O_3) avec la coloration rouge, soit en magnétite (Fe_3O_4) avec une coloration bleu noire.
- De 400 à 680°C, destruction des minéraux argileux (kaolinite, illite à 550°C) avec le départ d'eau de constitution (dehydroxylation) [Cultrone *et al.*, 2001 ; Evans *et al.*, 1958]. Des composés très fins et désordonnés (métakaolin) se forment et un début de retrait de cuisson est observé à ce stade. A 573°C le quartz change de forme cristallographique (point de quartz : cf. IV.2.2.4).
- De 750 à 850°C, décomposition du carbonate [CaCO_3] en chaux vive [CaO] accompagnée par le dégagement du CO_2 . Cette réaction est un équilibre dont les températures exactes dépendent de l'atmosphère gazeuse.
- Au-delà de 850°C, deux phénomènes sont observés [Albenque, 1974] selon la minéralogie du mélange : Les argiles non-calcaires développent un frittage liquide donnant aux produits finals une structure liée par une phase vitreuse. En revanche, les argiles calcaires [teneur élevée en calcite CaCO_3 , et dolomite $\text{CaMg}(\text{CO}_3)_2$] ne développent pratiquement pas de phase vitreuse et la cristallisation des produits céramique s'effectue en phase solide. Le CaO disparaît et nouvelles phases commencent à se former comme : les silicates de calcium (wollastonite : CaSiO_3), les aluminosilicates de calcium (anorthite : $\text{CaO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2$; gehlenite : $2\text{CaO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{SiO}_2$) (voir IV.2) [Cultrone *et al.*, 2001 ; Riccardi *et al.*, 1999]. La dolomie entraîne la formation de silicates de calcium/magnésium (diopside). Le fer n'apparaît plus comme hématite, mais se combine aux aluminosilicates.

III.6. Cas des Briqueteries du Nord (BdN)

Les briqueteries du Nord ont été créées en 1905. Leur production se répartie sur trois usines : Templeuve, Lomme et Leers. La capacité de production de ces trois usines correspond à 2500 logement par an.

Le processus de production de briques à Templeuve et à Lomme est entièrement automatisé (cf. **fig.3-3**). Le sable et l'argile sont déchargés dans un distributeur. Le mélange est en suite porté par un tapis roulant à un broyeur à meule. Le contrôle de l'humidité est fondamental dans le façonnage pour assurer la constance des propriétés mécaniques du mélange. L'humidité initiale peut varier en fonction des conditions de stockage et des conditions atmosphériques. On travaille généralement avec des concentrations d'eau entre 15 et 30 % et à Templeuve la teneur en eau est autour de 22% (par rapport au poids sec). Le façonnage est réalisé par extrusion. Une pompe à vide est utilisée pour expulser l'air du mélange. La désaération de la pâte par mise sous vide avant son passage dans l'extrudeuse a pour but d'améliorer la plasticité et la cohésion, ce qui facilite le passage au travers la filière. Le colombin fourni par la filière est découpé en une dizaine de briques qui sont empilées sur des voitures et placées dans les chambres de séchage, où elles sont séchées pendant 65 heures (cf. **fig. 4-11**). A la sortie du séchoir, les briques sont soumises à la cuisson à des températures élevées (900-1150 °C) (cf. **fig. 4-12**).

Les essais industriels, décrits dans le chapitre 5, ont été réalisés à l'usine de Templeuve. Cette usine utilise l'argile et le sable de Templeuve pour la production de briques. Le **tableau 3-13** donne la composition minéralogique et la distribution granulométrique de ces matériaux. La présence assez importante des smectites dans la fraction argileuse de l'argile de Templeuve lui apporte une bonne plasticité et une forte cohésion.

Tableau 3-13

Composition minéralogique et distribution granulométrique du sable et de l'argile de Templeuve

	Sable de Templeuve	Sable de Rhein	Argile de Templeuve
Composition minéralogique	Quartz: SiO ₂ Gypsum: CaSO ₄ 2H ₂ O Feldspath: anorthite (Ca,Na)(Si,Al) ₄ O ₈	Majoritairement de quartz: SiO ₂	Quartz: SiO ₂ Fraction argileuse (<2µm): Smectite: 66% Illite: 16% Kaolinite: 12% Chlorite: 6% Feldspath: albite NaAlSi ₃ O ₈ Mica : muscovite (K,Na)Al ₂ (Si,Al) ₄ O ₁₀ (OH) ₂
Granulométrie (%)			
Sable grossier : > 500µm	5		(cf. granulométrie laser donnée dans le chapitre 2)
Sable moyen : 250 – 500 µm	10		
Sable fin: 62.5 – 250 µm	77.8		
Silt : 2.5 – 62.5 µm	7.2		
Argile: < 2.5 µm	-		

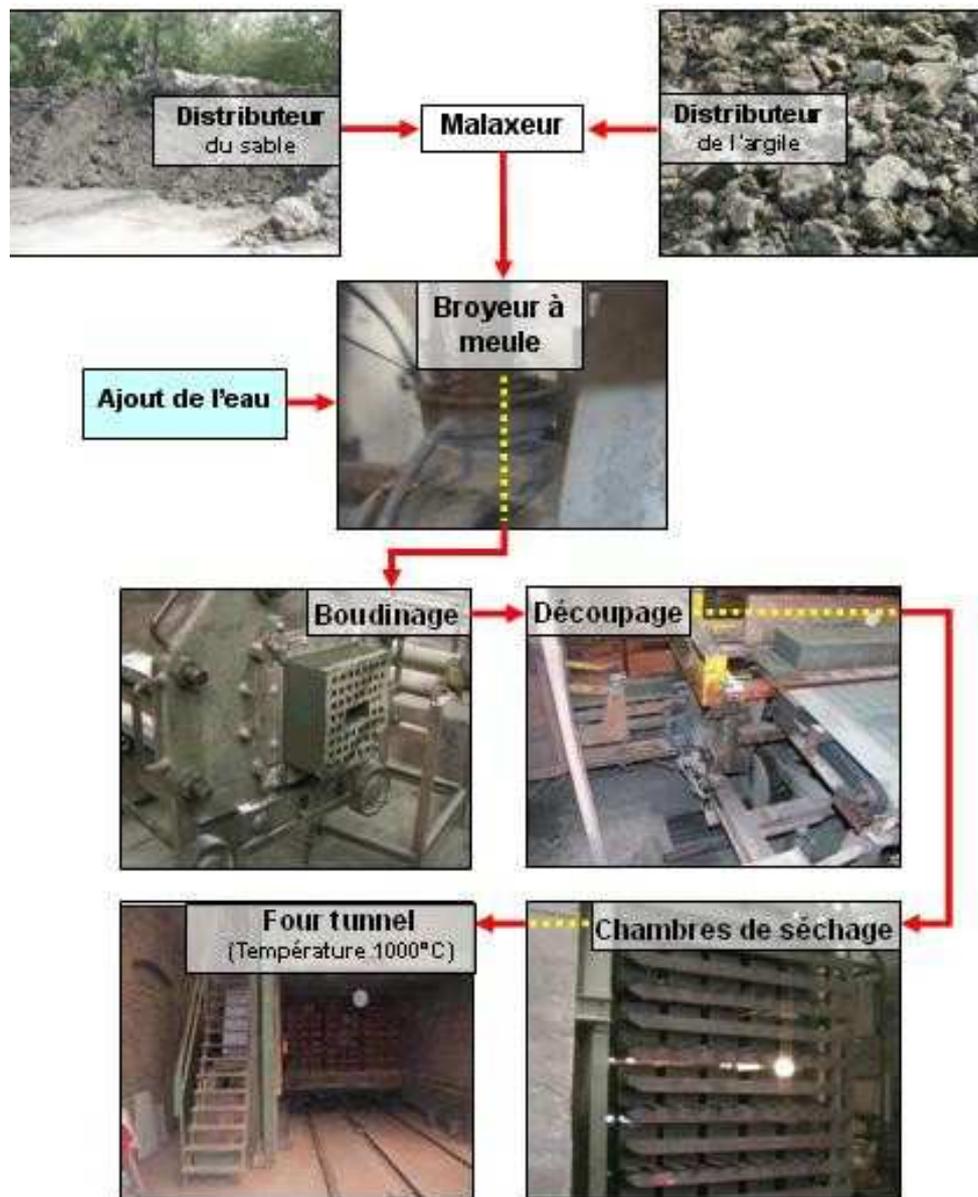


Fig. 3-3 : *Processus de production de brique à la Bdn*

IV. Conclusion

La production française des produits en terre cuite représente 6 % du marché des produits de construction en France. La brique de mur représente environ 45 % du tonnage de cette industrie. Récemment la production des briques de mur est en expansion grâce aux propriétés thermiques et mécaniques des briques à perforations verticales qui font à la fois la structure et l'isolation thermique.

Les matières premières utilisées dans la fabrication des produits de terre cuite sont principalement les terres argileuses, les dégraissants (sables de quartz, chamotte, cendre volante, des roches dures broyées : basaltes et micaschistes) et l'eau. Les roches argileuses employées en terre cuite en France sont souvent de nature chimique et minéralogique variées. Elles donnent aux produits leur aptitude au façonnage et leurs propriétés mécaniques après cuisson alors que les

dégraissants sont utilisés pour fournir la structure (squelette) et réduire la plasticité de la pâte. La composition minéralogique de l'argile peut avoir certaines conséquences sur les propriétés du produit final et sur le procédé de fabrication. A titre d'exemple la présence de quartz, de mica et de feldspath réduit la plasticité et la cohésion et favorise les feuillements.

Dans son processus (entièrement automatisé) de production de briques la Briqueterie du Nord (BdN) utilise l'argile de Templeuve et deux types de sable (de Templeuve et de Rhein). Le sable de Rhein est plus grossier que celui de Templeuve. Il est utilisé sur tout pour régler le retrait de produit final. L'analyse DRX a montré que l'argile de Templeuve se compose principalement de quartz et que la fraction argileuse est composée majoritairement de smectites (66%) ce qui lui apporte une bonne plasticité et une forte cohésion. Les deux types de sable sont composés majoritairement de quartz. Ceci permet au sédiment traité de substituer à l'argile et au sable selon les propriétés recherchées du produit final.

Chapitre 4

Valorisation des sédiments
fluviaux pollués après inertage
dans la brique cuite : Etude en
laboratoire

IV.1. Introduction

L'incorporation dans les produits de terre cuite et dans la céramique rouge est de nos jours une solution environnementale très prometteuse pour répondre au problème du devenir d'une grande variété de déchets solides. [Segadães *et al.*, 2004 ; Andrés *et al.*, 2004; Dondi *et al.*, 1997 (1 et 2)]. La variabilité naturelle des argiles, l'utilisation des techniques de traitement relativement simples aussi bien que les faibles performances techniques exigées pour les produits, facilitent la présence d'une quantité significative d'impuretés dans la structure finale du produit. L'étape de cuisson, fondamentale à la consolidation de particules, permet : la volatilisation des composés dangereux, le changement des structures chimiques des matériaux et l'inertage des composés potentiellement toxiques et dangereux par la fixation de ces composés dans la phase vitreuse.

Plusieurs types de déchets ont été utilisés en tant que matière première pour la brique cuite : les sédiments marins légèrement pollués [Hamer *et al.*, 1999 et 2002 ; Karius *et al.*, 2001], les sédiments des bassins de décantation mélangés aux cendres volantes [Hsu *et al.*, 2003], les boues résultant du traitement des eaux industrielles [Liew *et al.*, 2004; Lin *et al.*, 2001; Weng *et al.*, 2003], la cendre résultant de l'incinération des boues d'épuration [Anderson *et al.*, 1996 et 2002; Wiebusch *et al.*, 1998], les cendres volantes [Lingling *et al.*, 2005], les déchets générés par le découpage du granit [Menezes *et al.*, 2005], le résidu du traitement d'eau [Huang *et al.*, 2005] et la poussière d'acier [Dominguez *et al.*, 1996].

Toutes ces études présentées portaient sur l'utilisation des matériaux plus ou moins nouveaux dont les performances et les propriétés ne sont pas assez identiques. Ces travaux ont permis d'éclairer les problèmes liés à la mise en œuvre car ils sont très riches en information et renseignement.

Par ailleurs, les matériaux étudiés par ces auteurs sont légèrement pollués et différents des sédiments fluviaux de Lille qui ont le caractère d'être fortement pollués. Le **tableau 4-1** présente une comparaison entre le sédiment de Lille et autres types de déchets utilisés dans la production des briques cuites.

Tableau 4 -1 : Teneurs en métaux lourds des déchets utilisés dans la production de briques cuites, en mg/kg de la masse sèche.

Type de déchets	Cadmium (Cd)	Chrome (Cr)	Cuivre (Cu)	Plomb (Pb)	Zinc (Zn)
boues du traitement des eaux usées [Weng <i>et al.</i> , 2003]	3	537	29	3	264
boues résultant du traitement des eaux industrielles [Lin <i>et al.</i> , 2001]	4	1.2	5	310	2.9
Sédiments marins de Bremen (Allemagne) [Hamer <i>et al.</i> , 1999]	6	131	87	122	790
Sédiments fluviaux de Lille (France)	27.4	940	425	922	3966
Niveau N1	1.2	90	45	100	276
Niveau N2	2.4	180	90	200	552

On note que les teneurs en métaux lourds dans le sédiment fluviaux de Lille sont beaucoup plus élevées que celles dans les autres types de déchets et dépassent largement le niveau N2. En revanche, pour les autres types de déchets,

les concentrations de la plupart des métaux lourds sont entre les niveaux N1 et N2.

IV.2. Protocol scientifique

L'étude en laboratoire s'est déroulée en deux phases. La première phase permettait de découvrir le comportement des sédiments traités dans les briques cuites en fonction de la quantité des sédiments dans le mélange et d'en évaluer un optimum de substitution. La deuxième phase permettait d'évaluer l'influence de certains paramètres comme la granulométrie du sédiment et la température de cuisson sur les propriétés intrinsèques de la brique produite.

Le mélange utilisé actuellement à la Briqueterie du Nord (BdN) se compose de (en matière sèche) : $\approx 25\%$ de sable (20 % de sable de Templeuve et 5 % de sable de Rhein) et 75 % d'argile de Templeuve (**fig.4-1**). La composition minéralogique et la granulométrie des sédiments les rendent utilisables pour substituer l'argile naturelle et le sable de quartz utilisés actuellement à la BdN.

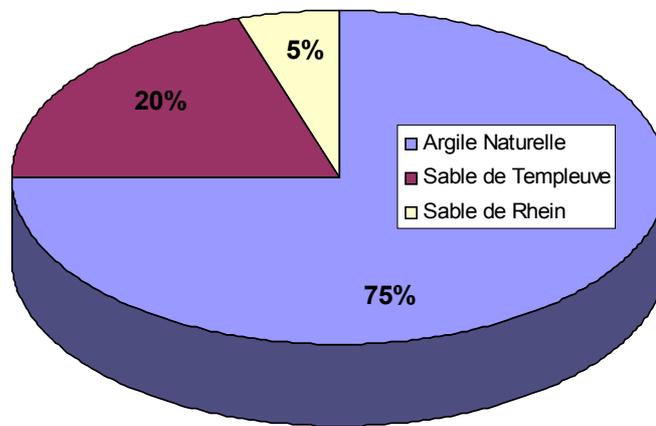


Fig. 4-1 : Composition de la brique utilisée actuellement à la BdN

IV.2.1. Préparation des échantillons

L'objectif de cette phase était de caractériser le comportement des briques produites à base de sédiment fluvial traité en fonction du taux de substitution. Pour cela, quatre mélanges ont été préparés. Leurs compositions (base de masse sèche) sont données dans le **tableau 4-2** ainsi que leurs codes d'identification. La quantité de sable est fixe (20 %) pour tous les mélanges, tandis que la proportion des sédiments change de 0 à 45 %. Après séchage à de 60°C, l'argile a été broyée a fin de pouvoir la mélanger avec les sédiments et le sable.

Tableau 4-2

Les 4 mélanges adaptés pour la préparation des échantillons de brique (% de la matière sèche)

Mélange	Sable	Sédiments traités	Argile
F ₀	20%	0%	80%
F ₂₅	20%	25%	55%
F ₃₅	20%	35%	45%
F ₄₅	20%	45%	35%

IV.2.1.1. Etude granulométrique des mélanges

La granulométrie du mélange (sédiment+sable+argile), est un paramètre assez important qui influence les propriétés physiques, mécaniques et hydrauliques du produit final. La distribution granulométrique a aussi une grande importance sur la compacité et la porosité du produit sec. Si le produit sec est très poreux, les échanges hydriques sont facilités de même que le passage de gaz au cours de la cuisson [Ramadan *et al.*, 2001]. Une granulométrie serrée (toutes les particules ont pratiquement le même diamètre équivalent) ne permet pas d'obtenir une forte compacité. Une des visualisations les plus simples de l'empilement de particules est celui de sphères ordonnées de manière identique à celle de structures cristallines. Ainsi, pour une structure cubique simple, un empilement de sphères de rayon uniforme r aura une compacité maximale de 52.4 % tandis que pour une structure hexagonale compacte, l'empilement sera plus dense (74 %). Pour un empilement aléatoire de sphères, la compacité est variable selon les conditions utilisées pour obtenir cet empilement et pourra atteindre 64 %. Cependant, les particules de sédiment traité ne sont pas de la même taille et l'évaluation de la densité de leur empilement devient plus complexe. De nombreux modèles expérimentaux et empiriques ont été proposés pour évaluer la porosité d'un empilement de particules en fonction de plusieurs paramètres comme la sphéricité, la distribution granulométrique, la taille moyenne des particules et l'effet de la présence d'agglomérats dans le mélange. La sphéricité joue un rôle important dans la densification des particules lors de l'empilement. La tendance générale est la suivante: plus une particule est sphérique, plus son empilement est facilité et plus sa densité finale sera élevée [Knight, 2001 ; German, 1989]. Une distribution granulométrique étalée permet une densification plus importante de l'empilement [Nolan *et al.*, 1994]. La présence d'agglomérats réduit fortement la densité finale d'empilement [Knight, 2001].

Litzow et Fuller indiquent les distributions qui donnent la compacité la plus élevée pour des grains arrondis (F) et anguleux (L) (**fig.4-2**).

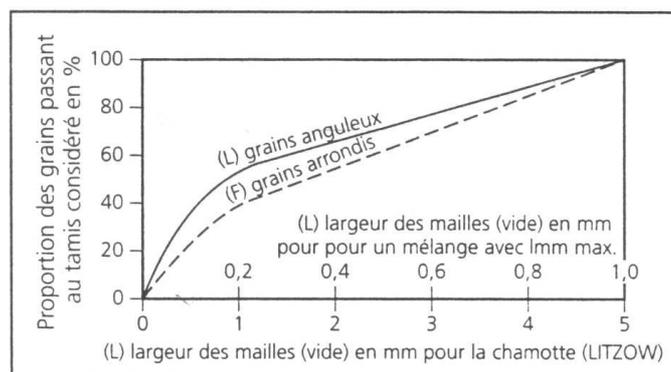


Fig.4-2 : Répartition des grains pour la compacité maximale [Jouenne, 1984]

L'abscisse peut facilement s'adapter à la dimension maximale des grains d'un mélange (ici, 1 mm). Globalement si D est le plus gros diamètre, il faut :

- 30 % de grains compris entre D et $D/2$.
- 40 % de grains entre $D/2$ et $D/10$.

- 20 % de grains entre D/10 et D/100.
- 10 % de grains < D/100.

On remarque qu'une faible quantité de fine (< 10 %) est nécessaire. En revanche, pour obtenir une plasticité de façonnage acceptable il faut souvent utiliser plus d'argile que ce qui est nécessaire pour la compacité maximale. De plus pour obtenir une compacité maximale, il faut non seulement une distribution granulométrique contenue, mais aussi un procédé de fabrication qui permette un empilement optimal des particules ce qui n'est pas forcément le cas de l'extrusion en voie semi-humide (procédé de mise en forme le plus courant aux briqueteries). Niesper et Winkler [Winkler, 1954] ont proposé des diagrammes qui relient la granulométrie optimale et le type de produit en terre cuite (**fig.4-3**). On note que les très grandes concentrations de fines sont à écarter et que les granulométries grossières sont acceptables pour les briques alors que pour les tuiles une granulométrie avec un pourcentage important d'éléments fins (20 – 50 %) est recherchée.

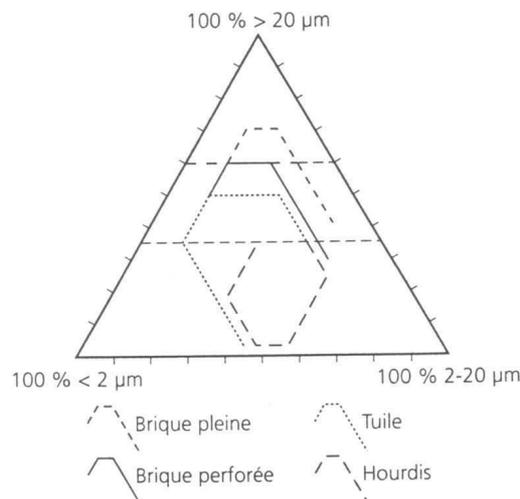


Fig.4-3: Diagramme de Winkler

Vu la friabilité et la faible cohésion des agglomérats des sédiments traités et pour étudier l'influence de malaxage sur la granulométrie du mélange, une analyse granulométrique a été réalisée avant (mélange manuel) et après malaxage (malaxeur électrique). Le mélange, que ça soit à la main ou au malaxeur, a été réalisé à sec pendant 15 minutes. Les courbes granulométriques des mélanges sont données sur les **fig. 4-4** et **4-5**.

On constate que la différence entre la granulométrie du mélange avant et après malaxage est négligeable et cette différence est liée à la faible cohésion entre les particules agglomérées des sédiments calcinés.

Le coefficient d'uniformité (C_U) qui permet d'exprimer l'étalement de la courbe granulométrique est égal à : 11, 12, 12 et 11 pour F_0 , F_{25} , F_{35} et F_{45} respectivement. Ces valeurs se situent entre 5 et 20, ce qui permet de définir les distributions granulométriques des quatre mélanges comme semi-étaillées.

Plus le coefficient d'uniformité est petit, plus la différence entre D_{10}^* et D_{60}^* est faible et plus le diamètre équivalent des particules est uniforme et la granulométrie est très serrée.

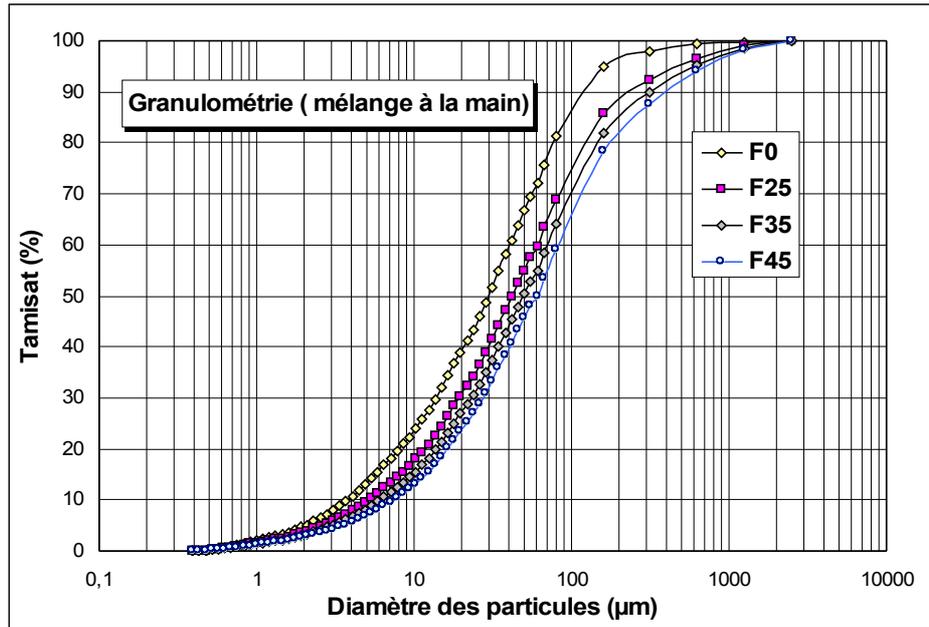


Fig. 4-4: Analyse granulométrique des mélanges (mélangés à la main)

* D_{10} , D_{60} : Diamètres effectifs des particules qui correspondent à 10 et 60 % du passant.

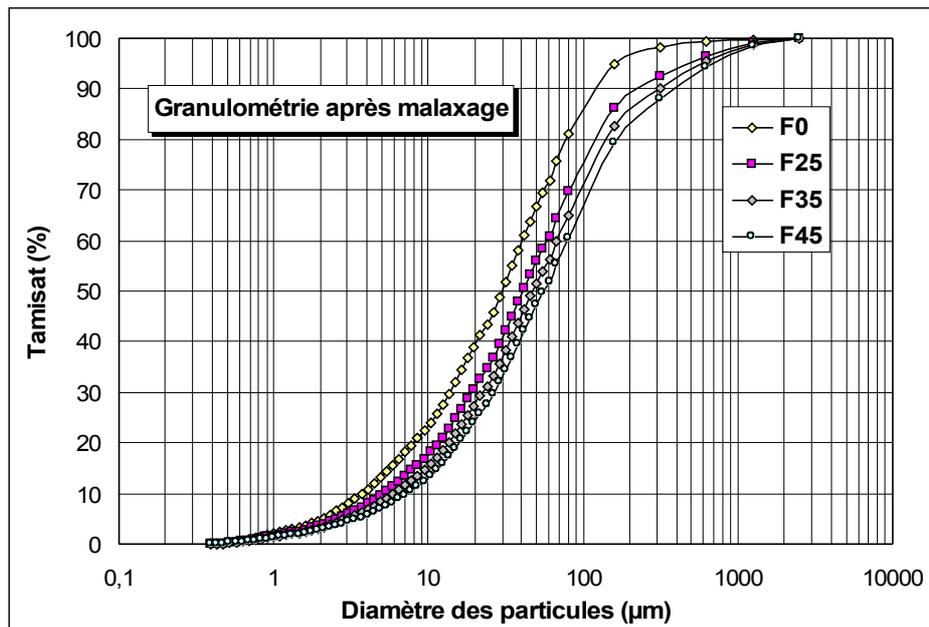


Fig. 4-5: Analyse granulométrique des mélanges après malaxage au malaxeur à lame Z.

Les fractions (argile, silt, sable) dans les quatre mélanges sont données dans le **tableau 4-3**.

Tableau 4-3

Comparaison granulométrique des quatre mélanges F_0 , F_{25} , F_{35} , et F_{45} (%)

Mélange	F_0 (mélange manuel)	F_0 (malaxeur électrique)	F_{25} (mélange manuel)	F_{25} (malaxeur électrique)	F_{35} (mélange manuel)	F_{35} (malaxeur électrique)	F_{45} (mélange manuel)	F_{45} (malaxeur électrique)
Sable grossier > 500 μm	1.5	1.5	5	3.9	6.5	6	8	6.5
Sable moyen 250 – 500 μm	1	1	4.05	4.3	6.5	5.7	7.5	7.6
Sable fin 63 – 250 μm	24	24	31	31.4	32	32.3	33.5	33.9
Silt 2 – 63 μm	67	67	55.1	55.5	50.8	51.75	47.5	48.4
Argile < 2 μm	6.5	6.5	4.85	4.9	4.2	4.25	3.5	3.6

En utilisant le système de coordonnées triangulaires donné dans le chapitre II, les quatre mélanges (avant et après malaxage) peuvent alors être classifiés comme silt sableux.

On note que l'ajout de sédiment traité, composé majoritairement du quartz, entraîne :

1. Une augmentation de la fraction sableuse.
2. Une diminution de la fraction limoneuse.

Ainsi l'ajout de sédiments traités est bénéfique, car l'augmentation de la fraction sableuse de mélange permet aux sédiments traités de jouer le rôle de dégraissant et substituer ainsi une partie du sable (utilisé généralement dans l'industrie de terre cuite en tant que dégraissant).

IV.2.1.2. Etude de plasticité des mélanges

La plasticité est une des propriétés caractéristiques des argiles. Elle permet de réaliser de grandes déformations sans perte de cohésion. Elle est influencée par de nombreux paramètres : concentration en eau, nature de l'argile, finesse et granulométrie (plus elle est fine, plus elle est plastique), forme des grains, surface et orientation des particules, agrégation des particules, présence en éléments inertes (sable) et présence des sels.

La plasticité de mélange est liée à la fraction de la granulométrie inférieure à 2 μm , qui représente la fraction argileuse. Une forte présence des particules < 2 μm offre une plasticité importante, mais nécessite en contrepartie une forte humidité de façonnage et entraîne donc des problèmes au séchage dus au fort retrait. Une faible classe < 2 μm entraîne au contraire une faible plasticité, une faible humidité de façonnage, et un faible retrait.

La cohésion, aussi appelée forces de cohésion, désigne l'ensemble des forces qui unissent les particules les attirant les unes vers les autres. Cette attraction est liée à la présence, à la surface des particules d'argile, de charges électriques. Ces charges attirent dans l'argile des molécules d'eau qui jouent le rôle de lubrifiant entre feuillets rendant plastique la pâte d'argile. Ainsi la plasticité est liée à l'activité électrochimique des minéraux argileux [Carter *et al.*, 1991] qui est liée à son tour à la surface spécifique de la fraction argileuse. Ceci pourrait s'expliquer par l'existence des forces de liaison entre les particules des minéraux

argileux eux-mêmes et les molécules d'eau : forces électrostatiques entre particules, forces dynamiques entre les filons d'eau et les particules, forces de type Van der Waals, forces de pesanteur et forces d'origine capillaire [Biarez, 1962 ; Druyanov *et al.*, 1994; Pantaleo, 1994]. Les feuillets peuvent donc glisser facilement les uns sur les autres, lubrifiés par les couches d'eau ; on dit que la pâte d'argile est hydroplastique. Avec une teneur en eau appropriée, les argiles peuvent alors être moulées, extrudées, tournées ou modelées.

On considère qu'un sol est cohérent lorsqu'il comprend plus de 50% de particules d'argile. Au contraire, les sols pulvérulents (contenant une faible fraction argileuse ou totalement dépourvus d'argile) n'offrent aucune cohésion: il est impossible de les façonner (c'est le cas du sable de quartz).

Le but de cette étude est de déterminer l'effet des sédiments sur la plasticité du mélange en mesurant l'indice de plasticité IP.

Limites d'Atterberg et indice de plasticité

Les propriétés de plasticité en fonction de l'humidité sont évaluées par la mesure de limites d'Atterberg. Les valeurs de l'indice de plasticité ainsi que les limites d'Atterberg des quatre mélanges (F₀, F₂₅, F₃₅ et F₄₅) sont donnés sur la fig.4-6.

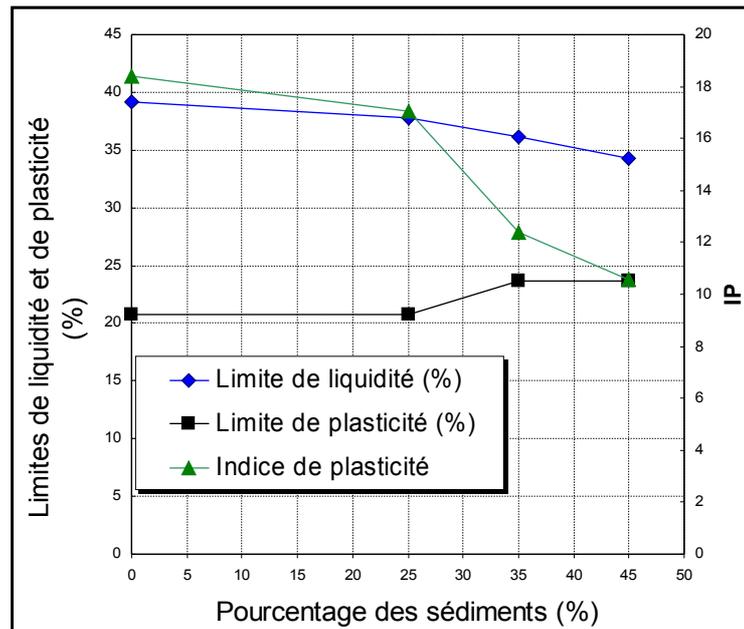


Fig.4-6 : L'indice de plasticité et les limites d'Atterberg pour les quatre mélanges

Ces résultats indiquent que l'indice de plasticité du mélange est inversement proportionnel à la quantité de sédiments introduite dans le mélange. L'ajout de 25% de sédiments traité diminue l'indice de plasticité du mélange de 7.9% par rapport au mélange standard, alors que l'ajout de 35% et 45% de sédiments fait baisser l'indice de plasticité de 48.4% et 74.4% respectivement. Ainsi l'ajout des sédiments traités affaiblit les propriétés plastiques du mélange et diminue ainsi la cohésion. Ceci est lié à la nature pulvérulente et aux propriétés non plastiques des sédiments traités composés majoritairement de quartz (> 90%), qui est connu

pour ses propriétés non plastiques et qui facilite la defloculation des particules [Vieira *et al.*, 2006]. La fraction argileuse dans ces sédiments est de l'ordre de 1.5% et est essentiellement composée de quartz, d'illite et d'oxyde de fer rouge (hématite) en grande quantité. Ceci explique la faible activité argileuse de ce matériau et la faible valeur au bleu obtenue (0.075).

Etude de la surface spécifique des mélanges

L'argile a été séchée dans une étuve à 65°C, broyée et en suite mélangée à sec (malaxeur électrique) avec le sable de Templeuve et les sédiments traités. La surface spécifique des fines a été déterminée par adsorption d'azote à l'aide d'un système ASAP 2010 (Micromeritics, U.S.A.). Cet appareil mesure une isotherme d'adsorption et de désorption, puis calcule la distribution de taille des pores selon la méthode BET. La surface spécifique des quatre mélanges est donnée sur la **figure 4-7** avec celles des sédiments et de l'argile. On voit qu'elle diminue avec l'augmentation de la proportion des sédiments. L'ajout de 25 % de sédiment traité fait diminuer la surface spécifique du mélange de 34.3 % par rapport à F0 et l'ajout de 35 et 45 % fait diminuer la surface spécifique de 61.7 et 91 % respectivement. Ce résultat est tout à fait normal puisque les sédiments traités remplacent l'argile qui a une surface spécifique égale à 45 m².g⁻¹. La fraction argileuse dans l'argile de Templeuve est composée majoritairement de smectites (66%) et d'illite (16%). Leurs surfaces spécifiques sont égales à 800 et 30 m².g⁻¹ respectivement. En revanche, la surface spécifique des sédiments traités est de l'ordre de 5.9 m².g⁻¹. Cette faible valeur est liée au frittage des sédiments. En effet le frittage thermique provoque le colmatage de la microporosité et conduit par la même occasion à l'augmentation de la cohésion des agglomérats que nous avons observés, ce qui résulte en une diminution de la surface spécifique.

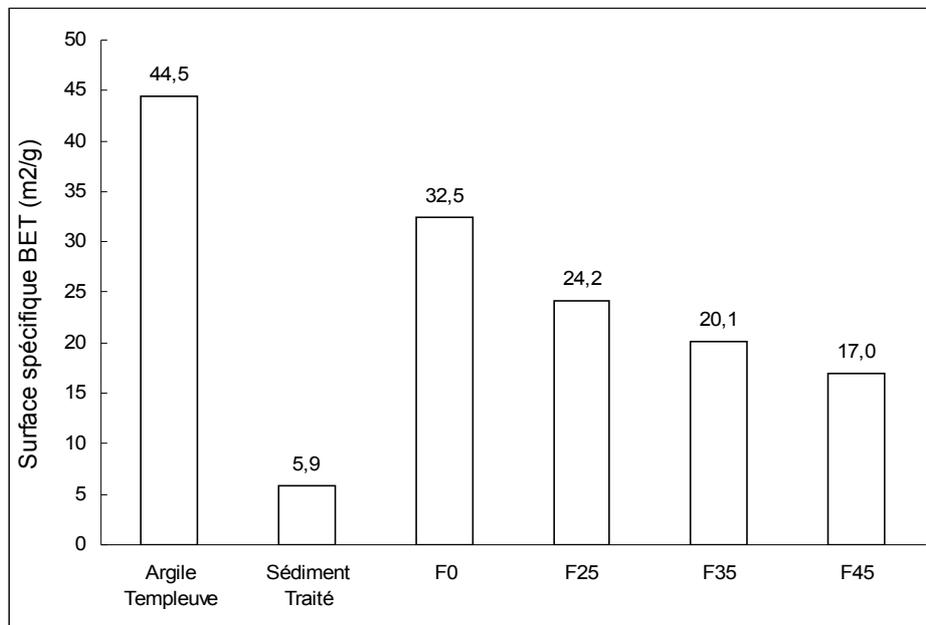


Fig.4-7 : Influence de sédiment traité sur la surface spécifique du mélange

Les isothermes d'adsorption-désorption des quatre mélanges, de sédiment traité et de l'argile naturelle sont présentées sur la **figure 4-8**. Selon la

classification de l'IUPAC [IUPAC 1985] ces isothermes correspondent au type IV et la boucle d'hystérésis est de type H3.

La **figure 4-8** montre l'influence des sédiments traités sur le volume adsorbé. L'ajout de sédiments fait diminuer le volume adsorbé. La diminution du volume adsorbé est liée à la diminution du volume et de la surface des micropores engendrée par la substitution de l'argile naturelle par les sédiments traités (cf. Annexe A : **fig. A-1** et **A-2**). En effet on a constaté une diminution du volume des micropores dont le diamètre varie entre 17 et 45 Å qui correspond aux dimensions des particules de smectite (10-100 Å). De plus le frittage thermique engendre une diminution de la microporosité au sein des sédiments liée au comblement des micropores. On doit alors s'attendre à une diminution de la teneur en eau au façonnage. En revanche, on a constaté une augmentation de la quantité d'eau nécessaire au façonnage avec l'ajout de sédiment (**fig.4-9**). Cette augmentation de quantité d'eau de façonnage est liée à la macroporosité des sédiments traités (au sein des agglomérats). Cette macroporosité n'est pas détectable par la méthode BET et elle augmente avec l'augmentation de taille des particules agglomérées. Ceci permet aux sédiments d'avoir une nature absorbante. Le coefficient d'absorption d'eau des sédiments de Lille, déterminé par la procédure décrite en III.1, est de 51 %. L'eau absorbée par les sédiments ne participe pas complètement au façonnage. Une partie de cette eau reste à l'intérieur des particules agglomérées et sera ensuite chassée pendant le séchage.

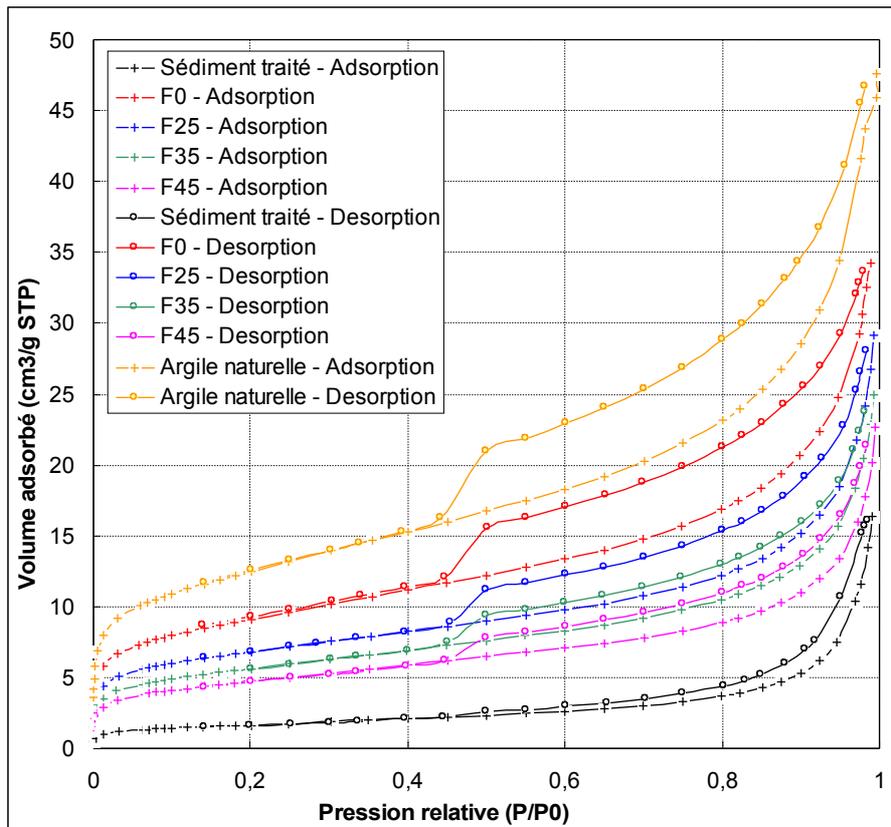


Fig.4-8 : Influence de sédiment traité sur le volume adsorbé

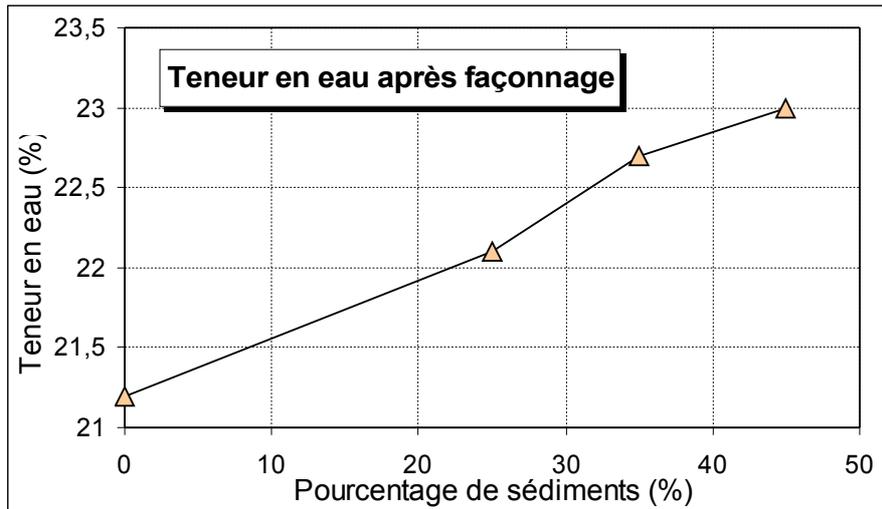


Fig.4-9 : Variation de la teneur en eau après façonnage en fonction de la quantité de sédiment ajoutée

En conclusion l'ajout de sédiment traité contribue à une diminution de la microporosité et augmente au même temps la macroporosité ce qui résulte en une augmentation de la quantité d'eau de façonnage. Ceci peut influencer la maniabilité pendant le processus de fabrication, le retrait et par conséquent l'apparition des fissures pendant le séchage.

IV.2.1.3. Façonnage des échantillons de brique en laboratoire

Le façonnage a pour but de donner à la pâte une cohésion suffisante et la forme désirée pour le produit.

Avant d'être introduite dans le mélange, l'argile a été séchée, concassée et broyée (fig. 4-10). Le mélange a été réalisé au moyen d'un malaxeur électrique où les trois matériaux ont été d'abord mélangés à sec pendant 15 minutes. Ensuite une quantité suffisante d'eau a été ajoutée pour amener le mélange au même état plastique que la pâte de la brique de Templeuve. Le contrôle de l'humidité est fondamental dans le façonnage pour assurer la constance des propriétés mécaniques du mélange. L'humidité initiale peut varier en fonction des conditions de stockage et des conditions atmosphériques. On travaille généralement avec des concentrations d'eau entre 15 et 30 % et à l'usine de Templeuve on travaille avec une teneur autour de 22% (par rapport au poids sec).

Les échantillons de briques ont été préparés au moyen d'une extrudeuse. Une pompe à vide a été utilisée pour expulser l'air du mélange. (fig.4-10). La désaération de la pâte par mise sous vide avant son passage dans l'extrudeuse a pour but d'améliorer la plasticité et la cohésion, ce qui facilite le passage au travers la filière. De plus le traitement sous vide élimine les bulles d'air présentes dans le mélange qui s'écrasent durant l'extrusion et se transforment en disques allongés et aplatis favorisant ainsi l'apparition de défauts. La désaération améliore donc la plasticité, ce qui permet de travailler avec des pâtes plus sèches et augmente ainsi la résistance mécanique. En revanche le séchage devient plus difficile (diminution de la porosité de la pâte) et la résistance au gel peut diminuer si l'apport de dégraissant était insuffisant.



Fig.4-10 : Préparation en laboratoire des échantillons de brique

IV.2.1.4. Séchage des échantillons de brique

Le séchage est une phase délicate et importante de la fabrication qui peut influencer la qualité des produits en terre cuite.

Les échantillons de brique ont été séchés pendant 65 heures dans les chambres de séchage à la BdN selon le programme présenté sur la **figure 4-11**, où la température de séchage monte de 34 à 80 °C.

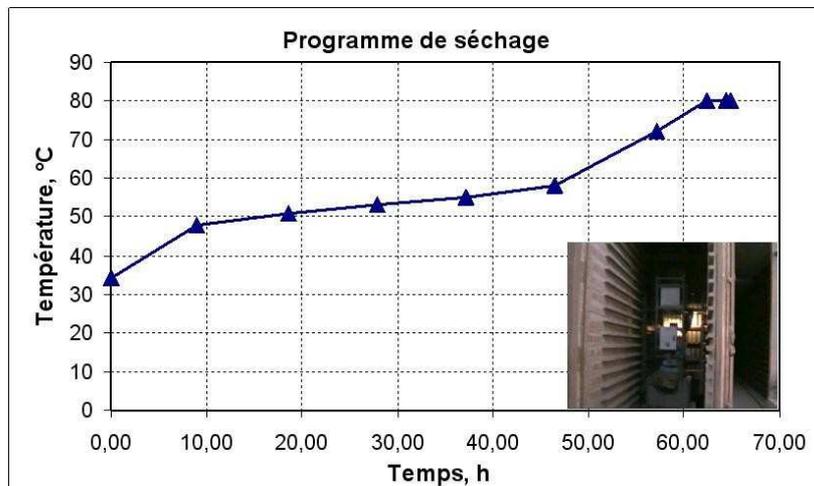


Fig. 4-11 : Programme de séchage des briques

IV.2.1.5. Cuisson des échantillons de brique

La cuisson à des températures élevées (900-1150°C) permet aux briques d'avoir leurs véritables propriétés céramiques.

La cuisson des briques a été réalisée dans le four tunnel de la Briqueterie du Nord selon le programme de cuisson donné sur la **figure 4-12**, où la température augmente de 80 °C à une vitesse de 0.5°C/min jusqu'à 573°C (point de quartz : cf. IV.2.2.4), puis jusqu'à 930°C à une vitesse de 0.8°C/min, ensuite et jusqu'à la température maximale de 1000°C à une vitesse de 0.3°C/min. Les échantillons restent à cette température pendant 4h 30 au bout desquelles la température descend à 80°C à une vitesse de $\approx 0.5^\circ\text{C}/\text{min}$

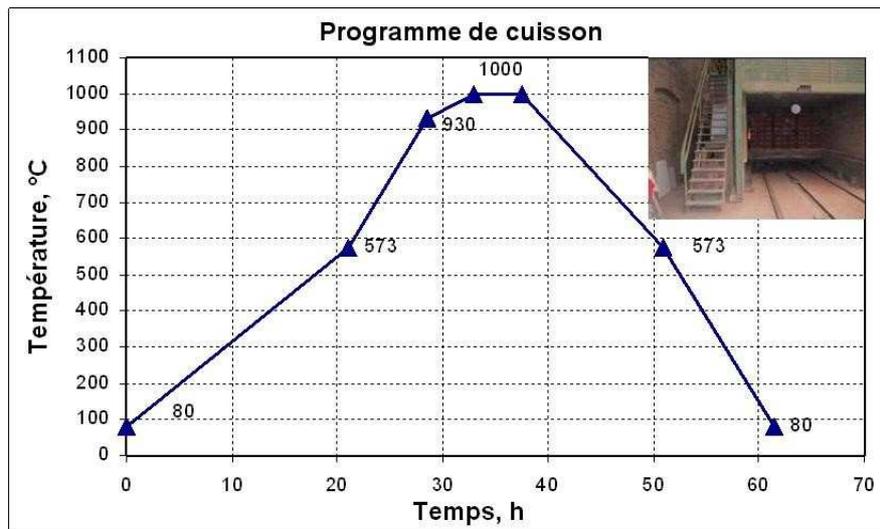


Fig. 4-12 : Programme de cuisson des briques (four tunnel)

IV.2.2. Tests de qualification des briques produites en laboratoire

Afin d'être caractérisées, les briques produites ont subi une série d'essais exigés par les normes françaises NF P13-304. Ces tests comprennent la résistance à la compression, la résistance aux cycles de gel-dégel, l'absorption d'eau, l'efflorescence. On rajoute aussi les tests de lixiviation qui permettent de déterminer les quantités des métaux lourds libérés dans l'environnement lors la mise en contact de la brique avec des eaux de ruissèlement.

IV.2.2.1. Porosité

La porosité est le paramètre le plus important pour toutes les propriétés de la brique car elle influence la résistance mécanique, l'absorption d'eau et la perméabilité de la brique [Handisyde *et al.*, 1976 ; Ross *et al.*, 1989; Hendry *et al.*, 2001]. Elle désigne le rapport entre le volume des pores et le volume total de l'échantillon. La porosité peut être ouverte ou fermée. Selon les produits, on cherche à obtenir différentes porosités, de faibles porosités (<20 %) pour les tuiles et les briques apparentes et de fortes porosités (>40 %) pour certains types de briques à faible conductivité thermique.

La porosité de la brique est principalement ouverte et seules les températures de cuisson élevées permettent d'obtenir des porosités fermées dues au

dégagement gazeux. Plusieurs facteurs peuvent influencer la porosité de la brique :

Les températures élevées de cuisson (>950°C) : Généralement, les produits cuits à des températures élevées sont plus vitreux et subissent les plus grands changements de volume (contraction) et de porosité [Elert *et al.*, 2003; Whiteley *et al.*, 1977; Delbrouck *et al.*, 1993 ; Parras *et al.*, 1996 ; Whittemore *et al.*, 1983], où les petits pores entre les particules d'argile disparaissent en raison de la vitrification et de la coalescence des particules ce qui engendre une diminution de porosité.

La minéralogie : les compositions ne comprenant pas de porosant (la poudre de charbon) et peu de matière organique produisent des briques de faible porosité [Esbert *et al.*, 1997], alors que l'argile calcaire produit des briques de porosité élevée [Elert *et al.*, 2003; Cultrone *et al.*, 2004]. Les compositions comprenant des éléments grésant (feldspaths, micas) forment des eutectiques à bas points de fusion résultant en une diminution de la porosité liée au comblement des micropores par la phase liquide.

Procédure

Les essais sont effectués sur cinq éprouvettes de brique de forme cylindrique (carottes de 30 mm de diamètre et d'un élancement de 2).

Les éprouvettes sont séchées dans une étuve à 105°C jusqu'à masse constante. On considère que cette masse est atteinte lorsque l'écart entre deux pesées effectuées à 2 heures d'intervalle est au plus égal à 0.1 %. Elles sont placées dans un dessiccateur pendant 0.5 h pour se refroidir et la masse de l'éprouvette sèche est déterminée (masse **A**). Les éprouvettes séchées sont placées dans un bécher, qui est à son tour placé dans une cloche à vide. L'air est expulsé au moyen d'une pompe à vide (0.07 bar) (**fig.4-13**, a). On remplit le bécher d'eau déminéralisée jusqu'à ce que les éprouvettes soient entièrement recouvertes d'eau. Les éprouvettes sont maintenues immergées dans l'eau sous vide pendant 24 h. Les éprouvettes sont ensuite retirées de l'eau, placées sur un linge sec avec lequel elles sont soigneusement et rapidement essuyées. On détermine la masse saturée d'eau (masse **B**). Enfin l'éprouvette est pesée dans l'eau (masse **C**) (pesée hydrostatique-**fig.4-13**, b).

La porosité est déterminée par le rapport du volume total des vides ouverts du matériau au volume apparent. Le volume des vides et le volume apparent sont exprimés par :

$B - A$ et $B - C$ respectivement.

La porosité ouverte à l'eau est ensuite calculée par l'équation suivante :

$$P(\%) = \frac{(B - A)}{(B - C)} * 100 \quad (\text{III.1})$$

Résultats et interprétation

Les valeurs de porosité de F_0 , F_{25} , F_{35} , et F_{45} sont données sur la **figure 4-14**.

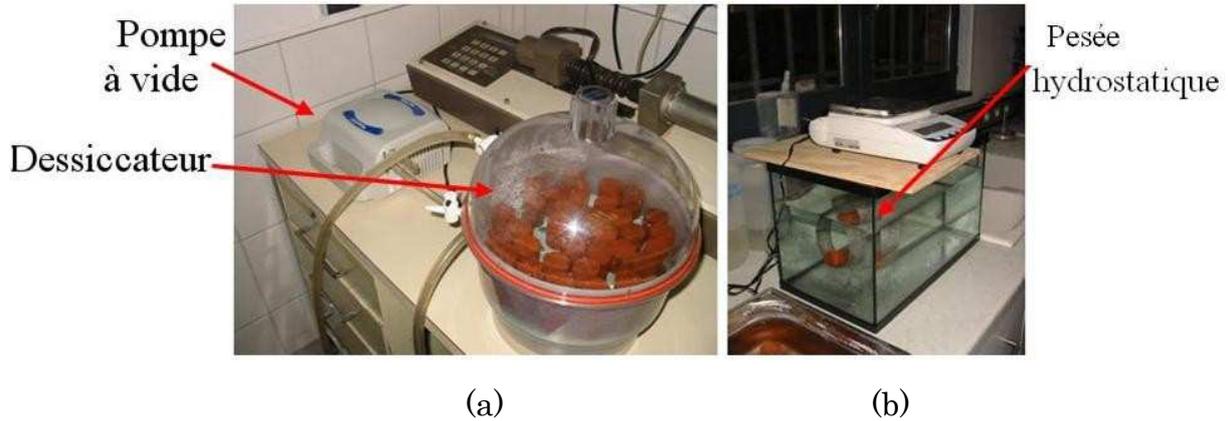


Fig.4-13 : a) La pompe à vide ; b) Dispositif pour la pesée hydrostatique

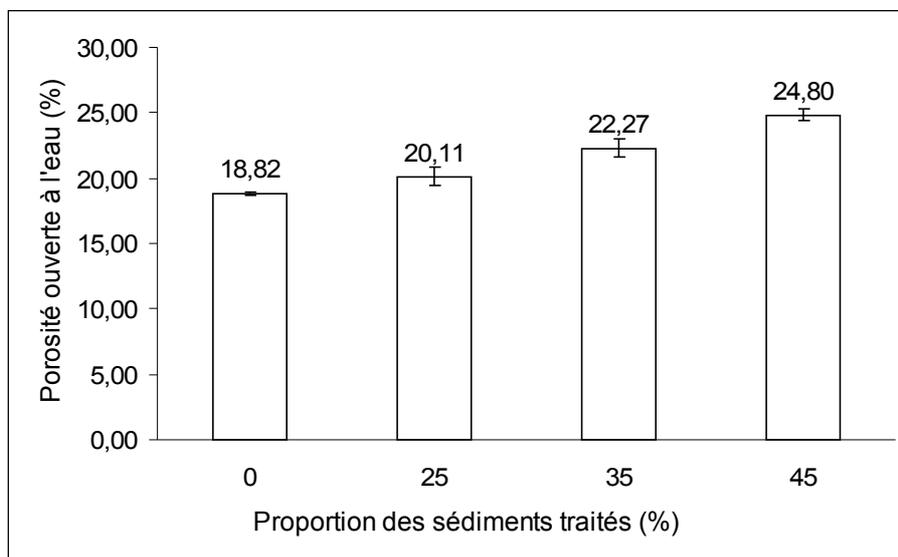


Fig. 4-14 : Porosité ouverte à l'eau des quatre formulations de briques

L'ajout de sédiment calciné entraîne une augmentation de la porosité apparente des briques de 6,9, 18,3 et 33 % par rapport à F_0 , pour F_{25} , F_{35} et F_{45} respectivement. Ceci s'explique par l'affaiblissement des propriétés plastiques du mélange, la diminution de sa cohésion et l'augmentation de la taille des pores à l'intérieur de la brique.

L'ajout de sédiment rend la granulométrie du mélange plus grossière, or la taille des particules est un paramètre de grande importance car la brique produite avec une fraction importante de sable a tendance à être plus poreuse, moins dense et plus perméable [Warren, 1999]. Cela a été confirmé par les mesures de densité données dans la **figure 4-16**. Par ailleurs, selon la théorie du frittage, ce dernier est inversement proportionnel à la taille des particules (voir IV.2 de ce chapitre). Un mélange ayant une granulométrie fine fritte mieux qu'un mélange ayant une granulométrie grossière et le frittage est toujours accompagné par une diminution de la porosité [Monteiro *et al.*, 2004].

De plus la présence importante de calcite (CaCO_3) dans le sédiment traité influence l'évolution de la porosité du produit final. Ceci est due à la transformation de CaO (issu de la décomposition thermique de calcite à hautes

températures 830-870°C) en portlandite [Ca(OH)₂] et au dégagement de CO₂ [Esbert *et al.*, 1997 ; Boynton, 1980 ; Cultrone *et al.*, 1998; Sanchez *et al.*, 1998 ; Elert *et al.*, 2003]. Ce phénomène est appelé « le point de chaux » [Laired, 1956]. Il peut provoquer des éclatements localisés et, dans les cas extrêmes, la rupture de la brique [Cultrone,2001; Cerdeño del Castillo *et al.*, 2000].

IV.2.2.2. Absorption d'eau

Le test d'absorption a été réalisé selon la procédure américaine : Test de 24 h de submersion dans de l'eau déminéralisée (ASTM C 67-03a)

Les échantillons de brique sont séchés et refroidis selon la procédure décrite en III.1. Ils sont ensuite immergés dans l'eau déminéralisée pendant 24 heures. L'absorption d'eau est ensuite calculée par l'équation :

$$Absorption_{Eau\ stagnante} (\%) = \frac{(B - A)}{(A)} * 100,$$

où *A* et *B* sont les masses de l'échantillon sec et saturé.

Les valeurs d'absorption d'eau sont présentées sur la **figure 4-15**.

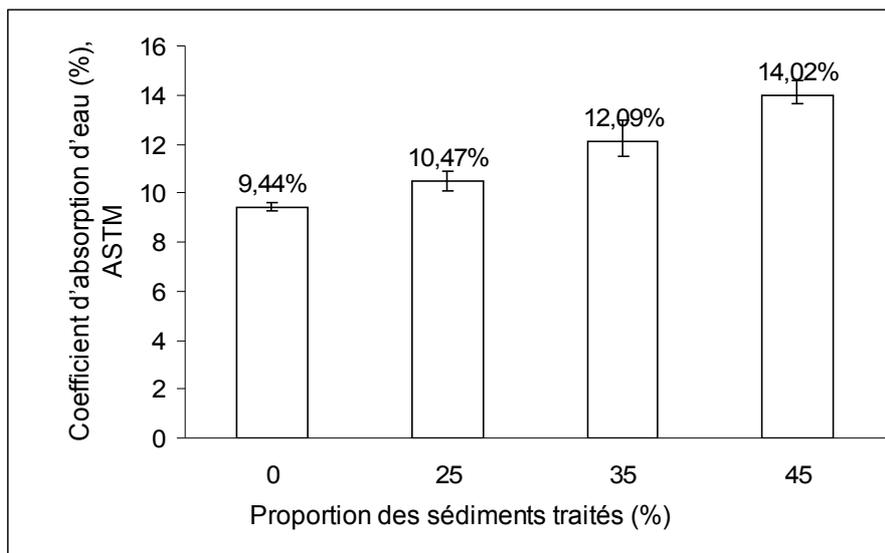


Fig. 4-15 : Coefficient d'absorption d'eau

Résultats et interprétations

Les résultats de test d'absorption montrent que l'ajout de sédiment traité fait augmenter l'absorption d'eau des briques. Il fait augmenter le coefficient d'absorption de 20, 52 et 96 % pour 25, 35 et 45 % respectivement. Cela est expliqué par le fait que l'ajout de sédiment affaiblit les propriétés plastiques de la pâte et diminue ainsi sa cohésion. Il augmente la taille des pores au sein de la brique. De plus l'ajout de sédiment augmente la porosité de la brique, qui est à son tour liée à l'absorption d'eau. L'augmentation de coefficient d'absorption d'eau influence les propriétés mécaniques et la durabilité de la brique en la rendant moins résistante et moins durable. Une forte absorption d'eau facilite la pénétration d'eau à l'intérieur de la brique et accélère ainsi sa détérioration due aux cycles de gel-dégel.

IV.2.2.3. Masse volumique apparente

La masse volumique d'une brique en terre cuite est un paramètre important pour son utilisation dans la construction. Généralement la masse volumique absolue de la terre cuite (sans porosité) est dans la gamme de 2.5 à 2.8 g/cm³. Elle est liée à la composition chimique de la matière première (plus forte densité avec les fortes concentrations en alumine et fer) et à la structure du produit (plus forte densité si il est cristallisé). La masse volumique apparente d'une brique en terre cuite ρ_a est plus faible que la masse volumique absolue ρ_s (1.8 et 2 g/cm³) et liée à la porosité.

Des exemples de masses volumiques apparentes de tessons sont donnés au **tableau 4-4** avec les porosités associées en supposant que la masse volumique absolue est égale à 2.5 g/cm³.

Tableau 4-4

Densités apparentes de divers tessons de terre cuite et porosités associées ($\rho_s = 2.5 \text{ g/cm}^3$).

Produits	ρ_a g/cm ³	Porosité (%)
Tuile	2.2	12
Brique perforée horizontale	1.896	24
Boisseau	2.025	19
Brique perforée verticale Monomur	1.5	40

Procédure

La masse volumique apparente a été déterminée en utilisant la procédure décrite en III.1. Elle s'exprime par le rapport de la masse sèche de l'éprouvette au volume apparent :

$$\text{Masse volumique apparente} = \frac{A}{(B - C)}$$

Résultats et interprétations

Les valeurs de masse volumique de F_0 , F_{25} , F_{35} , et F_{45} sont données sur la **figure 4-16**.

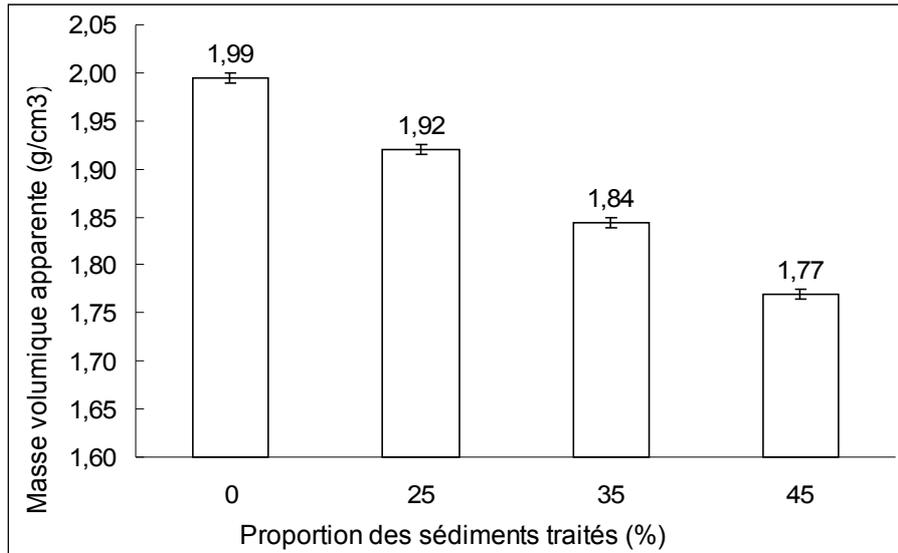


Fig. 4-16 : Densité des quatre formulations de briques

Il apparaît que l'ajout de sédiment diminue la densité apparente de la brique. Ce résultat est cohérent avec les résultats de la porosité et de l'absorption d'eau. L'ajout de sédiment rend la brique plus poreuse et par conséquent moins dense. Ceci a été confirmé par l'analyse MEB réalisée sur des échantillons de chaque formulation et donnée sur la **figure 4-17**.

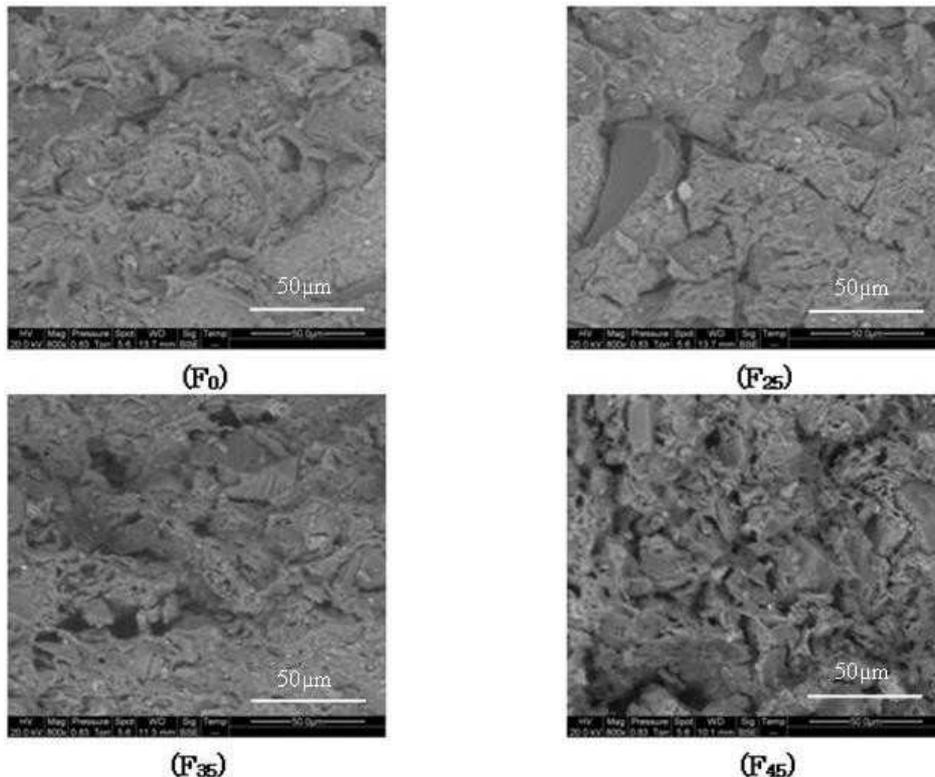


Fig.4-17 : Photos MEB des échantillons de : F_0 , F_{25} , F_{35} et F_{45}

Les photos MEB montrent une densification de la brique lorsque la proportion des sédiments diminue.

IV.2.2.4. Résistance à la compression

La résistance à la compression est une caractéristique déterminante pour la capacité d'un matériau à être employé dans la construction; on le considère comme un bon indicateur de qualité.

Procédure

Les essais de compression simple ont été réalisés sur des éprouvettes cylindriques sèches (fig. 4-18, a) au moyen d'une presse mécanique (Instron 30 kN) (fig. 4-19, b). La vitesse de déplacement est de 2 $\mu\text{m/s}$.

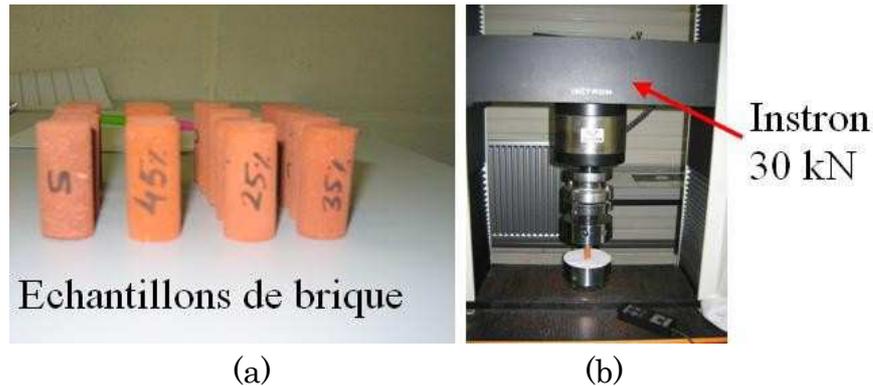


Fig.4-18 : Test de compression simple (uni axiale)

Résultats et interprétations

Les valeurs moyennes de la résistance à la compression sont données sur la figure 4-19.

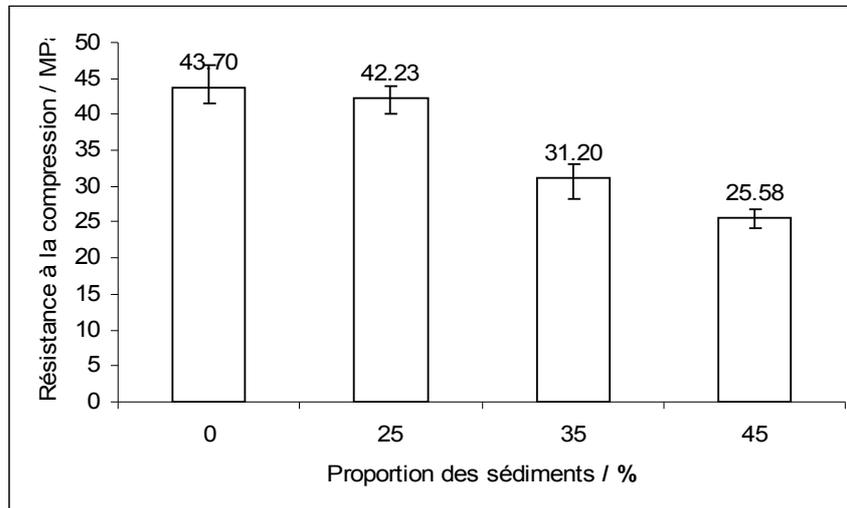


Fig.4-19 : Effet de la proportion des sédiments sur la résistance à la compression (MPa)

On peut noter que la résistance mécanique est influencée par la quantité de sédiment incorporée dans la brique. L'augmentation de la proportion de sédiment a pour conséquence une diminution de la résistance mécanique. Cette diminution est liée à la porosité :

- La détérioration des propriétés plastique de la pâte ce qui la rend moins cohésive et plus poreuse, ce qui influence les propriétés mécaniques du produit final (le rend moins résistant).
- La granulométrie a une tendance à être plus grossière avec l'ajout de sédiment, ce qui influence le frittage et cela rend la brique plus poreuse, moins dense et par conséquent moins résistante. La **figure 4-20** montre une relation entre la résistance à la compression et la densité du tesson. On voit que la résistance à la compression augmente avec l'augmentation de la densité de la brique.

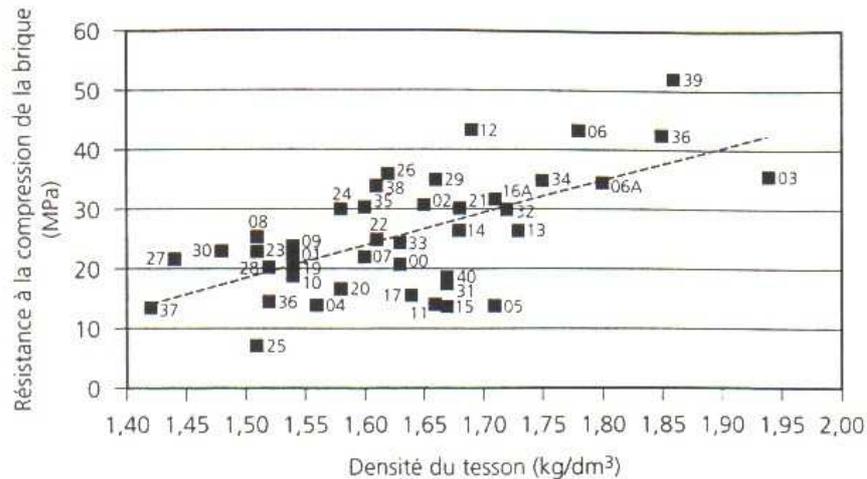
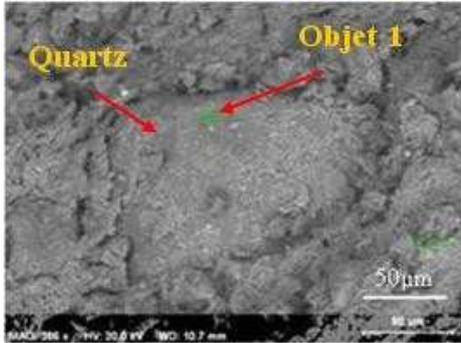


Fig.4-20 : Relation entre la résistance à la compression et la densité [Ziegel Industrie Jahrbuch].

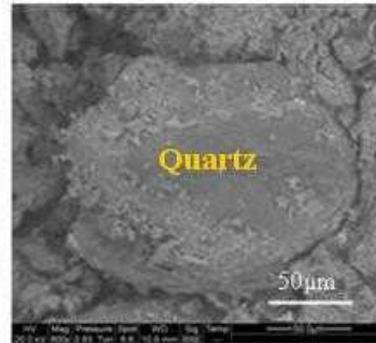
- La fraction $> 30 \mu\text{m}$ dans le sédiment traité (composé majoritairement du quartz $> 90 \%$) est égale à 77 %, tandis que cette fraction est égale à 36 % dans l'argile de Templeuve. Il est connu que le quartz avec des particules de (10 – 30 μm) améliore les propriétés mécaniques de la brique, tandis que celui avec de plus grosses particules ($> 30 \mu\text{m}$) a une tendance à les affaiblir. Ceci est dû à la susceptibilité de formation de microfissures liée à la transformation allotropique du quartz, appelée point de quartz, qui se produit à 573°C et qui résulte en un changement de volume ($\Delta v = 1\%$) [Kobayashi *et al.*, 1992 ; Kilikoglou *et al.*, 1995; Maity *et al.*, 1996].

En conséquence, dans beaucoup de cas, les gros grains de quartz, qui adhèrent très mal à la matrice environnante à cause de faible plasticité de la pâte, s'en détachent et une séparation des deux phases se produit. Ce comportement a été observé dans plusieurs matériaux de terre cuite, où le quartz est utilisé comme dégraissant. La brique se comporte comme un matériau qui contient des pores de diamètre égal à celui de grain de quartz (**figure 4-21**, d) ce qui rend la brique moins résistante. La confirmation directe de ceci a été faite par l'observation au MEB réalisée sur plusieurs échantillons de la brique à base de sédiment. Les photos (a et b) de la **figure 4-21** montrent le détachement du grain du quartz et la photo (c) montre un emplacement occupé à l'origine par un grain de quartz. Les spectres donnés dans cette figure (e et f) montrent bien que l'objet 1 (photo a) est bien un grain de quartz d'après les fortes concentrations de silicium (Si) et de l'oxygène (O_2) dans le spectre (e). Les fortes concentrations de silicium, d'oxygène, et d'aluminium

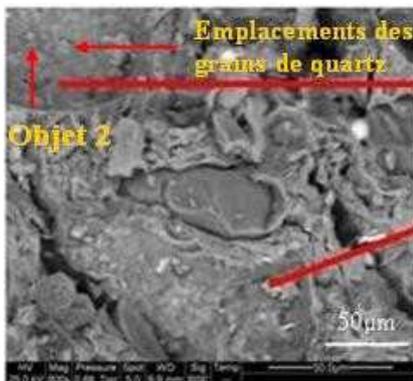
(A) sur le spectre (f: objet 2) (photo a) montrent qu'il s'agit bien d'aluminosilicates. Le détachement des grains du quartz est plus fréquent dans les briques à base de sédiment et cela est lié à la diminution de propriétés plastique et de la cohésion de la pâte avec l'ajout de sédiment traité.



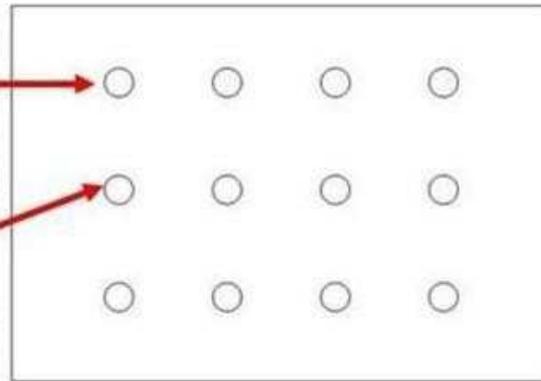
(a) Grain de quartz



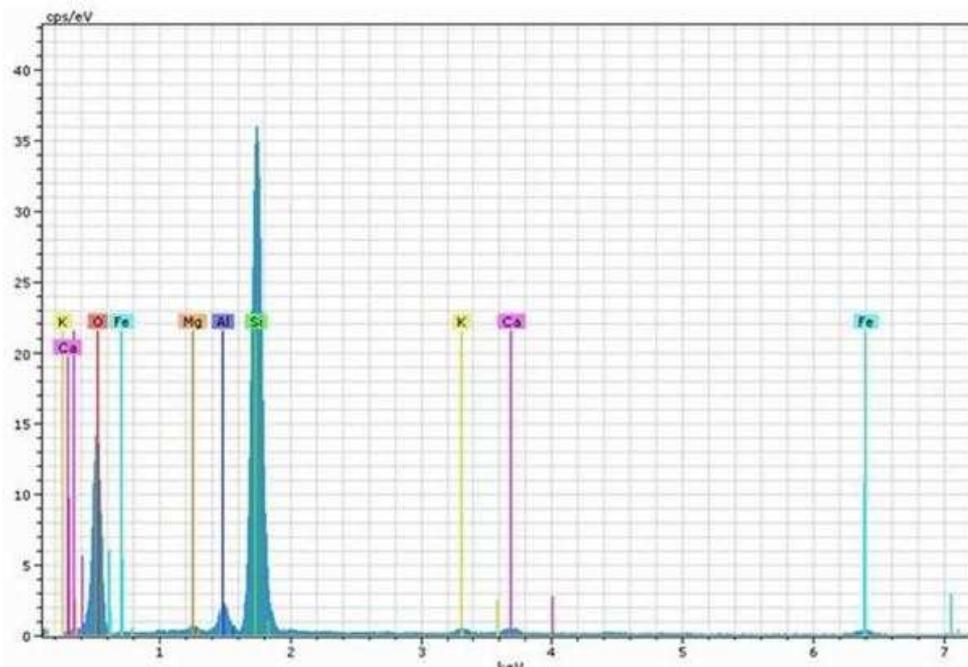
(b) Détachement de grain de quartz



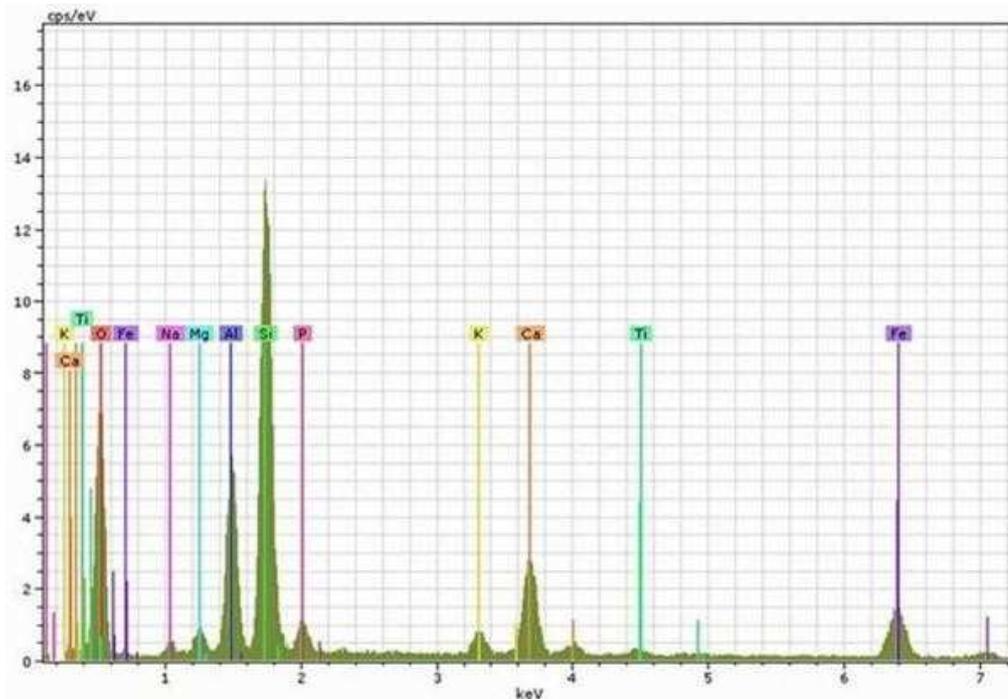
(c) Emplacements occupés à l'origine par des grains de quartz



(d) Modèle proposé de la brique



(e) Spectre de l'objet 1



(f) Spectre de l'objet 2

Fig.4-21 : Analyse MEB de la structure de la brique contenant de sédiment traité

IV.2.2.5. Résistance au gel-dégel (NF P 13-304 octobre 1983 article 3.8)

La terre cuite est un matériau poreux ayant principalement une porosité ouverte (faible porosité fermée). Comme tous les matériaux de construction poreux, les terres cuites peuvent être sensible au gel. Les murs extérieurs en maçonnerie sont exposés à beaucoup de facteurs environnementaux qui agissent sur la durabilité des briques. Un de ces facteurs est l'action du gel-dégel. La sévérité de l'exposition au gel, et son incidence sur la durabilité des briques, dépend de la teneur en humidité des briques au début de la période de gel, de la vitesse de refroidissement, de la température sous zéro atteinte et du nombre de cycles de gel-dégel. Les propriétés des matériaux peuvent également agir sur le rendement des briques. Le taux d'absorption d'eau et les caractéristiques de l'assèchement en surface, la répartition de la taille des pores et l'interconnectivité de ceux-ci, de même que la résistance des matériaux, sont autant de facteurs qui jouent un rôle dans la façon dont la brique se comportera au cours des cycles de gel et de dégel. Quand l'eau gèle, sa densité diminue. Elle passe de 1000 kg/m³ (liquide 4°C) à 917 kg/m³ (glace 0°C), ce qui produit une expansion de volume de 9 %. Quand la terre cuite est partiellement saturée (taux de saturation < 90 %), l'augmentation du volume de l'eau peut être prise en charge par les espaces non remplis des pores. Si le taux de saturation dépasse 90 %, le front de solidification, qui se développe à partir de la surface la plus froide, va chasser l'eau liquide. Si la vitesse du front de solidification est lente, l'eau liquide aura le temps de s'évacuer à travers le réseau des pores, mais si cette vitesse est rapide l'eau reste à l'intérieur et une surpression se crée dans les pores en fonction de leur taille et leur distribution. Ceci induit des pressions à l'intérieur des pores ce qui engendre

des gonflements élastiques et la terre cuite peut se fissurer à certains points ce qui mène à une dégradation du matériau qui va croître à chaque nouveau cycle.

Procédure

L'essai consiste à faire subir à des éléments de maçonnerie 25 cycles de gel - dégel et d'observer les éventuelles altérations apparaissant et les pertes de matière concomitantes. Après un séchage complet et une pesée initiale, les éléments testés sont immergés dans l'eau pendant 48 heures puis placés pendant 4 heures sur plaque métallique refroidie (**photo 4-1**) à -15°C en reposant sur leur grande face apparente. Après 4 heures de retour à 20°C les éléments sont immergés en eau pendant 15 heures. L'opération gel - dégel est répétée 25 fois à l'issue de quoi les éprouvettes sont rincées à l'eau sous pression contrôlée et séchées jusqu'à masse constante. Après une pesée finale, les éléments sont examinés pour relever d'éventuelles altérations et la perte de masse subie est calculée.



Photo 4-1. Gel-dégel

Résultats et interprétations

Les valeurs de la perte de masse sont données dans le **tableau 4-5**.

Tableau 4-5

Perte de masse de la brique après 25 cycles de gel-dégel (%)

Mélange	F ₀	F ₂₅	F ₃₅	F ₄₅
Perte de masse moyenne	0.14	0.17	0.36	0.19

On n'a pas obtenu une corrélation évidente entre le pourcentage du sédiment traité et la perte de masse, mais les pertes de masse pour tous les taux de substitution sont inférieures à 1% (la limite donnée par la norme française [NF P13-304]). De plus, ni exfoliation, ni fissuration, ni feuilletage, ni écaillage n'ont été observés sur tous les échantillons examinés. Cette bonne résistance au gel peut être liée au fait que l'ajout de sédiments augmente la taille des pores et la porosité de la brique. Ainsi, pour mieux comprendre le comportement de la brique vis-à-vis des cycles de gel-dégel, il faut des tests supplémentaires comme la porosité mercure qui permet de mesurer les tailles et la distribution des tailles des pores. Ces deux paramètres influencent directement la résistance de la brique au gel-dégel [Hansen *et al.*, 1988; Robinson, 1984; Nakamura *et al.*, 1977].

Une liaison entre la taille, la distribution des pores et la résistance au gel a été établie. Selon Maage [Maage, 1984], une proportion importante des pores de diamètre $> 3 \mu\text{m}$ assure une bonne résistance au gel, alors que Bentrup pense que le diamètre moyen des pores doit être $> 1 \mu\text{m}$ [Bentrup *et al.*, 1993]. Une relation entre le diamètre moyen des pores et le nombre de cycles de gel-dégel a été établie par Šveda [Šveda, 2003]. L'auteur a montré une nette corrélation entre ces deux paramètres, où l'augmentation du rayon médian des pores provoque une meilleure résistance au gel (**fig.4-22**). Pendant le gel, les grands pores jouent le rôle de réservoirs d'expansion et réduisent de cette façon l'effet de l'eau sur la matrice de la brique.

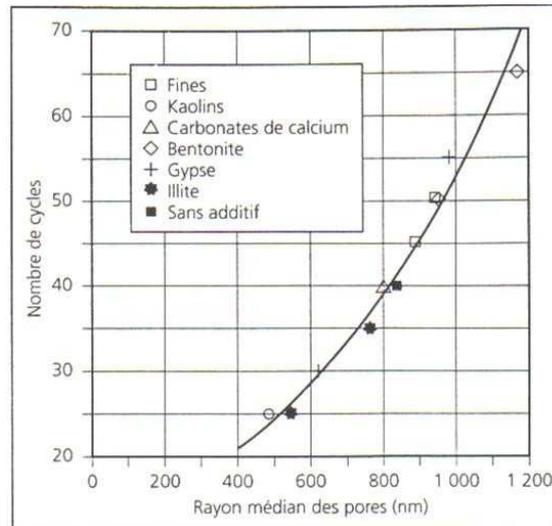


Fig.4-22 : Relation entre la résistance au gel et le rayon médian des pores [Šveda, 2003].

IV.2.2.6. Efflorescence (NF P13-304 octobre 1983)

La présence d'efflorescence sur les matériaux en céramique, tels que les briques et les tuiles, est considérée comme un défaut. Aucune solution n'a encore été trouvée pour éliminer complètement ce phénomène, sauf dans le cas où les matières premières sont choisies avec précaution. Les efflorescences sont inesthétiques sur les briques apparentes et les tuiles, mais sur les briques de structure, on s'intéresse à la tenue des mortiers et des enduits (plâtre et ciment) sur ces dépôts intermédiaires. Le phénomène de l'efflorescence est dû à la présence, en petites quantités (1 %), des sels solubles dans la matière première et qui migrent, en présence d'humidité, du cœur d'un produit poreux (terre cuite, pierre naturelle) vers la surface extérieure [Bardin, 1971]. En principe, tous les sels hydrosolubles sont susceptibles de former des efflorescences. Dans la terre cuite les sels les plus fréquents sont :

- La chaux, faiblement soluble et qui en présence du CO_2 se carbonate en calcaire blanc insoluble et adhérent.
- Les différents sulfates donnés dans le **tableau 4-6** avec leurs solubilités dans l'eau.

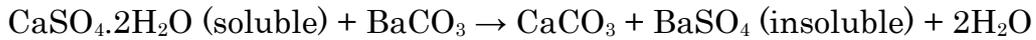
Tableau 4-6

Les sulfates les plus fréquents et qui provoquent des efflorescences [Kornmann, 2005]

	Solubilité dans l'eau
Sulfate de sodium Na ₂ SO ₄ (sel de Glauber)	280 g/l
Sulfate de potassium K ₂ SO ₄	110 g/l
Sulfate de magnésium	270 g/l
Sulfate de calcium CaSO ₄ (anhydrite ou gypse, quand il est partiellement hydraté)	2 g/l
Sulfate de baryum BaSO ₄ (barytine)	0.028 g/l

Les efflorescences se produisent soit au séchage, soit à la cuisson. Les efflorescences de séchage sont fortement liées à la vitesse de séchage, où les sels sont entraînés par le mouvement capillaire de l'eau. A basse vitesse d'évaporation, le débit de l'eau est faible et la diffusion des sels limite l'apport global de sels à la surface [Paul *et al.*, 2000].

La solution technique largement utilisée pour limiter l'efflorescence est l'emploi de certains composés chimiques tels que le carbonate ou le chlorite de baryum. Les ions de baryum piègent les ions de sulfates à la surface du grain de carbonate de baryum. Le sulfate de baryum obtenu est insoluble et stable thermiquement:



Procédure

Le test a été effectué sur 7 éprouvettes n'ayant été soumises à aucun autre essai ou traitement préalable. Chaque échantillon est placé dans un récipient individuel, de telle sorte qu'il soit disposé verticalement suivant sa plus grande dimension et que sa base soit immergée d'environ 25 mm dans de l'eau déminéralisée. Afin de limiter l'évaporation d'eau, on utilise une feuille de plastique présentant une ouverture à travers laquelle passe le produit et de telle sorte qu'au moins la moitié de la hauteur de ce dernier se trouve à l'air libre (**photo 4-2**). Le dispositif est conservé durant 4 jours à 20°C et ≈ 60 HR. Au terme de ce délai, on place l'ensemble pendant 24 heures au moins dans une étuve réglée à 60°C. Si des efflorescences sont apparues, on passe sur les parties correspondantes, à trois reprises, une éponge végétale humide, sans exercer de pression excessive et on note si les efflorescences ont disparu.



Photo. 4-2 : Test d'efflorescence

Résultats et interprétations

Les résultats donnés dans le **tableau 4-7** montrent qu'il n'y a pas eu d'efflorescence sur tout l'ensemble des échantillons testés malgré la présence de soufre et de chaux dans les sédiments traités. D'une part ceci est lié à l'utilisation du carbonate de baryum, 7 kg/tonne de matière première (en masse sèche), qui transforme les sels solubles en sels non solubles et empêche ainsi leur migration vers la surface durant le séchage, et d'autre part à la granulométrie des sédiments traités (≤ 1 mm). Les grains de calcaire sont suffisamment fins et la chaux se combine avec les autres éléments de l'argile pour former des silicates d'alumine complexes (cf. IV.3.2).

Tableau 4-7

Test d'efflorescence

F₀	Ne présente aucune efflorescence.
F₂₅	Ne présente aucune efflorescence.
F₃₅	Ne présente aucune efflorescence.
F₄₅	Ne présente aucune efflorescence.

IV.2.2.7. Eclatement (NF P13-304 octobre 1983)

Procédure

Les échantillons sont immergés dans l'eau portée à au moins 80°C, puis à l'ébullition. Ils sont y maintenus pendant 3 heures (**photo 4-3**). Au terme de ce délai, les échantillons sont retirés et examinés (le nombre et les dimensions d'éclatements). La Norme (NF p13-304 octobre 1983) tolère:

- Un cratère de diamètre moyen inférieur ou égal à 3mm par un décimètre carré.
- Lorsqu'il s'agit des briques apparentes spéciales*, il est admis sur l'ensemble des faces pouvant rester apparentes (considérées globalement) un cratère de diamètre moyen compris entre 3 et 10mm.

*Éléments pour lesquels seules la planéité des faces de pose et la hauteur sont astreintes à des tolérances. 3 briques sous forme de disques de 7.1 cm de diamètre et de 1.5 cm de hauteur pour chacune des formulations (F₀, F₂₅, F₃₅ et F₄₅) ont été testées.

Résultats et interprétations

Les résultats de test d'éclatement sont donnés dans le **tableau 4-8**.



Photo.4-3 : Test d'éclatement

Tableau 4-8

Test d'éclatement

F₀	aucun éclatement
F₂₅	échantillon 1: aucun éclatement échantillon 2: un cratère de diamètre inférieur à 3 mm échantillon 3: aucun éclatement
F₃₅	aucun éclatement
F₄₅	échantillon 1 : un cratère de diamètre inférieur à 3 mm. échantillon 2 : aucun éclatement. échantillon 3 : aucun éclatement.

Les résultats de test d'éclatement montrent que les différentes formulations de brique sont conformes aux exigences de la norme et les deux cratères qui ont été observés sont tolérés par la norme.

IV.2.2.8. Dilatation conventionnelle à l'humidité (NF P13-304 octobre 1983)

L'expansion thermique est une propriété importante pour la fabrication et la mise en œuvre. Un faible coefficient de dilatation limite la création de contrainte thermique au refroidissement des produits et les dilatations des produits exposés à une source de chaleur (cas de maçonneries et de carreaux exposés au soleil).

L'expansion thermique est provoquée par l'agitation thermique des atomes. Elle est liée à l'énergie libre des liaisons qui vibrent.

L'expansion thermique des produits en terre cuite est inversement proportionnelle à la porosité. En principe elle décroît quand la porosité croît. De même, la granulométrie influence la dilatation thermique : une granulométrie étalée présente une plus grande expansion que des grains uniformes (granulométrie serrée) car une granulométrie étalée donne une porosité plus faible. L'expansion thermique augmente linéairement avec la température jusqu'à 400°C. Au-dessus de cette température elle devient plus importante avec un point singulier localisé au point quartz.

Protocole d'essai

Le test a été réalisé sur des échantillons parallélépipédiques extraits de plusieurs briques pour chaque formulation. Leur longueur varie entre 39mm et 51mm. Les éprouvettes sont en suite placées pendant 24h dans une enceinte à

20°C +/-2°C avec une humidité relative de 65% +/-5%. Ils sont alors mesurés deux fois à 3h d'intervalle. Ils subissent ensuite un cycle thermique avec une rampe de 20°C à 600°C en 12 heures puis un palier de 4h à 600°C. Le refroidissement se déroule progressivement dans le four. Un refroidissement complémentaire est imposé : 20h dans une enceinte à 20°C et 65% d'humidité. Après avoir effectué deux mesures de longueur à 3h d'intervalle, on place les échantillons dans l'eau bouillante pendant 24h. On les garde ensuite dans une enceinte à 20°C puis on les mesure après une heure de refroidissement puis après 24h supplémentaires.

La différence entre les moyennes respectives des deux mesures faites sur chaque barrette avant et après le passage à l'eau bouillante caractérise la dilatation à l'humidité. Les résultats sont ramenés à la longueur initiale et exprimés en mm par m.

Résultats et interprétations

Les résultats obtenus sont présentés sur la **figure 4-23**.

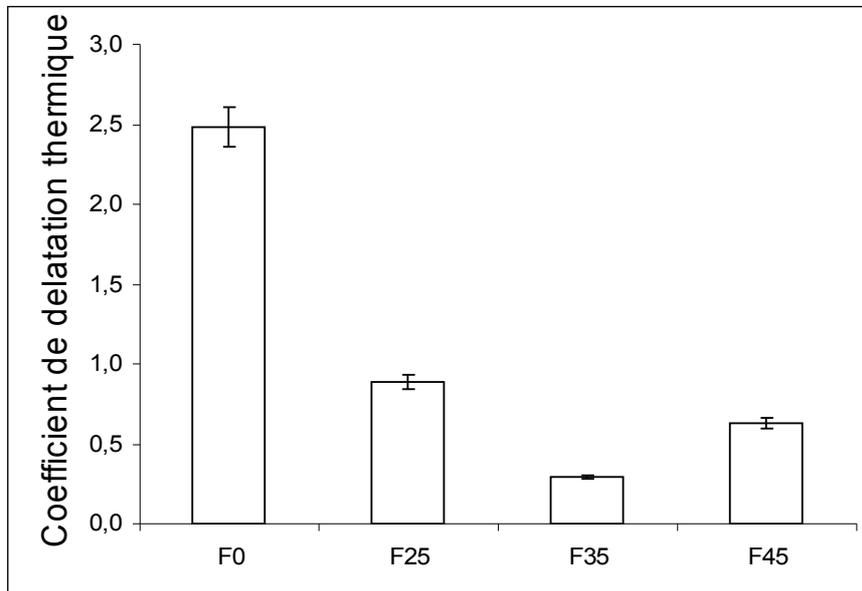


Fig. 4-23 : Influence de la quantité des sédiments sur la dilatation thermique de la brique

On observe que l'ajout des sédiments traités fait diminuer le coefficient de dilatation thermique. Ces résultats montrent que la dilatation thermique est d'une part liée à la porosité, où l'ajout de sédiments rend la brique plus poreuse, et d'autre part à la composition et structure minéralogique (quartz, phase amorphe, phase cristallisée, structure cristallographique), car elle diminue avec la concentration de SiO₂ (les sédiments traités sont composés majoritairement de quartz). Ainsi, l'incorporation des sédiments dans la brique est bénéfique car la dilatation thermique est une propriété très importante de la brique.

IV.2.2.9. Tests de lixiviation

Pour évaluer le potentiel de re-largage de polluants vers le milieu naturel, deux tests de lixiviation ont été réalisés selon les procédures décrites dans la norme française et la norme américaine.

Norme française (XP X 31-210 Mai 1998)

Le **tableau 4-9** montre les résultats de lixiviation réalisée sur des échantillons (100 g) de chaque mélange selon la norme française. Les échantillons de brique ont été concassés, tamisés (< 4mm) et lixiviés pendant 24 heures avec de l'eau déminéralisée avec un rapport liquide / solide (L/S) égale à 10 l/kg. Les lixiviats sont en suite récupérés en filtrant l'éluat au moyen d'un filtre de 0.45µm et analysés en ICP. Les limites, données par la Commission des Communautés européennes et décrites dans le Journal officiel de la Communauté européenne, sont rapportées dans ce tableau [Commission of the European communities, 2002].

Tableau 4-9

Test de lixiviation réalisé sur des échantillons de brique selon la norme française en mg/kg de la masse sèche

Elément	F ₀	F ₂₅	F ₃₅	F ₄₅	Valeurs limites applicables aux déchets admissibles dans les décharges pour déchets inertes L/S=10 (l/kg)	Valeurs limites applicables aux déchets admissibles dans les décharges pour déchets non dangereux L/S=10 (l/kg)
Cd	< 0.02	0.02	< 0.03	0.02	0.04	1
Cu	< 0.03	0.05	1.73	0.08	2	50
Zn	0.055	0.06	0.225	0.04	4	50
Ni	< 0.07	0.03	0.093	0.05	0.4	10
Pb	< 0.2	< 0.25	< 0.2	< 0.25	0.5	10

Les résultats montrent que les concentrations des métaux lourds (Cd, Cu, Ni, Pb, Zn), pour (F₀, F₂₅, F₃₅ et F₄₅), sont au-dessous des limites données par la directive décharge. Le chrome n'a pas été détecté malgré sa présence importante dans les sédiments traités. Ceci peut être lié à l'échantillonnage. Les quantités de métaux lourds lixiviés par les briques sont inférieures à celles des sédiments traités (cf. II.2.1.2), ceci peut être expliqué par le fait que les métaux lourds ont été soit immobilisés dans la phase vitreuse soit transformés en forme d'oxydes moins soluble pendant la cuisson de la brique. Pour le Zn, des valeurs de 0.055, 0.06, 0.225 et 0.04 mg/kg ont été obtenues pour F₀, F₂₅, F₃₅ et F₄₅ respectivement. Néanmoins, ces valeurs sont au-dessous de la limite donnée par la norme (4 mg/kg).

TCLP [Toxicity Characteristic Leaching Procedure: TCLP]

La procédure américaine de lixiviation TCLP est considérée comme plus agressive à cause du faible pH utilisé (4.9-2.9). Le **tableau 4-10** montre les résultats de TCLP effectuée sur différents échantillons de F₀, F₂₅, F₃₅ et F₄₅. Les échantillons de brique ont été broyés et tamisés sur un tamis de 1 mm.

Suivant les résultats du **tableau 4-10**, les concentrations des métaux lourds en F₀, F₂₅, F₃₅ et F₄₅ sont plus importantes que celles obtenues par la lixiviation à l'eau déminéralisée, mais elles sont toujours au-dessous des limites de la TCLP.

Nous pouvons également noter que les quantités de métaux lixiviés de la brique cuite sont inférieures aux celles des sédiments traités, confirmant que la cuisson a mené à une meilleure stabilisation des métaux lourds. Pour le Zn, des valeurs de 1.63, 3.06, 3.28 et 4.92 mg/kg ont été obtenues pour F₀, F₂₅, F₃₅ et F₄₅ respectivement. Ces valeurs sont largement au-dessous de la limite de TCLP (25). Les résultats dans les **tableaux 4-9** et **4-10** montrent que la brique produite à base des sédiments traités peut être considérée comme inerte pour la mise en décharge.

Tableau 4-10

Valeurs de TCLP en mg/kg de la masse sèche

Elément	F ₀	F ₂₅	F ₃₅	F ₄₅	Limite de TCLP
Cd	< 0.02	0.08	0.1	0.16	1.00
Cu	0.1	0.52	0.76	1.2	15
Zn	1.63	3.06	3.28	4.92	25.00
Ni	0.33	0.34	0.56	0.92	-
Pb	< 0.2	<0.5	<0.5	<0.5	5.00

IV.2.2.10. Conclusion

Les sédiments traités ont été incorporé dans les briques avec différentes proportions s'étendant de 25 à 45 % (sur la masse sèche). La proportion de sédiment dans le mélange a un impact important sur la qualité de la brique. L'augmentation de la proportion de sédiment a comme conséquence une diminution de la résistance à la compression. Les briques substituées ont avec succès passé les différents tests de qualification exigés par la norme française afin d'évaluer la convenance de cette brique à être utilisée dans la construction. Vu les propriétés physiques, mécaniques et chimiques et la quantité de sédiment incorporée dans la brique, la proportion de 35% de substitution semble être la plus efficace. Nous allons dans le paragraphe suivant se concentrer sur cet optimum de 35% pour étudier l'influence de plusieurs paramètres, notamment la granulométrie et la température de cuisson sur les propriétés des briques.

IV.3. Etude complémentaire sur l'influence de la température de cuisson et de la granulométrie sur les propriétés de la brique pour l'optimum de 35%

Plusieurs facteurs peuvent influencer les propriétés du produit final comme la minéralogie de la matière première, la granulométrie, le façonnage, le séchage, la température et les conditions de cuisson.

Pour étudier l'influence de ces paramètres sur les propriétés de la brique, trois autres mélanges (F_0 , $F_{35\text{-Gros}}$, et $F_{35\text{-Fin}}$) ont été préparés. Leurs compositions sont données dans le **tableau 4-11**, avec leurs distributions granulométriques. La distribution granulométrique du premier (F_0) est identique à celle adoptée en II.1, alors que pour les deux derniers ($F_{35\text{-Gros}}$ et $F_{35\text{-Fin}}$) deux granulométries différentes (fine et grossière) ont été utilisées. Pour $F_{35\text{-Fin}}$, les sédiments ont été broyés en utilisant des billes métalliques, alors que pour $F_{35\text{-Gros}}$, les sédiments ont été introduits dans le mélange sans aucun changement. Les distributions granulométriques des sédiments utilisés pour $F_{35\text{-gros}}$, $F_{35\text{-Fin}}$ et F_0 sont données dans le **tableau 4-12** avec leurs codes d'identification. G1 et G2 désignent les granulométries fine et grossière utilisées pour $F_{35\text{-Fin}}$ et $F_{35\text{-Gros}}$ respectivement.

Tableau 4-11

Composition et distribution granulométrique des mélanges préparés

Mélange	F_0 Sable : 20 % Sédiment : 35 % Argile : 45 %	$F_{35\text{-Gros}}$ Sable : 20 % Sédiment : 35 % Argile : 45 %	$F_{35\text{-Fin}}$ Sable : 20 % Sédiment : 35 % Argile : 45 %
Sable grossier : > 500 μm	1.5	9.7	1.4
Sable moyen : 250 – 500 μm	1	7.9	2
Sable fin : 62.5 – 250 μm	24	33.6	25.6
Limon : 2.5 – 62.5 μm	67	44.9	66.2
Argile : < 2.5 μm	6.5	3.9	4.8

Tableau 4-12

Distributions granulométriques des sédiments traités G1, G2 et de l'argile de Templeuve.

Fraction	Argile naturelle	G1	G2
Sable grossier : > 500 μ m	–	0.25	24.5
Sable moyen : 250 – 500 μ m	–	0.25	16.6
Sable fin : 62.5 – 250 μ m	9.8	11.9	38.6
Limon : 2.5 – 62.5 μ m	82	84.6	19.6
Argile : < 2.5 μ m	8.2	3	0.7

Le **tableau 4-12** montre bien que la granulométrie de (G1) est proche de celle de l'argile naturelle de Templeuve. La granulométrie de F_{35-Fin}, F₀ et G1 peut être classée (selon le système de coordonnées triangulaires donné dans le chapitre II) comme limono-sableuse, alors que celle de F_{35-gros} et G2 est classée comme sablo-limoneuse. Pour se rapprocher des conditions de préparation du mélange dans l'industrie de la terre cuite (extrusion en voie semi-humide : procédé de mise en forme le plus courant aux briqueteries), les mélanges ont été préparé de la manière suivante. Les sédiments et le sable ont d'abord été mélangés à sec puis malaxés avec de l'argile. Les échantillons de briques ont été séchés et cuits dans un four électrique programmable à deux températures différentes 985 et 1000°C.

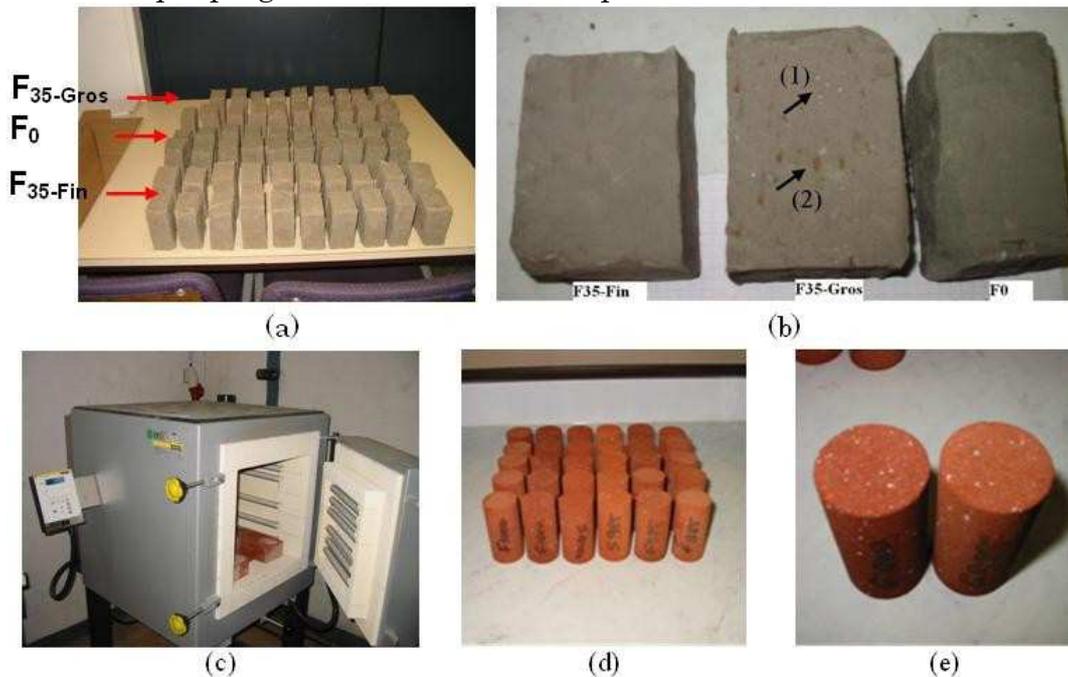


Photo 4-4 : Les échantillons après le séchage et la cuisson : a) les échantillons après le séchage. b) les particules blanches de calcaire sur les échantillons de F_{35-Gros}. c) le four électrique programmable utilisé pour la cuisson des briques. d) les échantillons après la cuisson : F (fin), G (grossier) et S (sans sédiment) désignent F_{35-Fin}, F_{35-Gros} et F₀. e) les particules de calcaire sur les échantillons de F_{35-Gros} après la cuisson.

Après le séchage, on a constaté la présence des taches blanches de calcaire sur les échantillons de F_{35-Gros} et qui y restaient après la cuisson (**photo 4-4**). Quand les grains de calcaire présents dans les sédiments sont suffisamment fins (< 1.5 mm) et bien répartis, la chaux se combine avec les autres éléments de

l'argile pour former des silicates d'alumine complexes (cf. IV.3.2), alors que quand la granulométrie est grossière, les granules de calcaire restent au sein de la brique et se transforment en gros grains de chaux vive et ne peuvent pas s'associer aux autres silicates.

IV.3.1. Influence de la granulométrie sur la plasticité du mélange

La plasticité du mélange est influencée par la fraction < 2 µm. Le **tableau 4-13** donne les valeurs de l'indice de plasticité déterminé pour les deux mélanges (F_{35-Gros} et F_{35-Fin}) comparées avec celle de F₀.

Tableau 4-13

Influence de la granulométrie sur la plasticité de la pâte

Mélange	Limite de liquidité (%)	Limite de plasticité (%)	Indice de plasticité
F _{35-Fin}	38.13	24.09	14.04
F _{35-Gros}	36.55	25.3	11.25
F _{0%}	39.2	20.8	18.4

Les valeurs de l'indice de plasticité montrent que ce paramètre est bien influencé par la granulométrie des sédiments. Pour le même pourcentage de sédiments (35 %), on a obtenu un gain de plasticité de ≈ 25 % pour F_{35-Fin} par rapport à F_{35-Gros}. Les particules fines améliorent la cohésion de la pâte et par conséquent son état plastique devient meilleur. Une meilleure cohésion donne un meilleur produit final car elle a une influence directe sur les propriétés de la brique.

IV.3.2. Etude du retrait

Le retrait à la cuisson est calculé par l'équation suivante :

$$\Delta = 100 * \left(\frac{L_f - L_c}{L_f} \right) \quad (\text{II.3.2.1})$$

où L_f , L_c sont la longueur de l'échantillon de la brique après façonnage et après cuisson respectivement.

Les valeurs du retrait pour F₀, F_{35-Fin} et F_{35-Gros} sont présentées sur la **figure 4-24**.

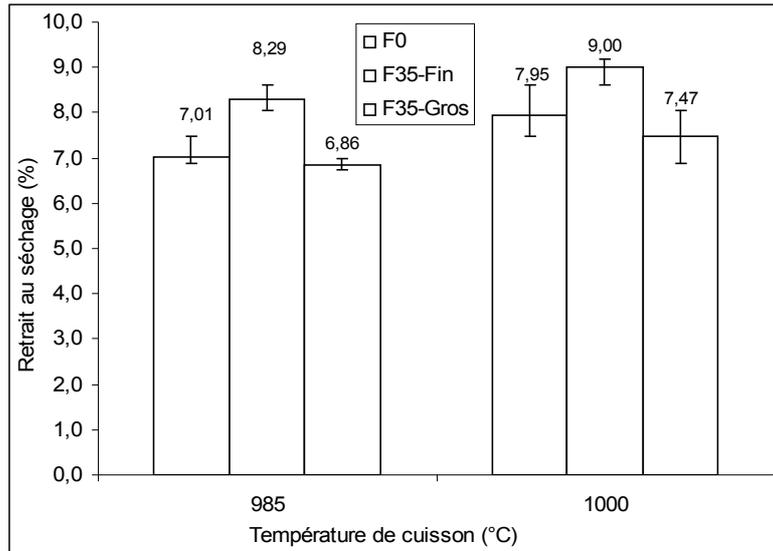


Fig.4-24 : Variation du retrait en fonction de la granulométrie du mélange et de la température de cuisson des briques

Le phénomène de retrait est étroitement lié au phénomène de frittage qui se produit pendant la cuisson des échantillons de brique (cf. annexe B).

Au cours du cycle thermique, la microstructure se met en place, par transport de matière entre les grains, afin de minimiser les excès d'énergies d'interface, se qui s'accompagne généralement d'une diminution de la porosité. Cette dernière se manifeste de façon macroscopique par un retrait par rapport à la pièce « crue ». [German, 1996; Bernache-Assollant, 1993].

Le transport de matière au cours de frittage en phase solide, est directement lié aux courbures des surfaces qui génèrent des contraintes à l'intérieur des grains. Au-dessus de 900 °C, dans les argiles non calcaires, les phases vitreuse et liquide se sont formées grâce à la présence des silicates [Emiliani *et al.*, 1999]. Cependant la présence de calcite fait que les sédiments traités ne développent pratiquement pas de phase vitreuse. Les photos MEB de la **figure 4-25** montrent que la vitrification est plus importante dans F₀, que dans F_{35-Fin} et F_{35-gros}. Le fait que la vitrification est plus importante dans les échantillons de F₀ peut également être expliqué par la proportion plus élevée de phyllosilicates comparée à celles de F_{35-Fin} et F_{35-Gros}. Ces phases peuvent libérer des quantités considérables de H₂O pendant la déhydroxylation, favorisant ainsi la formation du fondu d'aluminosilicates [Brearley *et al.*, 1990].

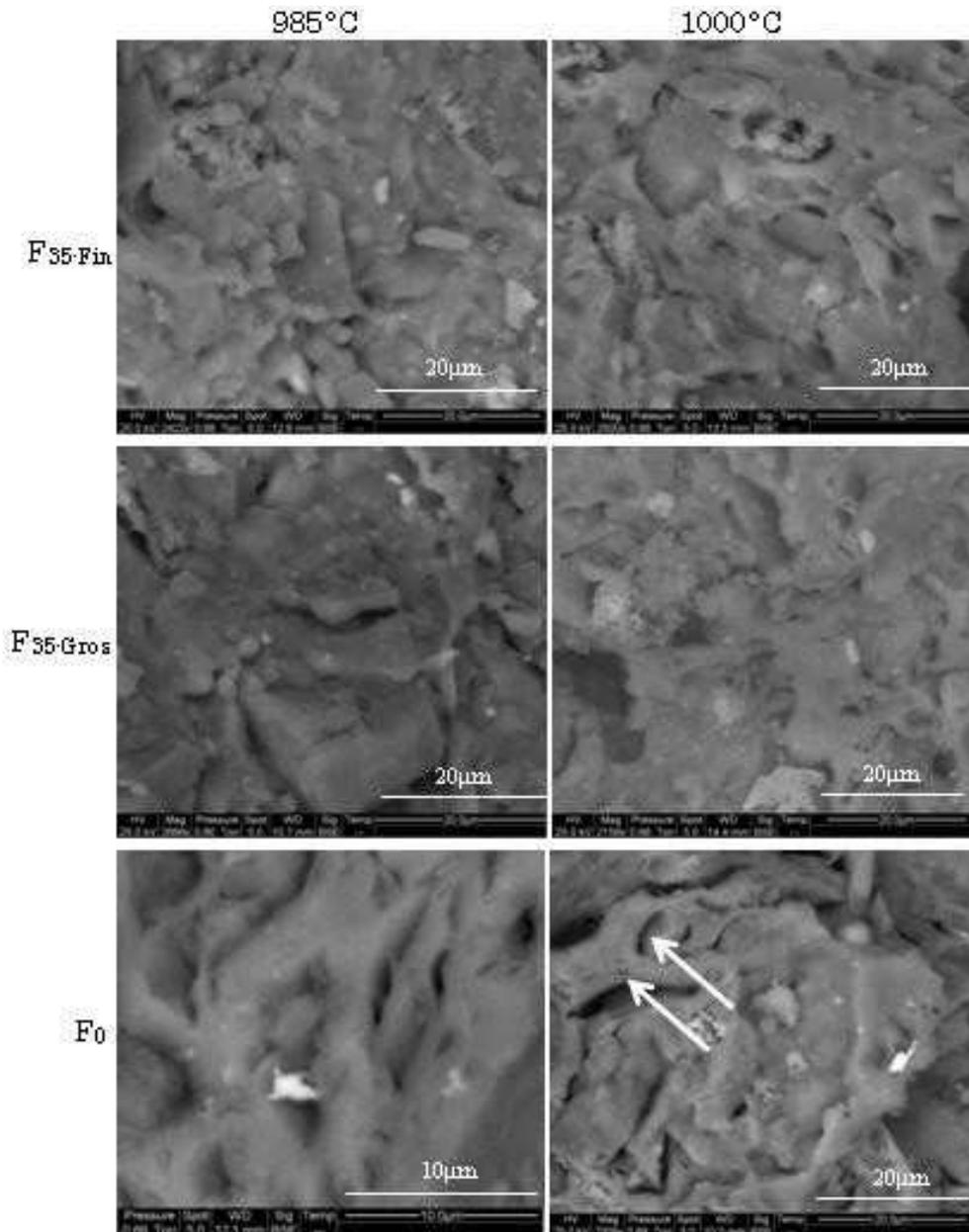
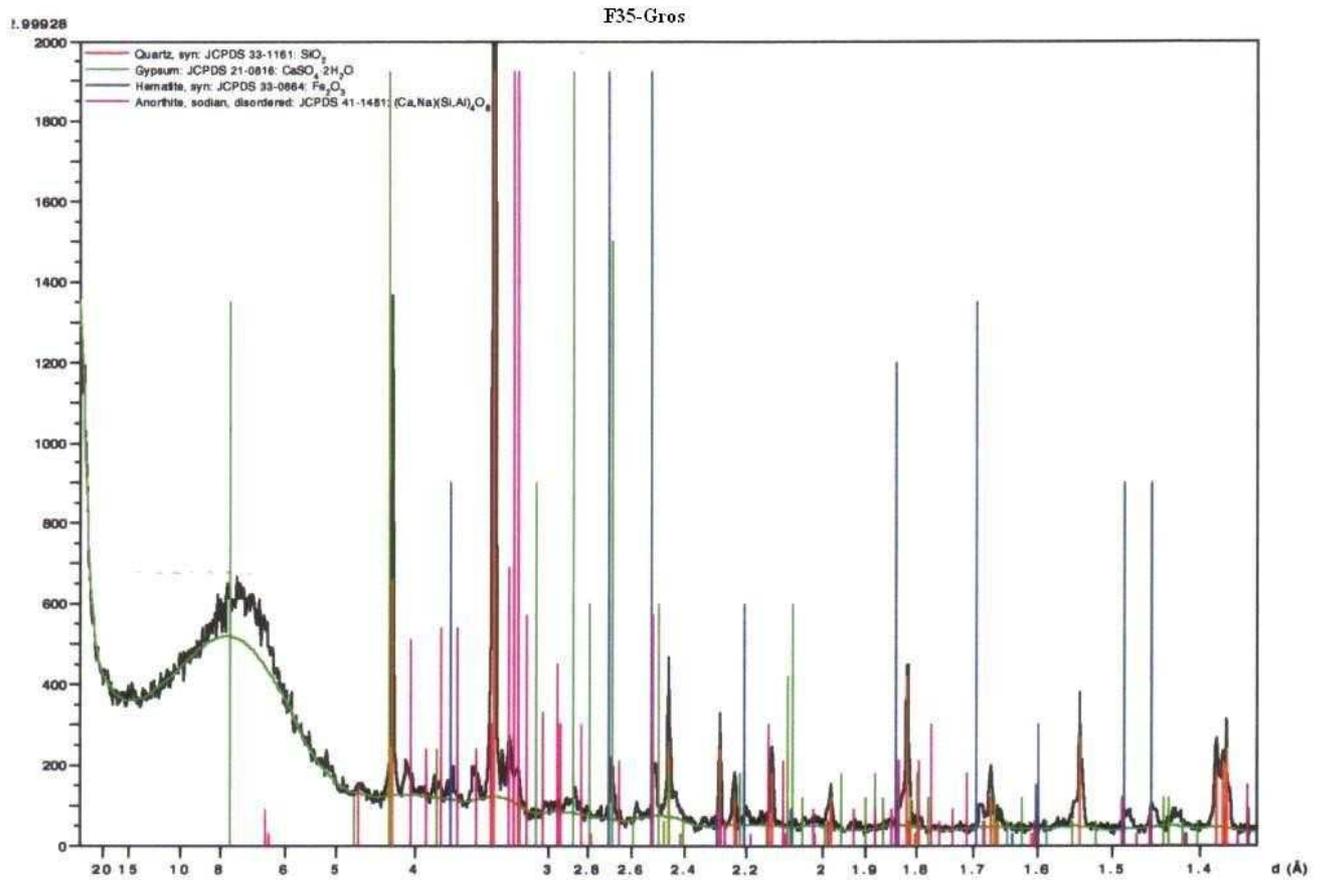


Fig. 4-25 : Présence de la phase vitreuse à 985°C dans : F_0 , F_{35-Fin} et $F_{35-Gros}$

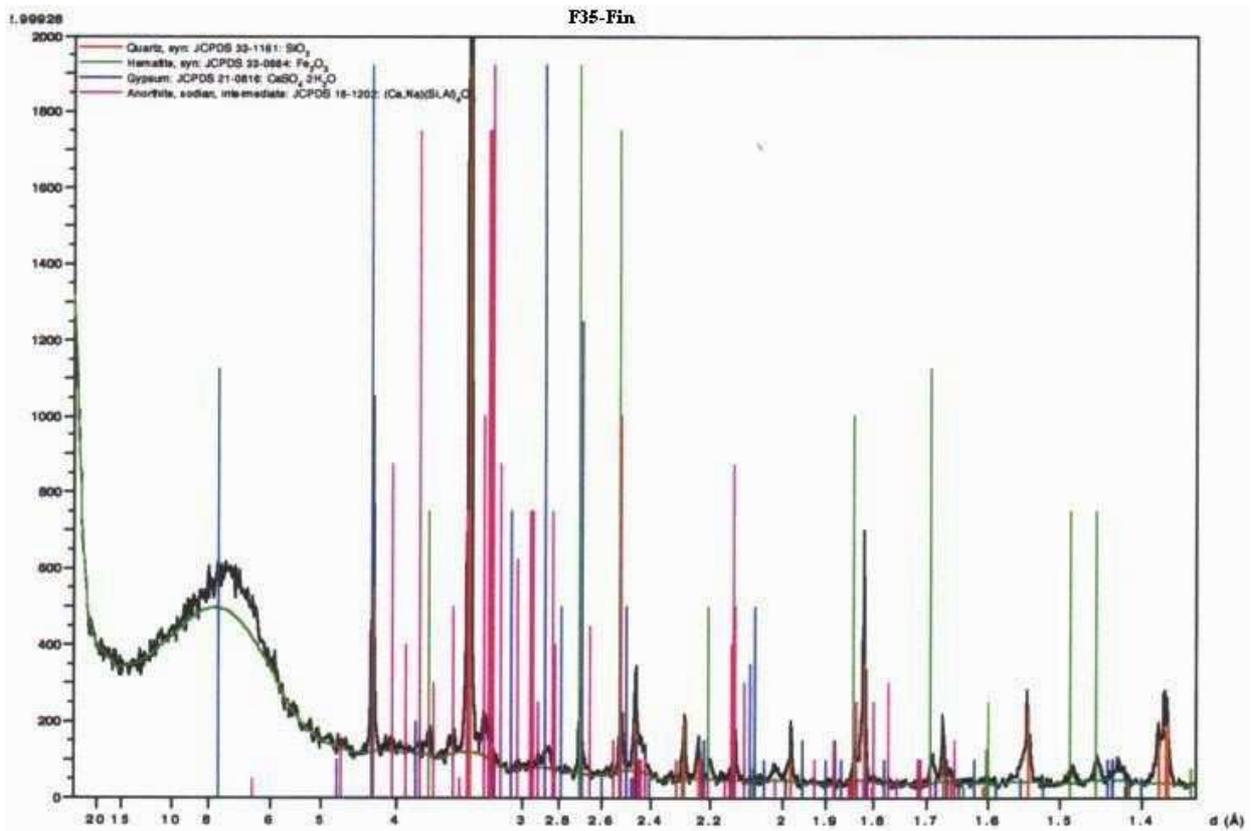
En effet, les carbonates (présents dans les sédiments) ne favorisent pas la vitrification à haute température ($> 900^{\circ}\text{C}$) [Everhart, 1957; Núñez *et al.*, 1992], mais participent au développement d'une microstructure stable jusqu'à 1050°C [Tite, 1975]. Ceci est dû au fait que la silice et l'alumine, résultant de la destruction des phyllosilicates (des minéraux argileux), réagissent avec le CaO (présent dans les sédiments traités) pour former des phases qui sont stables thermiquement comme l'anorthite et la gehlenite, qui empêche le développement d'un fondu d'aluminosilicates [Alía *et al.*, 1999; Cultrone *et al.*, 2004] .

L'analyse DRX réalisée sur les échantillons de F_0 , F_{35-Fin} et $F_{35-Gros}$ et donnée sur la **figure 4-26** indique la présence de l'anorthite dans F_{35-Fin} et $F_{35-Gros}$ (a et b).

Ainsi la consolidation, la densification et le comblement des porosités des échantillons de F_{35-Fin} et $F_{35-Gros}$ se fait principalement par frittage en phase solide durant la cuisson.



(a)



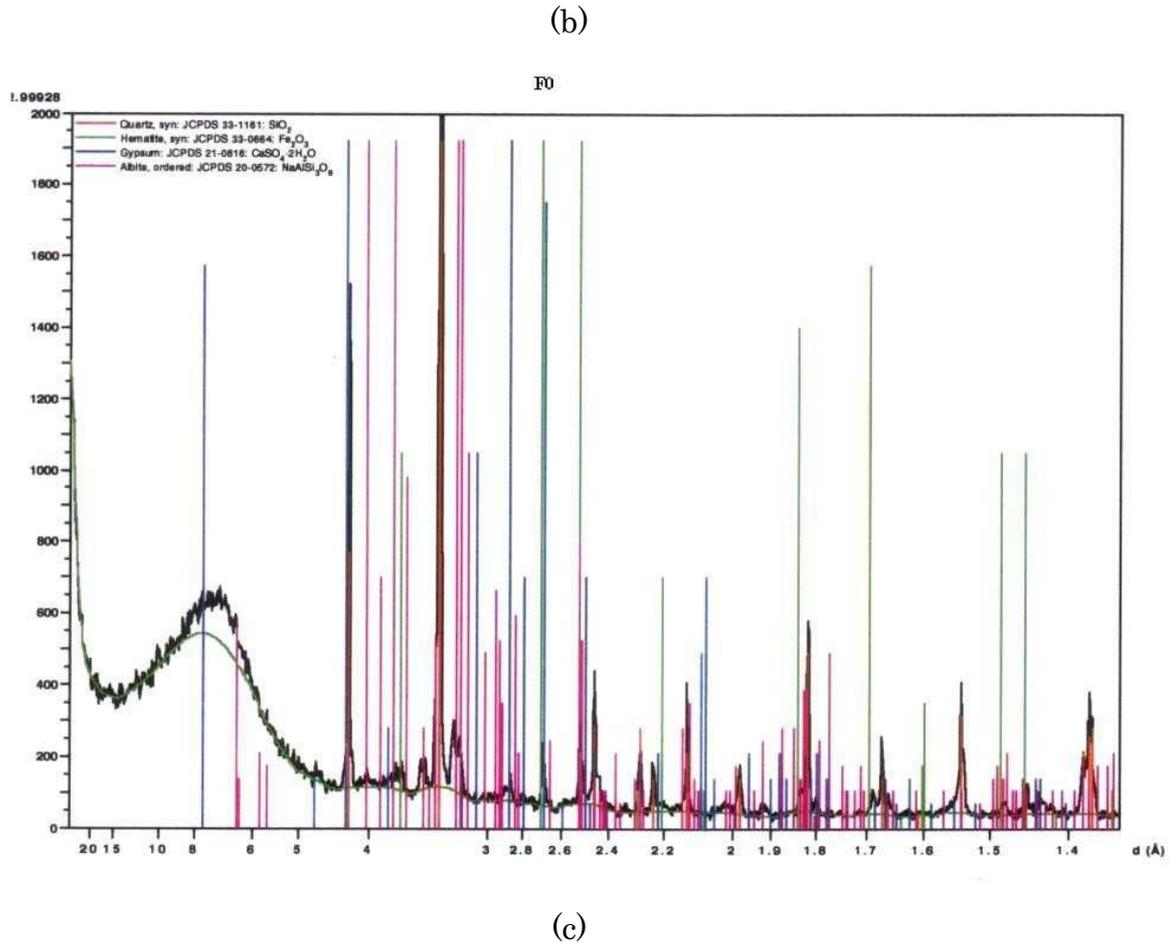


Fig. 4-26 : Diffractogrammes de : a) $F_{35-Gros}$; b) F_{35-Fin} ; c) F_0

L'existence des phases liquides augmente l'interaction entre les phases et augmente aussi la cinétique de réaction [Riccardi *et al.*, 1999]. Les hautes températures de cuisson favorisent, ainsi la consolidation et la densification du produit final. Par conséquent, les températures, telles que 900 ou 950° C, sont prises en tant que températures minimales pour la cuisson des produits en terre cuite [Callister, 2000 ; Santos, 1989 ; Emiliani *et al.*, 1999]. Cependant, à basse température l'union des particules et le comblement des porosités sont réalisés par les mécanismes de diffusion, qui peuvent avoir lieu durant le processus de frittage en phase solide [Kingery *et al.*, 1955 et 1976].

Ainsi, pour F_{35-Fin} l'augmentation de retrait de 21 % (à 985°C) et de 20 % (à 1000°C) par rapport à $F_{35-gros}$ est expliquée par le fait que la vitesse de frittage est liée à la taille des particules (cf. éq B.3 de l'annexe B). Plus cette taille est petite plus la vitesse est grande et par conséquent F_{35-Fin} fritte mieux que $F_{35-Gros}$ et son retrait est plus important.

L'augmentation de température de cuisson (de 985 à 1000 °C) a fait augmenter le retrait de 13.4, 8.6 et de 8.9 % pour F_0 , F_{35-Fin} et $F_{35-Gros}$ respectivement, ce qui montre bien l'influence de la température sur la diffusion de la matière et sur la vitesse de frittage (cf. éq B.4 de l'annexe B).

Le retrait de F_{35-Fin} est plus grand que celui de F_0 malgré que leur distribution granulométrique est pratiquement la même. Ceci peut être lié à la présence plus importante de la phase vitreuse dans F_0 . En effet, la phase vitreuse remplit les

espacements entre les grains et empêche le rapprochement des grains, réduisant ainsi le retrait.

IV.3.3. Etude de la porosité

La **figure 4-27** présente les résultats de test de porosité réalisé sur F_0 , $F_{35\text{-Fin}}$ et $F_{35\text{-Gros}}$.

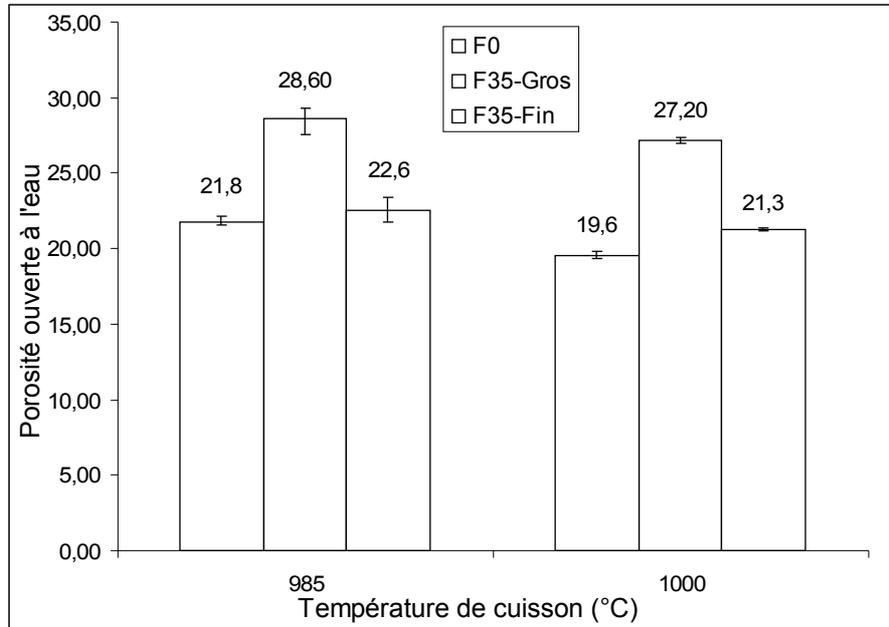


Fig. 4-27 : Influence de la granulométrie du mélange et de la température de cuisson sur la porosité de la brique.

Pour 35 % de substitution, l'utilisation de deux granulométries différentes (G1 et G2) fait augmenter la porosité de 27 % à 985°C (elle passe de 22.56 à 28.6 % pour $F_{35\text{-Fin}}$ et $F_{35\text{-Gros}}$ respectivement) et de 28 % à 1000°C. Cela est lié au fait que $F_{35\text{-Fin}}$ fritte mieux que $F_{35\text{-Gros}}$, (la diffusion de la matière est plus importante quand la taille des particules est plus petite) ce qui donne une brique plus dense et par conséquent moins poreuse (cf. **fig.4-25**). Ceci a été confirmé par les résultats de masse volumique donnés sur la **figure 4-29**. Avec l'augmentation de la température la diffusion de la matière est encore plus importante, ce qui fait combler la porosité.

A 1000°C, la porosité de F_0 (19.57 %) est inférieure à celle de $F_{35\text{-Fin}}$ (21.28 %), malgré que les deux granulométries soient pratiquement identiques. Ceci est expliqué par la présence plus importante de la phase vitreuse dans F_0 . Cette vitrification est accompagnée par une baisse de porosité liée à la fermeture des petits pores par la phase liquide (cf. flèches sur la **fig. 4-25**). En effet, la phase liquide arrive à combler les petits pores et réduit ainsi la porosité du produit final [Cultrone *et al.*, 2004], alors qu'avec le mécanisme de diffusion en volume, on arrive à réduire les espaces entre les particules.

La différence de porosité entre 985 et 1000°C pour les trois mélanges est liée à :

- Dans F_0 l'évolution de la vitrification, où la phase vitreuse enduit la fermeture des petits pores et diminue ainsi la porosité de 11.2 %.

- Dans $F_{35\text{-Fin}}$ et $F_{35\text{-Gros}}$, c'est la diffusion de la matière qui devient plus importante avec la température, ce qui conduit à une meilleure densification de produit final et au comblement des espaces entre les particules, diminuant ainsi la porosité de 6 et 5 % pour $F_{35\text{-Fin}}$ et $F_{35\text{-Gros}}$ respectivement.

On peut conclure que la porosité peut changer en fonction de :

- La granulométrie du mélange, c'est-à-dire en fonction de la granulométrie des sédiments incorporés dans le mélange. Plus la granulométrie est fine, plus la porosité est faible.
- La température de cuisson. Plus cette température est élevée, plus la porosité est faible.

IV.3.4. Etude de l'absorption d'eau

La **figure 4-28** présente les résultats d'absorption d'eau de trois mélanges. Ces résultats sont en parfaite harmonie avec ceux de la porosité et de la masse volumique. Pour le même pourcentage de sédiment (35 %) et en utilisant deux granulométries différentes (G1 et G2), on a obtenu une augmentation du coefficient d'absorption d'eau de 40.6 % à 985°C (il passe de 11.65 pour $F_{35\text{-Fin}}$ à 16.38 % pour $F_{35\text{-Gros}}$) et de 40.7 % à 1000°C. Cette augmentation de coefficient d'absorption est directement liée à la granulométrie qui influence la porosité qui est fortement liée à l'absorption d'eau. En effet, la porosité a augmenté de 31% à 985°C et de 32 % à 1000°C.

La diminution de coefficient d'absorption de F_0 , $F_{35\text{-Fin}}$ et $F_{35\text{-Gros}}$ en passant de 985 à 1000°C est liée à la diminution de porosité.

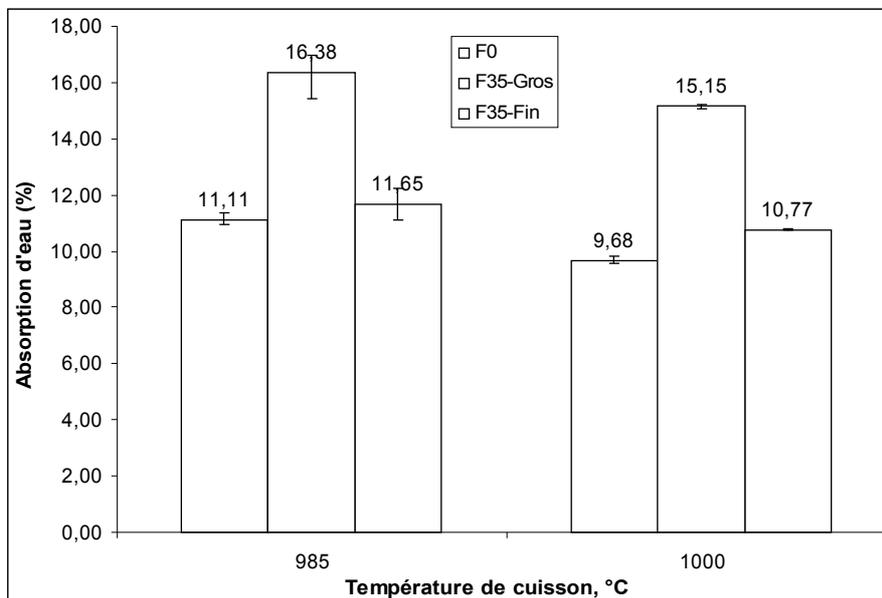


Fig.4-28 : Influence de la granulométrie et de la température de cuisson sur le coefficient d'absorption d'eau

IV.3.5. Etude de la masse volumique

La **figure 4-29** présente les valeurs de la masse volumique de F_0 , $F_{35\text{-Fin}}$ et $F_{35\text{-Gros}}$. On voit qu'à 985 et à 1000°C, la masse volumique de F_0 est supérieure à celle

de $F_{35\text{-Fin}}$ qui est à son tour supérieure à celle de $F_{35\text{-Gros}}$. L'augmentation de la masse volumique apparente de $F_{35\text{-Fin}}$ par rapport à $F_{35\text{-Gros}}$ est liée à la granulométrie. En effet, $F_{35\text{-Fin}}$ fritte mieux que $F_{35\text{-Gros}}$, ce qui engendre une diminution de la porosité et, par conséquent, permet d'obtenir une brique plus dense. La différence de masse volumique entre F_0 et $F_{35\text{-Fin}}$ (même granulométrie) est liée à la présence importante de la phase dans F_0 qui comble les pores et réduit la porosité, ce qui donne une brique plus dense (cf. **fig. 4-25**).

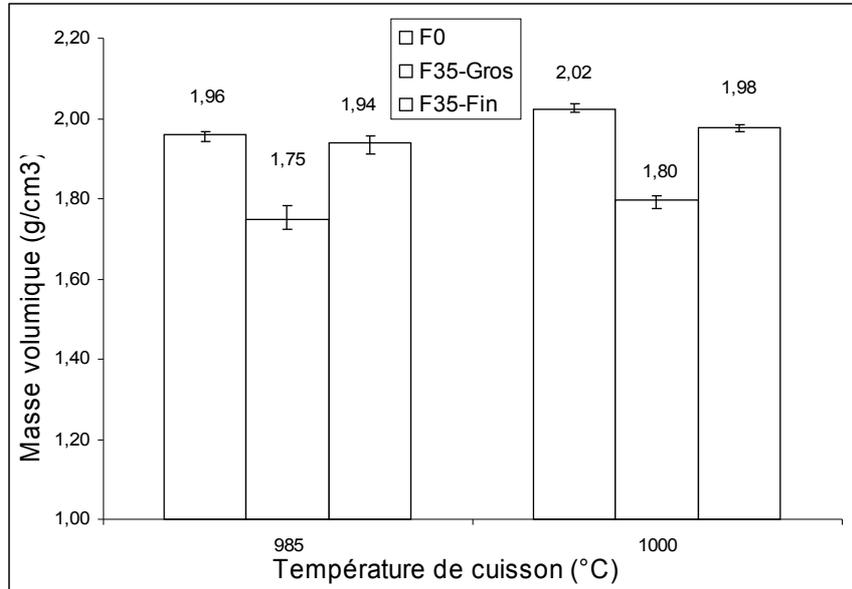


Fig.4-29 : Influence de la granulométrie et de la température de cuisson sur la masse volumique apparente

En passant de 985 à 1000°C, un gain de la masse volumique apparente de 3, 2 et 3 % pour F_0 , $F_{35\text{-Fin}}$ et $F_{35\text{-Gros}}$ respectivement est obtenu. En effet, pour $F_{35\text{-Fin}}$ et $F_{35\text{-Gros}}$, c'est la diffusion de matière qui devient plus importante avec la température, alors que pour F_0 , c'est l'évolution de la phase liquide qui résulte en une diminution de la porosité et par conséquent une augmentation de la masse volumique.

IV.4. Conclusion

Cette étude réalisée en laboratoire portait sur la valorisation des sédiments fluviaux pollués, après traitement, dans la brique cuite comme un matériau de substitution au sable et à l'argile de Templeuve. Elle s'est déroulée en deux phases. La première phase permettait de caractériser le comportement des briques produites en fonction du taux de substitution et d'en évaluer un optimum. Pour cela, quatre mélanges ont été préparés avec un taux de substitution variant entre 0 et 45%. La quantité de sédiment a un impact important sur la qualité de la brique [Lafhaj et *al.*; 2006 et 2007]. La porosité, l'absorption d'eau et la masse volumique sont largement dépendantes du taux de substitution. La porosité varie de 20.1% à 24.8%, le coefficient d'absorption d'eau de 10.47% à 14.02% et la masse volumique de 1.92 à 1.77 g.cm⁻³ pour les 25% et 45% de taux de substitution. L'étude des performances mécaniques a montré que la résistance à la compression est influencée par la quantité de sédiment. Elle

varie ainsi de 42.23 à 25.58 MPa pour 25% et 45% de substitution. Afin d'évaluer leur qualité, les briques produites ont été soumises à des tests de qualification exigés par la norme française (gel-dégel, absorption d'eau, dilatation à l'humidité, éclatement, efflorescence). De plus, une caractérisation environnementale a été réalisée sur les briques à base de sédiment. Les résultats de différents tests de lixiviation (à l'eau et à l'acide) ont montré que la brique produite à base des sédiments traités peut être considérée comme inerte pour la mise en décharge. Vu les propriétés physiques, mécaniques et chimiques des briques produites et le comportement non plastique du sédiment traité et son impact sur les propriétés de la brique produite et sur le processus de préparation de la pâte, le taux de 35% de substitution semble être le plus efficace. Ce taux est comparable à celui obtenu dans des études précédentes et notamment celle sur la valorisation des sédiments traités dans la matrice cimentaire, où un optimum de 33% de substitution de sable a été proposé [Agostini, 2006] et celle sur la valorisation des déchets de découpage de granite dans la brique cuite, où un taux de 35% a été retenu [Menezes *et al.*, 2005].

La deuxième phase permettait d'évaluer l'influence de certains paramètres comme la granulométrie du sédiment et la température de cuisson sur les propriétés de la brique. Les résultats obtenus ont montré que la granulométrie du sédiment et la température de cuisson sont des paramètres importants pour les propriétés du produit final. Une granulométrie plus fine et une température de cuisson plus haute donnent une brique moins poreuse et par conséquent plus résistante. Pour les sédiments calcaires (forte teneur en CaO), l'apparition des taches et des particules blanches sur la surface de la brique est directement liée à la granulométrie du sédiment.

Chapitre 5

Valorisation des sédiments
fluviaux pollués après inertage
dans la brique cuite : Essais
industriels

1. Introduction

L'étude de faisabilité en laboratoire présentée dans le chapitre 4 a montré que la composition minéralogique et la granulométrie du sédiment fluvial traité lui permettent de substituer à l'argile naturelle ou au sable de quartz, utilisés actuellement dans la production de briques cuites. Mais, le passage à l'échelle industrielle exige une compréhension globale du comportement de ce nouveau matériau vis-à-vis du processus de fabrication car l'objectif est de pouvoir l'introduire dans la production des briques sans aucune modification importante et coûteuse du procédé de fabrication. En effet, la préparation de la pâte est une phase cruciale dans le processus de production des briques et des tuiles.

C'est dans ce contexte qu'un essai préliminaire a été réalisé à l'usine de Templeuve. Une tonne de sédiment traité a été mise dans le distributeur habituellement utilisé pour le sable de Templeuve. Le sédiment a été mélangé avec l'argile de Templeuve et le mélange a été ensuite porté au broyeur par le tapis roulant. Il a été constaté que les meules du broyeur devaient être approchées du fond pour que le sédiment traité soit bien mélangé avec l'argile. Ainsi après le réglage du broyeur on a obtenu une pâte de plasticité satisfaisante pour les machines de fabrication. L'essai préliminaire a donc montré que le sédiment traité peut être introduit dans le processus de fabrication de briques sans aucune modification de ce dernier, mais il reste à savoir avec quelle quantité. Dans ce chapitre on présente le déroulement ainsi que les résultats de deux essais industriels réalisés à l'usine de Templeuve (Nord-Pas-de-Calais). L'interprétation des résultats et les conclusions sont détaillées.

V.2. Premier essai industriel (15 % de sédiment traité)

Dans le 1^{er} essai industriel, nous avons introduit 15 % de sédiment traité. Ce choix a été basé d'un côté sur le manque d'information sur le comportement de ce matériau vis-à-vis les machines de production et de l'autre côté sur son comportement non plastique qui peut influencer le processus de préparation de la pâte.

V.2.1. Matériaux et méthodes

Les sédiments qui ont fait l'objet du premier essai industriel ont été prélevés dans le canal de Charleroi-Bruxelles à Dampremy en Belgique (**photos 5-1 et 5-2**). Cette région a une activité industrielle très importante qui a entraîné une pollution importante surtout dans les communes environnantes des usines

sidérurgiques, comme Dampremy. Cela explique les fortes teneurs en métaux lourds dans le sédiment traité qui dépassent largement les seuils de référence GEODE, N1 et N2 (cas de zinc et de plomb: cf. **tableau 5-1**) car le traitement n'élimine pas les éléments traces mais il les fixe dans la matrice solide.



Photo 5-1 : Le site de Dampremy



Photo 5-2 : Le site de Dampremy

Le **tableau 5-1** donne les caractéristiques physico-chimiques du sédiment traité.

Tableau 5-1

Caractérisation physico-chimique du sédiment fluvial traité de Dampremy

Caractérisation chimique et minéralogique	
	Sédiment de Lille
Dosage des éléments (mg/kg de matière sèche)	Al : 220 ; Mg : 2128.6 ; K : 10209 ; Cd : 12.8 ; Co : 22.8 ; Cr : 413.1 ; Cu : 150.7 ; Fe : 114714 ; Mn : 1883 ; Pb : 1372.8 ; Zn : 5032
DRX	<ul style="list-style-type: none"> ▪ Composés principalement de Quartz (SiO₂) ▪ Une présence marquée d'hématite (Fe₂O₃) et de Calcite (CaCO₃) ▪ Des traces de Feldspath [anorthite Ca₂(Na)Al₂(Si,Al)₄O₈], de Mica [muscovite KAl₂(Si₃Al)O₁₀(OH,F)₂]
Caractérisation physique	
Analyse granulométrique (granulométrie laser)	<ul style="list-style-type: none"> ▪ Fraction de sable grossier: 15 % ▪ Fraction de sable moyen: 13 % ▪ Fraction de sable fin: 32 % ▪ Fraction de limon : 38 % ▪ Fraction d'argile : 2 %
Surface spécifique (m ² .g ⁻¹)	3.8
Masse volumique absolue (g.cm ⁻³)	2.7 (comparable à celle de quartz et de calcite)

L'analyse DRX montre que le matériau traité est composé majoritairement de quartz. Elle révèle une présence marquée d'hématite et de calcite avec des traces de feldspath et de mica. La présence majoritaire de quartz permet au sédiment traité de substituer au sable de quartz utilisé actuellement à la BdN. La forte teneur en oxyde de fer favorise l'utilisation du sédiment traité dans la production des briques car le fer joue le rôle de flux ce qui permet aux constituants du mélange (dans des conditions spécifiques) de fondre à une températures plus basse [Anderson *et al.*, 1996; Anderson *et al.*, 2002]. La distribution granulométrique permet (en utilisant le système de coordonnées triangulaires donné dans le chapitre II) de classer le matériau traité comme sable limoneux, ce qui lui permet selon le diagramme de Winkler [Winkler, 1954] donné dans le chapitre IV d'être utilisé dans la production des briques pleines et perforées. La surface spécifique est proche de celle du sédiment de Lille (5.9 m².g⁻¹). La masse volumique absolue du sédiment traité est comparable à celle de calcite (2.6 -2.8 g.cm⁻³) ou de quartz (2.6 g.cm⁻³).

Le **tableau 5-2** donne les compositions de la pâte d'une brique standard produite habituellement à la BdN et celle du premier essai industriel. On note que le sédiment traité remplace le sable de Templeuve. Ce choix a été basé sur la composition minéralogique du matériau traité, sa granulométrie et son

comportement non plastique qui influence l'état plastique du mélange. Vu que la fraction limoneuse dans le sédiment traité est 5 fois plus importante que celle du sable de Templeuve et que la fraction du sable fin est 2 fois moins importante, on a gardé les 5 % du sable de Rhein dans le mélange. En effet le sable de Rhein est un sable de quartz dont la granulométrie est plus grossière que celle du sable de Templeuve. Il est utilisé avec un faible pourcentage (5 %) pour limiter le retrait du produit final. Le **tableau 5-3** présente la distribution granulométrique des deux sables. On note que la fraction du sable grossier dans le sable de Rhein est 3 fois plus importante que celle du sable de Templeuve et que la fraction du sable moyen est 4 fois plus importante.

Ainsi l'argile demeure le composant principal de la pâte pour obtenir une plasticité adéquate du mélange.

Tableau 5-2

Composition de la brique standard de Templeuve et celle du premier essai industriel

Produit	Mélange de la brique standard (BdN)	Mélange du premier essai industriel
Sédiment traité (%)	0	15
Sable de Templeuve (%)	20	0
Sable de Rhein (%)	5	5
Argile naturelle (%)	75	80

Tableau 5-3

Distribution granulométrique du sable de Templeuve et du Rhein (utilisés comme dégraissant à la BdN)

Distribution granulométrique (%)	Sable de Templeuve	Sable de Rhein
Sable grossier > 500µm	5	15
Sable moyen 250 – 500 µm	10	40
Sable fin 62.5 – 250 µm	77.8	44.5
Silt 2.5 – 62.5 µm	7.2	0.5
Argile < 2.5 µm	–	–

Les sédiments, préalablement humidifiés, ont été et mélangés avec l'argile de Templeuve. Le mélange est en suite porté par le tapis roulant au broyeur à meule, où l'eau est ajoutée pour assurer la constance des propriétés mécaniques du mélange. Le façonnage est réalisé par extrusion. Une pompe à vide est utilisée pour expulser l'air du mélange et améliorer la plasticité et la cohésion du mélange (cf. **fig. 3-7**). Le séchage et la cuisson sont réalisés selon les programmes donnés sur les figures **4-11** et **4-12**. La **figure 5-1** présente la brique produite avec 15% de sédiment traité.



Fig. 5-1 : Briques 22x22 produites avec 15% de sédiment fluvial traité

V.2.2. Tests de qualification des briques produites à l'échelle industrielle et contenant 15 % de sédiment traité

Avant d'être utilisées dans le domaine de construction, les briques doivent subir des tests de qualification exigés par les normes françaises NF P13-304 comprenant le retrait, la résistance à la compression, la résistance aux cycles de gel-dégel, l'absorption d'eau. En plus, nous avons réalisé des tests de lixiviation pour étudier l'impact de la brique produite sur l'environnement. Les résultats seront comparés avec ceux d'une brique standard produite dans les mêmes conditions. Il faut noter ici que les résultats des tests de qualification sont très attendus car les briques produites sont de taille réelle (22x22 cm) et ces résultats sont donc déterminants pour leur future utilisation dans la construction.

V.2.2.1. Retrait

Le test a été réalisé sur 10 briques du premier essai industriel et sur 10 briques standards produites dans la même période (même argile, mêmes conditions de séchage et de cuisson). Les résultats sont donnés dans le **tableau 5-4**. On note que le retrait des briques du 1^{er} essai industriel est supérieur à celui de la brique standard. Ceci est lié à la granulométrie du mélange. Le sédiment traité remplace complètement le sable de Templeuve ce qui rend la granulométrie du mélange plus fine (cf. **tableau 5-3**). Un mélange ayant une granulométrie fine fritte mieux qu'un mélange ayant une granulométrie grossière, ce qui engendre un retrait plus important.

Tableau 5-4

Résultats du test de retrait

Produit	% Retrait après cuisson
Brique standard de la BdN	7
Briques du 1 ^{er} essai industriel	10

V.2.2.2. Porosité et absorption d'eau

Les tests de porosité et d'absorption d'eau ont été effectués sur cinq briques selon la procédure proposée par Khalaf et DeVenny [Khalaf et al., 2002]. Les briques ont été concassées sur une plaque métallique à l'aide d'un marteau. Les morceaux des briques ont été mélangés pour obtenir un échantillon représentatif et tamisés sur des tamis de 20 et de 14 mm (**fig.5-2**). Les essais de porosité et

d'absorption ont été réalisés sur le refus de tamis de 14 mm (échantillon d'une masse supérieure à 100g). Les échantillons sont séchés dans une étuve à 105°C jusqu'à masse constante. Ils sont placés dans un dessiccateur pendant 0.5 h pour se refroidir et la masse de l'échantillon sec est déterminée (masse **A**). La suite de cette procédure est identique à celle décrite dans (IV.2.2.1), mais avec un temps d'immersion égal à 16 h.



Fig. 5-2 : Préparation des échantillons et réalisation du test de porosité

Les figures 5-3 et 5-4 présentent les résultats de ces deux tests réalisés sur des briques du 1^{er} essai industriel et des briques standards de Templeuve. On note que la brique standard de Templeuve est plus poreuse que celle du 1^{er} essai industriel. L'ajout des sédiments rend la granulométrie du mélange plus fine car ils remplacent le sable de Templeuve. La brique produite avec une fraction importante de sable a tendance à être plus poreuse, moins dense et plus perméable [Warren, 1999]. Par ailleurs, selon la théorie du frittage, au cours du cycle thermique le transport de matière entre les grains (afin de minimiser les excès d'énergies d'interface) est généralement accompagné d'une diminution de la porosité proportionnelle à la taille des particules.

Le coefficient d'absorption d'eau des briques du 1^{er} essai industriel est inférieur à celui des briques standards de Templeuve. Cela rejoint les résultats de porosité car ces deux paramètres sont étroitement liés, car l'absorption d'eau donne une idée globale sur la porosité de la brique.

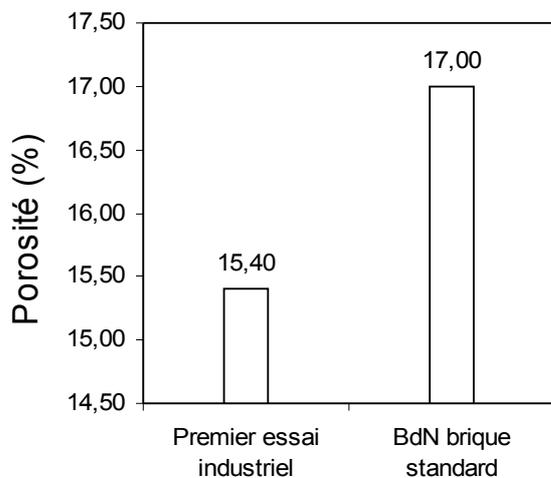


Fig. 5-3 : 1^{er} essai industriel
Test de porosité ouverte à l'eau

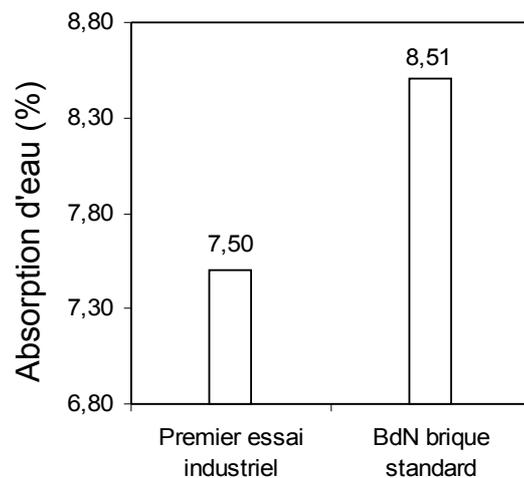


Fig. 5-4 : 1^{er} essai industriel
Test d'absorption d'eau

V.2.2.3. Résistance à la compression (Norme NF EN 772-1)

L'essai a été réalisé sur 10 briques entières. Il consiste à casser la brique sous une charge de compression. Les Briques testées sont préalablement surfacées (par meulage sous eau) et conservées dans des conditions thermo-hygrométriques spécifiques. La brique est placée suivant sa direction prescrite de pose entre les plateaux d'une machine d'essai et chargée en compression perpendiculairement à sa face de pose jusqu'à rupture. La charge maximale atteinte est notée. La contrainte de rupture est alors calculée en divisant la charge de rupture par la section brute de l'élément (longueur x largeur). Le **tableau 5-5** donne les valeurs moyennes de la résistance à la compression de la brique standard de Templeuve et celle du 1^{er} essai industriel.

Tableau 5-5

Valeurs moyennes de la résistance à la compression en MPa

Produit	Brique standard de Templeuve	Brique du 1 ^{er} essai industriel
Résistance moyenne à la compression	22	36

La résistance à la compression des briques du 1^{er} essai industriel est supérieure à celle de la brique standard de Templeuve. Un gain de résistance à la compression de 63.6 % a été obtenu. En effet, la substitution du sable de Templeuve par le sédiment traité rend la granulométrie du mélange plus fine ce qui a engendré un retrait plus important par rapport à celui de la brique standard de Templeuve (cf. **tableau 5-4**). Ceci donne une brique plus dense et moins poreuse et par conséquent plus résistante. Par ailleurs, la fraction > 30 µm dans le sable de Templeuve est inférieure à celle dans le sédiment traité (composé majoritairement du quartz), ce qui affaiblit les propriétés mécaniques de la brique. En référence à la norme française NF P 13-304 qui établit 4 catégories de résistance, les briques produites se classent dans la catégorie BP300 dont les critères sont une résistance moyenne supérieure à 30 MPa et une résistance minimale supérieure à 24 MPa. La norme européenne ne fixe pas de catégories de brique selon la résistance moyenne, mais elle fixe deux niveaux de confiance d'atteindre la résistance moyenne déclarée I et II. Pour le niveau II aucun indice de confiance n'est fourni tandis que le niveau I correspond à une probabilité de 5% de ne pas atteindre la résistance moyenne déclarée. Les briques produites se classent en catégorie I avec une résistance caractéristique (correspondant à 5%) de 32.3 MPa.

V.2.2.4. Résistance au gel (Norme NF P 13-304)

L'essai a été effectué sur 10 briques entières. Il consiste à faire subir à des éléments de maçonnerie **25 cycles** de gel-dégel et d'observer les éventuelles altérations apparaissant et les pertes de matière concomitantes. Après un séchage complet et pesée initiale, les éléments testés sont immergés dans l'eau pendant 48 heures puis placés pendant 4 heures sur une plaque métallique refroidie à -15°C en reposant sur leur grande face apparente. Après 4 heures de retour à 20°C ils sont immergés dans l'eau pendant 15 heures. Pour déterminer

la résistance limite de nos briques (du 1^{er} essai industriel), l'opération gel - dégel a été répétée **50 fois**. A l'issue de ces opérations, les éprouvettes sont rincées à l'eau sous pression contrôlée et séchées jusqu'à masse constante. Après une pesée finale, les briques sont examinées pour relever d'éventuelles altérations et la perte de masse subie est calculée. Le **tableau 5-6** présente les pertes de masse des éléments testés et les observations notées à l'issue de ce test.

Les pertes de masse pour tous les éléments testés et exposés à 50 cycles de gel-dégel, sont inférieures à 1 % (la limite donnée par la norme française [NF P13-304] après 25 cycles). De plus, ni exfoliation, ni fissuration, ni feuilletage, ni écaillage n'ont été observés sur tous les échantillons examinés.

Pour mieux comprendre le comportement de la brique aux cycles de gel-dégel, il faut des tests supplémentaires comme la porosité mercure qui permet de mesurer les tailles et la distribution des tailles des pores car ces deux paramètres influencent directement la résistance de la brique au gel-dégel.

Tableau 5-6

Perte de masse (%) des échantillons de brique suite à 50 cycles de gel-dégel

Elément	Altérations observées	Perte de masse (%)	Observation
1	Néant	0.4	
2	Néant	0.3	
3	Néant	0.4	
4	Néant	0.3	
5	Néant	0.4	*Cratère (1-2 mm)
6	Néant	0.4	
7	Néant	0.4	
8	Néant	0.4	*Cratère (1-2 mm)
9	Néant	0.3	
10	Néant	0.3	

* cratère du à l'éclatement produit au démarrage de l'essai suite à l'hydratation de la chaux (changement de volume, cf. IV.2.2.1).

V.2.2.5. Tests de lixiviation

V.2.2.5.1. Norme française (XP X 31-210 Mai 1998)

Le **tableau 5-7** montre les résultats de lixiviation réalisée sur des échantillons de chaque mélange selon la norme française. Les échantillons de brique ont été concassé, tamisés (< 4mm) et lixiviés pendant 24 heures avec de l'eau déminéralisée. Les lixiviats sont en suite récupérés et analysés en ICP.

On note que le pH des briques du 1^{er} essai industriel est supérieur à celui des briques standards de Templeuve. Cela est du à la transformation de calcite (CaCO₃) présente dans les sédiments calcinés en oxyde de calcium (CaO).

Les résultats montrent que les concentrations des métaux lourds (Cd, Cu, Ni, Pb, Zn), dans les briques du 1^{er} essai industriel sont au-dessous des limites données par la directive décharge. Les quantités de métaux lourds lixiviés par les

briques sont inférieures à celles des sédiments traités. Ceci peut être expliqué par le fait que les métaux lourds ont été soit immobilisés dans la phase vitreuse soit transformés en forme d'oxydes moins soluble pendant la cuisson de la brique.

Tableau 5-7

Test de lixiviation réalisé sur des échantillons de brique selon la norme française en mg/kg de la masse sèche

Elément	Brique standard de Templeuve pH = 7.6	Brique du 1 ^{er} essai industriel pH = 8.9	Sédiment fluvial traité pH=11.4	Valeurs limites applicables aux déchets admissibles dans les décharges pour déchets inertes L/S=10 (l/kg)	Valeurs limites applicables aux déchets admissibles dans les décharges pour déchets non dangereux L/S=10 (l/kg)
Cd	< 0.02	< 0.02	< 0.01	0.04	1
Cu	< 0.03	< 0.03	< 0.1	2	50
Zn	0.177	0.053	0.18	4	50
Ni	< 0.07	< 0.07	< 0.08	0.4	10
Pb	< 0.2	< 0.2	< 0.2	0.5	10

V.2.2.5.2 TCLP [Toxicity Characteristic Leaching Procedure: TCLP]

Le **tableau 5-8** montre les résultats de TCLP effectuée sur différents échantillons de brique du 1^{er} essai industriel et celle de Templeuve. Les échantillons de brique ont été broyés et tamisé sur un tamis de 1 mm.

Les quantités des métaux lourds extraites par la solution acide sont plus importantes que celles obtenues par la lixiviation à l'eau déminéralisée, mais elles sont toujours au-dessous des limites de la TCLP. Nous pouvons également noter que les quantités de métaux lixiviés de la brique cuite sont inférieures aux celles des sédiments traités, confirmant que la cuisson a mené à une meilleur stabilisation des métaux lourds. Les résultats dans les **tableaux 5-7** et **5-8** montrent que la brique produite à base des sédiments traités peut être considérée comme inerte pour la mise en décharge.

Tableau 5-8

Valeurs de TCLP en mg/kg de la masse sèche

Elément	Brique standard de Templeuve pH = 4.97	Brique du 1 ^{er} essai industriel pH = 4.92	Sédiment fluvial traité pH = 4.65	Limite de TCLP
Cd	< 0.04	< 0.04	0.31	1.0
Cu	0.2	0.1	0.76	15
Zn	3.3	3.7	13.8	25.0
Ni	0.67	< 0.14	0.9	-
Pb	< 0.4	< 0.4	1.65	5.0

V.2.3. Présence des particules et des tâches blanches sur le produit final

A la sortie du four tunnel, des tâches blanches ont été observées à la surface de la plupart des briques produites (15000 briques perforées) (cf. **photo 5-3**).

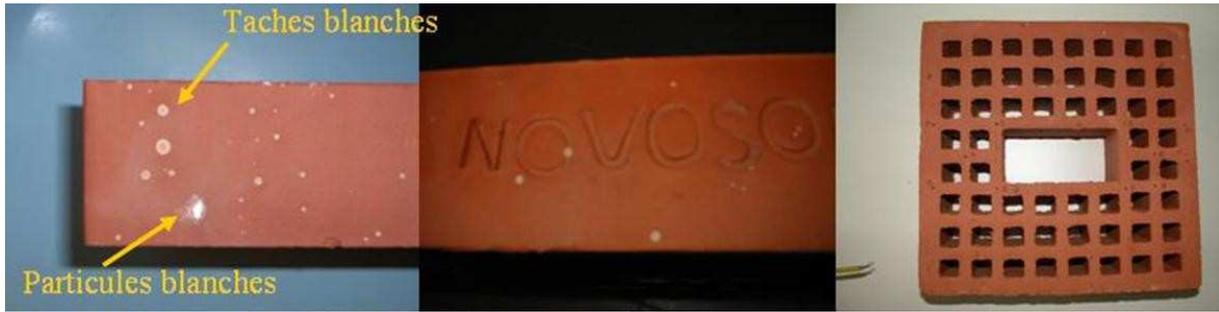


Photo 5-3 : *Présence des tâches blanches sur la surface des briques cuites*

Pour étudier la nature de ces tâches, on a eu recours au microscope électronique à balayage (MEB). L'observation au MEB indique la présence de gypse ($\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$) et des traces de barytine (sulfate de baryum BaSO_4) (cf. Annexe C). Ceci est lié à la présence marquée de calcite dans le matériau traité (cf. **photo 5-4**). En effet quand les grains de calcaire présents dans le sédiment traité sont suffisamment gros ($> 1.5 \text{ mm}$) ils ne peuvent pas s'associer aux autres silicates pour former des silicates d'alumine complexes (cf. IV.3.2) et restent au sein de la brique. A hautes températures (autour de 800°C) la calcite se transforme en chaux vive qui se combine avec le dioxyde de soufre [Tourneret et al., 1999].

Cette réaction dépend des conditions de cuisson et de l'atmosphère à l'intérieur du four tunnel [Wriedt, 1973].

La présence des particules de calcaire et des tâches blanches sur la surface est inesthétique pour les briques apparentes et tuiles. En revanche, pour les briques de structure cette présence n'est pas gênante car elle n'affecte pas leurs propriétés physiques et mécaniques.



Photo 5-4 : *Présence de la calcite dans le sédiment traité*

V.3. Deuxième essai industriel (27 % de sédiment traité)

Les résultats du 1^{er} essai industriel ont montré que l'introduction de 15 % de sédiment traité dans le mélange n'a engendré aucune anomalie au niveau du produit final et du processus de fabrication de briques. Le seul inconvénient était la présence des taches et des particules blanches sur la surface des briques et le retrait qui était plus important que celui de la brique standard de Templeuve. C'est dans ce contexte qu'un double essai a été envisagé dans le but d'introduire dans le mélange une quantité plus importante de sédiment que celle du premier

essai, d'éviter les tâches blanches sur la surface des briques et de diminuer le retrait du produit final.

Ainsi deux mélanges (A et B) ont été préparés, où 27 % de sédiment traité ont été incorporé. La différence entre eux réside dans la granulométrie du sédiment utilisé car il est fort probable que la présence des particules blanches sur la surface des briques est liée à la distribution granulométrique (tailles des particules) de ce dernier. Afin de diminuer le retrait à la cuisson, la moitié de sable de Templeuve a été réintroduite dans le mélange. La **figure 5-5** donne la distribution granulométrique du sédiment utilisé dans chaque mélange.

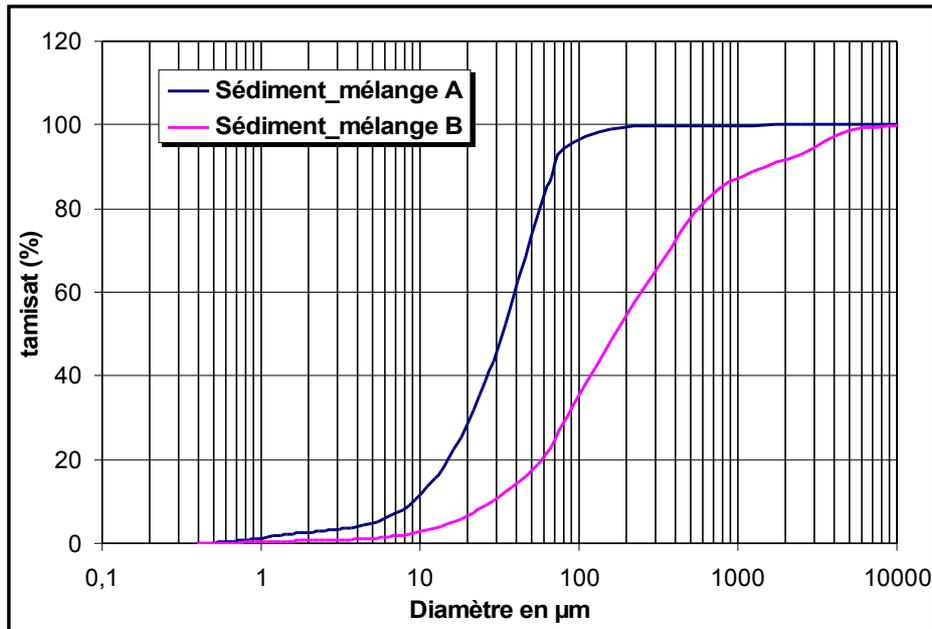


Fig.5-5 : Distribution granulométrique de sédiment traité utilisé dans les deux mélanges (A et B) du 2^e essai industriel

On note que la granulométrie du sédiment du mélange A est plus fine que celle du mélange B. En utilisant le système de coordonnées triangulaires donné dans le chapitre II, le sédiment du mélange A est classifié comme silt (limon) sableux tandis que celui du mélange B est considéré comme sable limoneux.

V.3.1. Matériaux et méthodes

La préparation de la pâte, le séchage et la cuisson des briques ont été réalisés de la même manière que pour le 1^{er} essai industriel. Pour le mélange A, aucun changement de processus de fabrication n'a été effectué et aucun problème n'a été signalé pendant la production des briques. En revanche, le mélange B a demandé plus d'eau au niveau de broyeur pour arriver au même état plastique que celui de la brique standard de Templeuve car la plasticité du mélange est influencée par la fraction < 2 µm (cf. **tableau 4-13**).

A la sortie du four tunnel, des tâches blanches ont été observées à la surface de la plupart des briques du mélange B. en revanche, aucune tâche n'a été détectée sur les briques du mélange A (cf. **photo 5-5**). Cela rejoint les résultats obtenus au laboratoire (cf. IV.3) et indique que la granulométrie du sédiment joue un rôle important dans la formation de ces tâches.

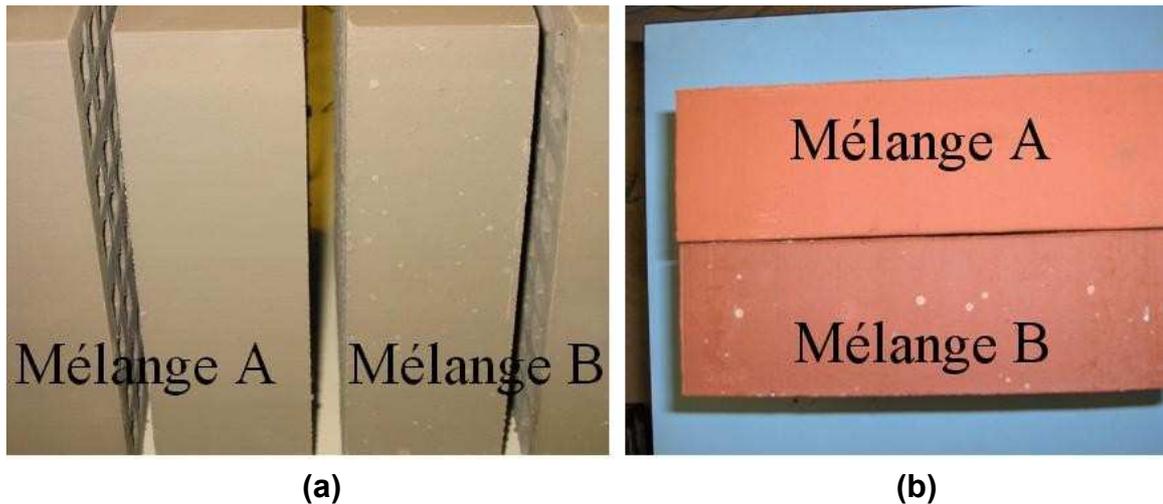


Photo 5-5 : *Présence des tâches blanches sur les briques du mélange B : a) avant cuisson ; b) après cuisson*

V.3.2. Tests de qualification des briques produites à l'échelle industrielle et contenant 27% de sédiment traité

V.3.2.1. Retrait

Le **tableau 5-9** donne le retrait des briques de deux mélanges (A et B). On note que le retrait du mélange A est supérieur à celui du mélange B. Cela est dû à leurs distributions granulométriques. Le mélange A, ayant une granulométrie plus fine, fritte mieux que B, ce qui engendre un retrait plus important. On note également que les valeurs du retrait des deux mélanges sont inférieures à celle du 1^{er} essai industriel (cf. **tableau 5-4**). Cela est expliqué par la présence du sable de Templeuve (15 %) dans le 2^e essai industriel ce qui rend la granulométrie plus grossière que celle du 1^{er} essai, où le sable de Templeuve a été substitué par le sédiment traité. Par conséquent le retrait est moins important.

Tableau 5-9

Résultats du test de retrait du 2^e essai industriel

Produit	% Retrait après cuisson
Brique du mélange A	8.9
Brique du mélange B	7.6

V.3.2.2. Porosité et absorption d'eau

Le test de porosité et d'absorption d'eau ont été effectués sur cinq briques selon la procédure décrite en II.3.2. Les **figures 5-6** et **5-7** présentent les résultats de ces deux tests. Ils montrent que les briques du mélange B sont plus poreuses que celles du mélange A. Cela est lié d'un côté à la granulométrie du mélange et de l'autre côté à la présence des grains de calcite (> 1.5 mm) dans le mélange B. En effet, le mélange A, ayant une granulométrie plus fine que celle du mélange

B, fritte mieux que ce dernier, ce qui résulte en une diminution de la porosité proportionnelle à la taille des particules. Les grains de calcite (> 1.5 mm) présents dans le mélange B engendre une diminution de la porosité (cf. IV.2.2.1).

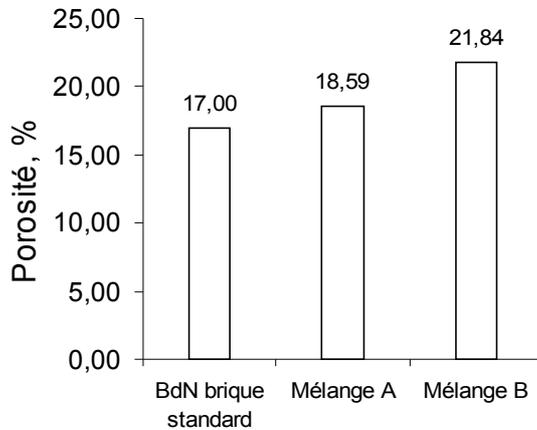


Fig. 5-6 : 2^e essai industriel
Test de porosité ouverte à l'eau

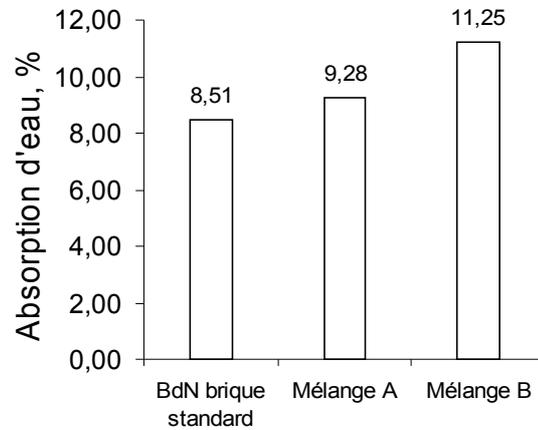


Fig. 5-7 : 2^e essai industriel
Test d'absorption d'eau

Le coefficient d'absorption des briques du mélange A est inférieur à celui du mélange B. Cela rejoint les résultats de porosité car ces deux paramètres sont étroitement liés. Le coefficient d'absorption d'eau du mélange B est supérieur à 10 % (valeur limite).

V.3.2.3. Résistance à la compression (Norme NF EN 772-1)

Les valeurs moyennes de la résistance à la compression (test effectué sur 6 briques) de chaque mélange sont données dans le **tableau 5-10**.

Tableau 5-10

Valeurs moyennes de la résistance à la compression en MPa

Produit	Mélange A	Mélange B
Résistance à la compression	31.6	23

La résistance à la compression des briques du mélange A est supérieure à celle du mélange B, où un gain de résistance à la compression de 37 % a été obtenu. L'utilisation des sédiments fins rend la granulométrie du mélange plus fine ce qui donne une brique plus dense et moins poreuse et par conséquent plus résistante. Par ailleurs, la fraction > 30 µm dans le sédiment B (≈ 10 %) est inférieure à celle dans le sédiment A (≈ 45 %) (cf. **fig. 5-4**), ce qui affaiblit les propriétés mécaniques de la brique. La résistance des briques du mélange A est supérieure à celle de la brique standard de la BdN (22 MPa). Cela est dû à la présence des particules fines (< 30 µm) du quartz dans le sédiment A. Comme pour le 1^{er} essai, les briques produites durant le 2^{ème} essai se classent (selon la norme française) dans la catégorie BP300.

V.3.2.4. Résistance au gel (Norme NF P 13-304)

L'essai a été effectué sur 10 briques entières de chaque mélange. Les **tableaux 5-11** et **5-12** présentent les pertes de masse des éléments testés et les observations notées à l'issue de ce test.

Tableau 5-11

Perte de masse (%) des échantillons de brique du mélange A suite à 40 cycles de gel-dégel

Elément	Altérations observées	Perte de masse (%)	Observation
1	Néant	0.4	Les fissures présentes sur certaines faces avant l'essai ne se sont pas ouvertes d'avantage au cours de l'essai
2	Néant	0.4	
3	Néant	0.4	
4	Néant	0.4	
5	Néant	0.5	
6	Néant	0.4	
7	Néant	0.4	
8	Néant	0.4	
9	Néant	0.5	
10	Néant	0.3	

Tableau 5-12

Perte de masse (%) des échantillons de brique du mélange B suite à 40 cycles de gel-dégel

Elément	Altérations observées	Perte de masse (%)	Observation
1	Néant	0.4	Les fissures présentes sur certaines faces avant l'essai ne se sont pas ouvertes d'avantage au cours de l'essai
2	Néant	0.5	
3	Néant	0.4	
4	Néant	0.3	
5	Néant	0.4	
6	Néant	0.4	
7	Néant	0.5	
8	Néant	0.3	
9	Néant	0.3	
10	Néant	0.3	

Les pertes de masse pour tous les éléments testés et exposés à 40 cycles de gel-dégel, sont inférieures à 1 % (la limite donnée par la norme française [NF P13-304] après 25 cycles). De plus, ni exfoliation, ni fissuration, ni feuilletage, ni écaillage n'ont été observés sur tous les échantillons examinés.

V.3.2.5. TCLP [Toxicity Characteristic Leaching Procedure: TCLP]

Le **tableau 5-13** montre les résultats de TCLP effectuée sur des échantillons de brique des deux mélanges (A et B).

Tableau 5-13

Valeurs de TCLP en mg/kg de la masse sèche

Elément	Mélange A	Mélange B	Limite de TCLP
Cd	0.1	0.09	1.0
Cu	1.6	0.28	15
Zn	8.57	8.85	25.0
Ni	1.25	0.28	-
Pb	-	-	5.0

V.4. Conclusion sur les essais industriels

Dans le 1^{er} essai 15 % de sédiment traité ont été introduits dans le mélange en substituant au sable de Templeuve utilisé comme dégraissant à la BdN. Approximativement 15000 briques perforées ont été produites (l'équivalent d'une maison moyenne) sans aucun changement au niveau de processus de fabrication. Ces briques sont plus résistantes, moins poreuses que les briques standards produites à l'usine de Templeuve. Un gain de résistance à la compression de 63.6 % a été obtenu par rapport à la brique standard de Templeuve. En revanche, le retrait des briques à base des sédiments traités est supérieur à celui de la brique standard de Templeuve. Les essais de lixiviation et en particulier la TCLP montrent que les métaux lourds sont bien fixés dans la matrice solide de la brique et cette dernière peut être considérée comme inerte. Par ailleurs, des grains de calcaire et des tâches blanches ont été observés sur la surface de la plupart des briques. Ceci est lié à la présence de calcite dans le matériau traité et à la granulométrie du mélange.

Le 2^e essai industriel a été réalisé pour répondre à deux objectifs. Premièrement, introduire une quantité plus importante de sédiment traité que celle du premier essai. Deuxièmement, éviter les tâches blanches sur la surface des briques et de diminuer le retrait du produit final. C'est dans ce contexte que deux mélanges (A et B) ont été préparés, où 27 % de sédiment de granulométries différentes (fine et grossière) ont été utilisées. Ainsi, la quantité du sédiment traité a été augmentée de 12% par rapport au 1^{er} essai. Pour le mélange A, aucun problème n'a été signalé pendant la production des briques. En revanche, le mélange B a demandé plus d'eau au niveau de broyeur pour arriver au même état plastique que celui de la brique standard de Templeuve. Aucune tache n'a été observée sur la surface des briques du mélange A (sédiment fin), alors que des grains de calcaire et des tâches blanches ont été observés sur la surface des briques du mélange B (sédiment grossier). Cela montre que la présence de ces taches est liée à la granulométrie du sédiment introduit dans le mélange. Les briques du mélange A sont plus résistantes et moins poreuses que celles du mélange B et possèdent un coefficient d'absorption d'eau inférieur à 10 %. Leur

résistance moyenne à la compression (31.6 MPa) est supérieure à celle de la brique standard de Templeuve (22 MPa). Un gain de 44 % a été obtenu par rapport à la brique de la BdN. En revanche le retrait des briques du mélange A (8.9 %) est supérieur à celui de la brique standard (autour de 8 %). Les analyses environnementales, notamment la TCLP montrent que les métaux lourds sont bien fixés dans la matrice solide de la brique et par conséquent les briques produites durant le 2^e essai industriel peuvent être considérées comme inertes.

Nous pouvons conclure que les briques produites industriellement contenant des sédiments traités possèdent des propriétés physiques, mécaniques, et chimiques très satisfaisantes. Elles sont supérieures aux exigences préconisées dans les normes existantes ce qui autorise leur utilisation dans le domaine de la construction.

Conclusion générale

L'accumulation des sédiments en couches successives conduit à l'envasement des cours d'eau. Une grande quantité de ces sédiments est contaminée par des polluants organiques et inorganiques. Leur gestion soulève donc des défis technologiques, économiques et environnementaux de plus en plus importants. De nombreuses études se sont donc intéressées à la mise au point de procédés de traitement efficaces et peu coûteux, mais la plus part de ces procédés est rarement utilisée pour des raisons financières. C'est dans ce contexte que l'entreprise Solvay a mis au point le procédé Novosol® de traitement des sédiments de dragage contaminés.

L'objectif de cette thèse était d'évaluer la faisabilité de la valorisation des sédiments fluviaux pollués, après inertage par ce procédé, dans les matériaux en terre cuite et plus précisément dans la brique.

Les sédiments utilisés dans cette étude proviennent de la région du Nord. Ils ont été prélevés dans le canal de La Marque au bord duquel une ancienne usine métallurgique est construite, ce qui explique leurs fortes teneurs en métaux lourds. S'agissant d'un matériau nouveau, il était nécessaire de commencer par une étude approfondie des caractéristiques particulières des sédiments traités.

L'analyse granulométrique par voie humide des sédiments traités a permis de les classer dans la catégorie des sables limoneux.

L'étude minéralogique a montré la présence majoritaire de quartz et a indiqué également une présence marquée de calcite, de feldspath, de mica, d'hématite et d'anhydrite (CaSO_4). La présence d'anhydrite et d'hématite dans le sédiment traité est due à une dissolution des minéraux présents dans le matériau brut. La fraction argileuse, dont la composition est assez variable d'un sédiment à l'autre, tend à s'homogénéiser lors du traitement. La phase majoritaire devient l'illite. Des essais d'équivalent de sable et au bleu de méthylène confirment ces résultats.

Le traitement thermique engendre donc une homogénéisation de la fraction argileuse et élimine au même temps la matière organique (dont la teneur est très variable d'un sédiment à l'autre) ce qui procure un bénéfice pour la valorisation. En effet, l'homogénéisation de la fraction argileuse la rend constante ce qui facilite la valorisation du matériau traité. D'autre part la destruction de la matière organique permet d'éviter la présence du cœur noir et des fissures au sein du produit final.

Les observations visuelles et binoculaires montrent que les grains composant le sédiment traité sont généralement anguleux. Ils sont composés principalement d'agglomérats de grains plus petits de faible cohésion ce qui leur donne une porosité intra granulaire très élevée. Cette géométrie est due au processus de traitement. L'observation au microscope électronique à balayage montre une morphologie comparable à celle de l'observation visuelle et binoculaire. Cette structure poreuse leur donne une nature absorbante qui influence la quantité d'eau de façonnage pendant la préparation de la pâte de brique.

La masse volumique absolue (2.66 g.cm^{-3}) est comparable à celle de calcite ($2.6 - 2.8 \text{ g.cm}^{-3}$) ou de quartz (2.6 g.cm^{-3}). Cela rejoint les analyses DRX qui ont montré

que le sédiment traité est composé majoritairement de quartz avec une présence marquée de calcite et d'hématite.

L'étude expérimentale réalisée au laboratoire a consisté à évaluer la faisabilité pratique de la mise en œuvre et à étudier le comportement des sédiments traités dans la brique cuite en fonction de la quantité des sédiments dans le mélange et d'en évaluer un optimum de substitution. L'influence de divers paramètres de formulation tels que le taux de substitution, la granulométrie de celle-ci, la température de cuisson a été évaluée.

L'indice de plasticité est inversement proportionnel à la quantité de sédiments introduite dans le mélange. L'ajout de 25% de sédiments calcinés diminue la plasticité du mélange de 7.3% par rapport au mélange standard de l'usine de Templeuve, alors que l'ajout de 35% et 45% de sédiments fait baisser l'indice de plasticité de 32.6% et 42.4% respectivement. Ainsi l'ajout des sédiments traités affaiblit les propriétés plastiques du mélange et diminue ainsi sa cohésion.

La porosité, l'absorption d'eau et la masse volumique sont largement dépendantes du taux de substitution et de la granulométrie de sédiment traité. La porosité varie ainsi de 20.1% à 24.8%, le coefficient d'absorption d'eau de 10.47% à 14.02% et la masse volumique de 1.92 à 1.77 g.cm⁻³ pour les 25% et 45% de taux de substitution.

L'étude des performances mécaniques a montré que la résistance à la compression est influencée par la quantité de sédiment incorporée dans la brique. Elle varie ainsi de 42.23 à 25.58 MPa pour 25% et 45% de substitution.

Le passage à l'échelle industrielle a exigé une compréhension globale du comportement de ce nouveau matériau vis-à-vis du processus de fabrication car l'objectif était de pouvoir l'introduire dans la production des briques sans aucune modification importante et coûteuse du procédé de fabrication. En effet, la préparation de la pâte est une phase cruciale dans le processus de production des briques et des tuiles. La nature absorbante du sédiment traité, son comportement non plastique et la difficulté d'estimer la quantité d'eau libre influencent largement la phase de préparation de la pâte. C'est dans ce contexte qu'un essai préliminaire a été réalisé avant de lancer les deux essais industriels qu'on a réalisés à l'usine de Templeuve.

Dans le 1^{er} essai, 15 % de sédiment traité ont été introduits dans le mélange en substituant au sable de Templeuve utilisé comme dégraissant à la BdN. Approximativement 15000 briques perforées (22x22) ont été produites. Les briques produites sont plus résistantes, moins poreuses que celles de l'usine de Templeuve. Un gain de résistance à la compression de 63.6 % a été obtenu par rapport à la brique standard de Templeuve. En revanche, le retrait des briques à base des sédiments traités est supérieur à celui de la brique standard de Templeuve. Des grains de calcaire et des tâches blanches ont été observés sur la surface de la plupart des briques dues à la présence de calcite dans le matériau traité et à la granulométrie du sédiment traité.

Le 2^e essai industriel était un double essai dont le but était d'introduire une quantité plus importante de sédiment traité que celle du premier essai, d'éviter

les tâches blanches sur la surface des briques et de diminuer le retrait du produit final. Pour cela deux mélanges (A et B) ont été préparés, où 27 % de sédiment de granulométries différentes (fine et grossière) ont été utilisés. Aucune tache n'a été observée sur la surface des briques du mélange A (sédiment fin), alors que des grains de calcaire et des tâches blanches ont été observés sur la surface des briques du mélange B (sédiment grossier). Cela montre que la granulométrie du sédiment introduit dans le mélange est un paramètre important qui influence les propriétés du produit final. Les briques du mélange A sont plus résistantes et moins poreuses que celles du mélange B et possèdent un coefficient d'absorption d'eau inférieur à 10 %. Leur résistance moyenne à la compression (31.6 MPa) est supérieure à celle de la brique standard de Templeuve (22 MPa). Un gain de 44 % a été obtenu par rapport à la brique de la BdN. En revanche le retrait des briques du mélange A (8.9 %) est supérieur à celui de la brique standard (autour de 8 %). Elles ont également une résistance au gel très importante. Les pertes de masse pour les deux types de brique (A et B), après 40 cycles de gel-dégel, sont inférieures à 1% (la limite donnée par la norme française [NF P13-304] après 25 cycles). L'utilisation de sédiment traité réduit l'apparition des microfissures au sein de la brique suite à sa faible perte au feu (2.8%) par rapport à celle de l'argile naturelle (6.5%) ce qui augmente leur résistance au gel.

La phase industrielle a également montré les difficultés rencontrées pendant le processus de fabrication et les incertitudes sur certains paramètres. Parmi ceux-ci, on citera l'estimation de la quantité d'eau du mélange et l'homogénéité du mélange. En effet les sédiments dans le mélange ne sont pas repartis d'une façon assez homogène car l'extrusion en voie semi-humide (procédé de mise en forme le plus courant aux briqueteries) ne permet pas d'avoir une telle répartition. L'homogénéisation peut être améliorée en modifiant la façon dont les sédiments traités, le sable et l'argile sont mélangés. Cela n'a pas été envisagé pendant les deux essais industriels car cette opération demande une étape supplémentaire.

Il faut toutefois souligner que certains essais sont encore nécessaires à la compréhension des mécanismes observés comme la porosité au mercure qui permet d'avoir une idée globale sur la distribution des tailles des pores et de mieux comprendre le comportement de la brique vis-à-vis des cycles de gel-dégel.

Finalement, on peut conclure que les briques produites possèdent des propriétés physiques, mécaniques, et chimiques très satisfaisantes vis-à-vis des exigences données dans les normes existantes ce qui permet l'utilisation de ces briques dans le domaine de la construction comme briques de façade ou de construction.

Références bibliographiques

- AFNOR. NF P13-304. October 1983. Facing clay bricks.
- AEAP : Agence de l'Eau Artois-Picardie. Enlèvement des sédiments/ guide méthodologique. Evaluation détaillée des risques liés à la gestion des sédiments et aux opérations de curage [en ligne]. Picardie : Agence de l'Eau Artois-Picardie, 2000, 146 p. disponible sur : <http://www.eau-artois-picardie.fr>
- AEAP : Agence de l'eau. Historique national des opérations de curage et perspectives. Etude sur l'eau en France N° 89. Picardie, Agence de l'eau Artois Picardie, 2002, 13 p.
- Agostini F. Inertage et valorisation des sédiments de dragage marin. Thèse de doctorat, Ecole Centrale de Lille, 2006.
- Aida : Tous les textes réglementaires organisés par thème et par rubrique de la nomenclature. Disponible sur <http://www.aida.ineris.fr>
- Albenque M. Les cahiers de la terre cuite n° 2 (septembre 1974).
- Alía JM, Edwards HGM, García Navarro FJ, Parras Armenteros J, Sanchez Jimenez CJ. Application of FT-Raman spectroscopy to quality control in brick clays firing process. *Talanta* 1999;50:291– 8.
- Alviset L. Matériaux de terre cuite. Techniques de l'ingénieur, C905 (1987).
- Alzieu C. Gestion des sédiments portuaires. Dans : Dragage et environnement marin : Etat des connaissances. Editions Ifremer, 223 p., 1999, ISBN 2-84433-014-2.
- Anderson M, Skerratt RG, Thomas JP, Clay SD. Case study involving using fluidised bed incinerator sludge ash as a partial clay substitute in brick manufacture. *Wat Sci Tech*, 1996; Vol 34;No.3-4:195–205.
- Anderson M, Elliott M, Hickson C. Factory scale trials using combined mixtures of three by-product wastes (including incinerated sewage sludge ash) in clay building bricks. *J Chem Technol Biotechnol*, 2002;77:345-351
- Andrés A, Carmen Díaz M, Coz A, Viguri JR, Irabien A, Proceedings 2004 Global Symposium on Recycling Waste Treatment and Clean Technology, Madrid, Spain, 2004, pp. 171–181.
- Aubert JE. Valorisation d'une cendre d'incinérateur d'ordures ménagères, traitée par le procédé REVASOL®, dans le béton hydraulique. Thèse de doctorat, Université Paul Sabatier de Toulouse, 2002.
- Ausili A, Mecozzi M, Gabellini M, Ciuffa G. Physicochemical characteristics and multivariate analysis of contaminated harbour sediments. *Wat. Sci. Tech*, 1998, vol.37, n° 6-7, pp. 131-139.
- Bardin C, 1971. Les Efflorescences. Report of the Centre Technique des Tuiles et Briques. Paris, France.
- Bentrup H, Franke L. Berteilung der Frostwiderstandsfähigkeit von Zieglen, *ZI* (1993) 7-9.
- Bernache-Assollant. Les mécanismes de densification en phase solide, en chimie-physique du frittage. 1993, Hermès : Paris. P. 165-222.
- Berteau I, Martin S, Vassiliadis A. Le curage des cours d'eau et les éléments-traces toxiques. *Le courrier de l'environnement de l'INRA*, 1993, vol. 20, pp.27-35

- Biarez J. "Contribution à l'étude des propriétés mécaniques des matériaux pulvérulents", Thèse d'état soutenue à Grenoble, 1962.
- Bjorlykke, K.: *Sedimentology and Petroleum Geology*, Springer-Verlag, New York, 1989.
- Bogusz D et Pavageau P. (1999), Etat actuel de la problématique au plan français, *Comité Technique National sur la Gestion des Sédiments*, 7 juin 1999, point n°2, p.8.
- Boisson J, Ruttens A, Mench M, Vangronsveld J. Evaluation of hydroxyapatite as a metal immobilizing soil additive for the remediation of polluted soils. Part 1. Influence of hydroxyapatite on metal exchangeability in soil, plant growth and plant metal accumulation. *Environmental Pollution*, 1999;104(2):225-233.
- Boucard L. Valorisation des sédiments fluviaux stabilisés. Thèse de doctorat, Ecole Centrale de Lille, 2006.
- Bournonville B, Stabilisation des métaux lourds dans les cendres volantes d'incinération – Comportement rhéologique, cinétique de phosphatation et évaluation du procédé. Thèse, Université de Perpignan, 2002.
- Bournonville B, Nzihou A, Sharrock P, Depelsenaire G. Stabilisation of heavy metal containing dusts by reaction with phosphoric acid: study of the reactivity of fly ash. *Journal of Hazardous Materials B116* (2004) pp 65–74.
- Boynton RS, *Chemistry and Technology of Lime and Limestone*, 2nd edn. Wiley, New York, 1980.
- Brearley, AJ and Rubie, D C, Effects of H₂O on the disequilibrium breakdown of muscovite + quartz. *J. Petrol.*, 1990, 31, 925–956.
- Brunauer S. *The adsorption of gases and vapours*. Princeton Univ. Press, 1943.
- Brunauer S, Emmett P H, Teller E. – Adsorption of gases in multimolecular layers. *J. Amer. Chem. Soc.*, 60 (1938), 309.
- Callister Jr WD, *Materials Science and Engineering—An Introduction*, 5th ed., John Wiley & Sons, New York, 2000.
- Calmano W, Förstner U. *Sediments and toxic substances*. Berlin, DEU, 335p, 1996.
- Campy M and Meybeck M. Les sédiments lacustres. In: R. Pourriot and M. Meybeck [Eds] *Limnologie Générale*. Masson, Paris, 1995, pp.185-226.
- Carter M and Bentley S.P., 1991. *Correlations of Soil Properties*, (London: Pentech Press, UK)
- Cerdeño del Castillo J, Díaz Rubio R, Obis Sánchez J, Pérez Lorenzo A, Velasco Vélez J. *Manual de patologías de las piezas cerámicas para la construcción*. Toledo: Aitemin; 2000. p. 1–118.
- Chapman PM, Wang F, Janssen C, Persoone G et Allen HE. Ecotoxicology of metals in aquatic sediments: binding and release, bioavailability, risk assessment and remediation. *Canadian Journal of Fisheries and Aquatic Sciences* 55:2221-2243, 1998.
- Coble RL. Sintering crystalline solids. I Intermediate and final diffusion models. *J. Appl. Phys.* 1961. 32 (5): p. 787-792.
- Commission of the European communities, 2002. Bruxelles, le 20.9.2002COM, 512 final.

- Crannell BS, Eighmy TT, Krzanowski JE, Eusden JD, Shaw EL, Francis CA. Heavy metal stabilization in municipal solid waste combustion bottom ash using soluble phosphate. *Waste Management*, 2000;20(2-3):135-148.
- Cultrone G, Rodriguez Navarro C, Sebastian EE, Cazalla O and de la Torre MJ. Carbonate and silicate phase reactions during ceramic firing. *Eur.J.Minral.* 2001, 13, 621-634.
- Cultrone, G., Sebastian Pardo, E., Cazalla Vázquez, O. and de la Torre Lopez, M. J., Physical, mineralogical and textural features of ceramic clays from Granada province (Spain). In *Proceedings of the 2nd Mediterranean Clay Meeting*, ed. C. S. F. Gomes. Associac, ao Portuguesa de Argilas, Aveiro, Portugal, 1998, pp. 298–303.
- Cultrone G. Estudio mineralógico-petrográfico y físico-mecánico de ladrillos macizos para su aplicación en intervenciones del Patrimonio Histórico. PhD thesis. Granada: Universidad de Granada; 2001. p. 1–267.
- Cultrone G, Sebastián E, Elert K, de la Torre MJ, Cazalla O, Navarro CR. Influence of mineralogy and firing temperature on the porosity of bricks. *Journal of the European Ceramic Society* 24 (2004) 547-564.
- Delbrouck O, Janssen J, Ottenburgs R, Van Oyen P and Viaene W. Evolution of porosity in extruded stoneware as a function of firing temperature. *Appl. Clay Sci.*, 1993, 7, 187–192.
- Derie R. Les tests et critères d'éluion des déchets - Exemple d'application à diverses substances minérales. *Chimie nouvelle*, volume 13, n°49 – page 1437 à 1441 mars 1995
- Dominguez EA, Ullmann R. Ecological bricks made with clays and steel dust pollutants. *Applied Clay Science*, 1996;11(2):237–249.
- Dondi M, Masigli M, Fabbri B, *Tile Brick Int.* 13 (1997) 218– 225.
- Dondi M, Masigli M, Fabbri B, *Tile Brick Int.* 13 (1997) 302–309.
- Druyanov BA, Nepershin RI. *Problems of Technological Plasticity*. Ed. ELSEVIER (38), 1994, PP. 357-389. Collection : Studies in applied Mechanics.
- Dupain R, Lanchon R, Saint Arroman JC. *Granulats, sols, ciments et bétons – Caractérisation des matériaux de génie civil par les essais en laboratoire*. 2^e édition conforme aux normes européennes. Editions Educavivres. 2000 ISBN : 2-7135-2064-9.
- Eighmy TT, Crannell BS, Krzanowski JE, Butler LG, Cartledge FK, Emeryc EF, Eusden Jr JD, Shaw EL, Francis CA. Characterization and phosphate stabilization of dusts from the vitrification of MSW combustion residues. *Waste Management*, 1998;18:513-524.
- Elert K, Cultrone G, Navarro CR, Pardo ES. Durability of historic buildings- Influence of composition and microstructure. *Journal of Cultural Heritage* 4 (2003) 91-99
- Emiliani GP, Corbara F, *Ceramic Technology*, 1st ed., Gruppo Editoriale Faenza Editrice, Faenza, Italy, 1999.
- Esbert RM, Ordaz J, Alonso FJ, Montoto M, *Manual de diagnosis y tratamiento de materiales pétreos y cerámicos*, Col·legi d'Aparelladors i Arquitectes Tècnics de Barcelona, Spain, 1997 139 p.

- Eslinger and Peaver, 1988. Clay minerals for petroleum geologists and engineers, SEPM Short course 22. Soc. Economic paleontologists and mineralogists, Tulsa, USA.
- Evans JO. White J. (1958): Further studies of the thermal decomposition of clays. *Trans.Brit.Ceram.Soc.*, 57,6,298.
- Everhart JO. Use of auxiliary fluxes to improve structural clay bodies. *Am Ceram Soc Bull* 1957;36:268–71.
- Fabbri B, Gualtieri S and Santoro S, L'alternativa chamotte/calcite nella ceramica grezza: prove tecniche. In 1a Giornata di archeometria della ceramica: Il contributo delle analisi archeometriche allo studio delle ceramiche grezze e comuni. Il rapporto forma/funzione/impasto, ed. S. Santoro Bianchi and B. Fabbri. University Press, Bologna, 1997, pp. 183–190.
- FFTB Fédération Française des Tuiles et des Briques: <http://www.fftb.org>
- Förstner U. Contaminated sediments. Berlin, Allemagne, pp157, 1989.
- Frenkel J. Viscous flow of crystalline bodies under the action of surface tension. *J.Appl. Phys*, 1945. 9 (5): p. 385-391.
- Gardner KH, Stern EA. Status of Ex-Situ and In-Situ Treatment Methods, <http://www.bnl.gov/wrdadcon>
- German RM. Introduction to particle packing. *Book "Powder packing characteristics"*, 1989, pp. 1-20
- German RM. Sintering theory and practice. Wiley interscience publications, ed. Johan Wiley & sons. 1996, New York.
- Gregg SJ, Sing KSW. Adsorption, surface, area and porosity. Academic Press, London and New York, 1967.
- Grimshaw RW. Chemistry and physics of clays, E. Benn Ltd., London (1971)
- Guevara-Riba A, Sahuquillo A, Rubio R, Rauret G. Assessment of mobility in dredged harbour sediments from Barcelona, Spain. *Science of the Total Environment*, 2004, vol. 321, pp. 241-255.
- Guler R, Patla P, Hess TR. Properties of fly ash bricks produced for environmental applications. *Environ Sci Health* 1995;30(3): 505–24.
- Guo Wei. Study on high fly ash content fired bricks. Thesis of MS, Nanjing University of Technology, 2000, p. 85.
- Hakanson L et Jansson M. Principles of Lake Sedimentology. Springer-Verlag. Berlin, DEU, 316p, 1983.
- Hamer K et Karius V. Brick production with dredged harbour sediments. An industrial-scale experiment. *Waste Management*, Volume 22, Issue 5, August 2002, Pages 521-530.
- Hamer K, Waschkowitz C, Isenbeck-Schröter M, Schulz HD. Harbour sediments for brick production. In: *Ressourcen- Umwelt-Management*, Schriftenreihe der Gesellschaft für Umwelt Geowissenschaften (GUG). Köln, 1999; 223–240.
- Handisyde and Haseltine. (1976). "Bricks and brickwork." *Rep. No. 142*, The Brick Development Association, London.
- Hansen W, Kung JH. Pore structure and frost durability of clay bricks. *Materials and Structures/Matériaux et Constructions*, 1988, 21,443-447
- Hendry AW and Khalaf FM. (2001). *Masonry wall construction*, 1st Ed., E & FN Spon, London.

- Hettiarachchi GM, Pierzynski GM, and Ransom MD. In Situ Stabilization of Soil Lead Using Phosphorus. *J. Environ. Qual.* 2001, n°30, pp 1214–1221.
- Houseknecht, D. W. and Pittman, ed., E. D.: *Origin, Diagenesis, and Petrophysics of Clay Minerals in Sandstones*, SEPM Special Publication No. 47, Tulsa, 1992.
- Hsu YS, Lee BJ, Liu H. Mixing Reservoir Sediment with Fly Ash to Make Bricks and Other Products. International Ash Utilisation Symposium, 2003, Center for Applied Energy Research, University of Kentucky, Paper#89.
- Huang C, Pan JR, Liu Y. Mixing Water Treatment Residual with Excavation Waste soil in Brick and Artificial Aggregate Making. *Journal of Environmental Engineering*, Vol. 131, No.2, February 1, 2005.
- In Vivo, Agence de l'eau Artois Picardie, Pôle de compétence, « Méthode de gestion de réutilisation de traitement des sédiments pollués », document de synthèses dans le cadre d'un projet d'étude européen LIFE, http://www.eau-artois-picardie.fr/rubrique.php3?id_rubrique=139
- Jouenne CA. – *Traité de céramiques et matériaux minéraux*. Septima (1984).
- Kahalé N. Novosol® process: sludge stabilisation and beneficial reuse. Proceeding of the 2nd International Conference on Remediation of Contaminated Sediments (Venice Italy 2003), Batelle Press.
- Kalwa M, Grylicki M. Utilization of fly ash, a waste from thermal power stations, in manufacture of building materials. *Ceram Powders* 1983:107–9.
- Karius V, Hamer K. PH and grain-size variation in leaching tests with bricks made of harbour sediments compared to commercial bricks. *The Science of the Total Environment*, 2001;278(3):73-85.
- Khalaf FM, and DeVenny AS. New Tests for Porosity and Water Absorption of Fired. Clay Bricks *Journal of Materials in Civil Engineering*, Vol. 14, No. 4, August 1, 2002.
- Kilikoglou V, Vekinis G, Maniatis Y. Toughening of ceramic earthenwares by quartz inclusions: An ancient art revisited. *Acta Metall. Mater.* **43** (1995) 2959.
- Kingery WD, Berg M, Study of the initial stages of sintering solids by viscous flow, evaporation–condensation, and self-diffusion, *J. Appl. Phys.* 26 (10) (1955) 1205–1212.
- Kingery WD, Bowen HK, Uhlmann DR, *Introduction to Ceramics*, 2nd ed., Wiley-Interscience, New York, 1976.
- Knight PC, Structuring agglomerated products for improved performance, *Powder technology*, 2001, 119, pp. 14-25
- Kobayashi Y, Ohira O, Ohashi Y, Kato E, *Am J. Ceram. Soc.* **75** (1992) 1801.
- Kornmann M. *Matériaux de construction en terre cuite. Fabrication et propriétés*. Paris, Genève 2005.
- Kribi, S. Décomposition des matières organiques et stabilisation des métaux lourds dans les sédiments de dragage. Thèse de doctorat, Institut National des Sciences Appliquées de Lyon, 2005.
- Kuczinsky GC. Self diffusion in sintering of metallic particles. *Trans A.I.M.E.*, 1949, 185: p. 169-178.
- Lafhaj Z, Samara M, Agostini F, Boucard L, Skoczylas F, Depelsenaire G. Polluted river sediments from the North region of France: Treatment with

- the Novosol[®] process and valorization in clay bricks. *Construction and Building materials* 2007.
- Lafhaj Z, Samara M, Agostini F, Boucard L, Skoczylas F. polluted river sediments: characterisation, treatment and valorisation. *Proceeding of the First Euromediterranean Symposium on Advances in Geomaterials and Structures*. Hammamet, Tunisia, 3-5 May 2006.
- Laird RT, Worcester M, The inhibiting of lime blowing, *Transaction of the British Ceramic Society* 55 (1956) 545–563.
- Laperche V, Traina SJ, Gadam P, and Logan TJ. Chemical and Mineralogical Characterizations of Pb in a Contaminated Soil: Reactions with Synthetic Apatite. *Environ. Sci. Technol*, 1996;30:3321-3326.
- Legifrance: le service public de la diffusion du droit. Disponible sur <http://www.legifrance.gouv.fr>
- Liew AG, Idris A, Samad AA, Wong CHK, Jaafar MS, Baki AM. Reusability of sewage sludge in clay bricks. *Springer-Verlag. J Mater Cycles Waste Manage*, 2004;6:41-47.
- Lin DF, Weng CH. Use of Sewage Sludge Ash as Brick Material. *Journal of Environmental Engineering*, October 2001;Vol. 127, No. 10.
- Lingling X, Wei G, Tao W, Nanru Y. Study on fired clay bricks with replacing clay by fly ash in high volume ratio. *Construction and Building Materials*, 2005;19:243-247.
- Maage M. Frost resistance and pore size distribution in bricks, *Mat. And Struct. (Relim)* 17 (101) (1984) 345-350.
- Maity S, Sarkar BK. Development of high-strength whiteware bodies. *J. Eur. Ceram. Soc.* 16 (1996) 1083.
- MEDD: Ministère de l'Écologie et du Développement Durable. Gestion des sédiments extraits de cours d'eau et des canaux. Direction de l'eau et direction de la prévention des pollutions et des risques. Note juridique, 2002, 7p.
- Melamed R, Cao X, Chen M, and Ma LQ. Field assessment of lead immobilization in a contaminated soil after phosphate application. *Sci. Total Environ.* 2003, 305:117–127
- Menezes R, Ferreira HS, Neves GA, Lira H de L, Ferreira HC. Use of granite sawing wastes in the production of ceramic bricks and tiles. *Journal of the European Ceramic Society*, 2005; 25:1149-1158.
- Monteiro SN, Vieira CMF. Solid state sintering of red ceramics at lower temperatures. *Ceramics International* 30 (2004) 381–387
- Moropoulou A, Bakolas A, Aggelakopoulou E, The effects of limestone characteristics and calcination temperature to the reactivity of the quicklime, *Cement and Concrete Research* 31 (2001) 633–639.
- Mukherji SK, Machhoya BB. The utilization of fly ash in the preparation of ceramic tableware and artware. *Br Ceram* 1993; 92(6):254–7.
- Mulligan CN, Raymond N Yong and Bernard F Gibbs, An evaluation of technologies for the heavy metal remediation of dredged sediments, *Journal of Hazardous Materials*, Volume 85, Issues 1-2, 30 July 2001, Pages 145-163.

- Nakamura M, Togaya T and Okuda S, 'Effect of dimensional distribution of pores in porous ceramics on frost resistance under one dimensional cooling', *Yogyo- Kyokai-Shi* 85 (11) (1977) 549-554.
- Neuville AM. Bétons spéciaux. Dans : Propriétés des bétons. Editions Eyrolles. 2000. 806pp. ISBN : 2-212-01320-5.
- Neuville AM. Propriétés des granulats. Dans : Propriétés des bétons. Editions Eyrolles. 2000. 806pp. ISBN : 2-212-01320-5.
- Nolan GT, Kavanagh PE. The size distribution of interstices in random packings of spheres, *Powder technology*, 1994, vol. 78, pp. 231-238
- Núñez R, Delgado A, Delgado R. The sintering of calcareous illitic ceramics. Application in archaeological research. In: Galindo A, Rodríguez García MI, editors. Electron microscopy 92. Granada: Universidad de Granada; 1992. p. 795–6.
- Nzihou A, Sharrock . Calcium phosphate stabilization of fly ash with chloride extraction. *Waste Management*, n°22, 2002, pp 235–239.
- Pantaleo A. Structure et rhéologie de dispersions concentrées de particules manométriques de TiO₂. Comparaison avec des sols de silice". Mémoire de DEA Chimie - Physiques, N°1708, UFC Besançon, 1994.
- Parras J, Sanchez Jiménez C, Rodas M and Luque FJ, Ceramic applications of middle Ordovician shales from central Spain. *Appl. Clay Sci.*, 1996, 11, 25–41.
- Paul N, Telljohan U, Reduction of drier scumming by influencing drying conditions, *ZI annual* 2000, 86-109.
- Piantone P, Bodéan F, Derie R, Depelseñaire G. Monitoring the stabilization of municipal solid waste incineration fly ash by phosphation: mineralogical and balance approach. *Waste Management* 23, 2003, pp 225–243.
- Pinet PR. Invitation to Oceanography. 2nd ed. Sudbury, Mass., Jones and Bartlett Publishers, 556 pp.
- Power EA, Chapman PM. Assessing sediment quality. In: Burton GA (ed), *Sediment toxicity assessment*. Lewis-Publishers, Boca Raton, 1992, pp 1–18
- Raicevic S, Kaludjerovic-Radoicic T and Zouboulis AI. In situ stabilisation of toxics metals using phosphates: theoretical prediction and experimental verification, *J. Hazard. Mater. B* 117 (2005), pp. 41–53.
- Ramadan AM, Saleh AM, Taha TA and Moharam MR. An attempt to improve mechanical properties of brick produced from El-Maghara coal washing plant waste. *Physicochemical Problems of Mineral Processing*, 35 (2001), 153-160
- Ramade F. Dictionnaire encyclopédique des sciences de l'eau. Ediscience Paris, FRA. 785p, 1998.
- Riccardi MP, Messiga B, Duminuco P. An approach to the dynamics of clay firing. *Applied Clay Science* 15 (1999) 393-409.
- Robinson GC. The relationship between pore structure and durability of brick, *Bull. Amer. Ceram. Soc.* 63 (2) (1984) 295-300.
- Ross K, and Butlin RN. (1989). "Durability tests for building stone." *Building Research Establishment Rep. BR 141*, Garston, Watford, U.K.

- Sanchez Jimenez C and Parras Armenteros J, Las arcillas cerámicas de Santa Cruz de Mudela (Ciudad Real): influencia de la mineralogia en las propiedades tecnológicas. B. Soc. Esp. Mineral, 1998, 21, 17–28.
- Santos PS, Science and Technology of Clays, 2nd ed., Edgard Blücher, São Paulo, Brazil, 1989 (in Portuguese).
- Scordia PY. Valorisation des sédiments fluviaux stabilisés dans la demaine routier, these de doctorat, Ecole Centrale de Lille, 2007 (thèse en cours).
- Seaman JC, Samuel Arey J, and M Paul. Bertsch. Immobilization of Nickel and Other Metals in Contaminated Sediments by Hydroxyapatite Addition. J. Environ. Qual., 2001, n°30, pp 460–469
- Segadães AM, Carvalho MA, Acchar W. Using marble and granite rejects to enhance the processing of clay products. Applied Clay Science 30 (2005) 42–52
- Segadães AM, Kniess C, Acchar W, Kuhnen NC, Hotza D, Proceedings 2004. Global Symposium on Recycling Waste Treatment and Clean Technology, Madrid, Spain, 2004, pp 503-511.
- Shangyou Wang. Production of sintered bricks with fly ash qoze content. Fly Ash Comprehensive Utilization 2000;(4):64–6.
- Sigg L, Stumm W et Behra P. Chimie des milieux aquatiques. Masson. Paris, FRA. 391p, 1992.
- Sing KSW, Everett DH, Haul RAW, Moscou L, Pierotti RA, Rouquerol J et Siemieniowska T. Reporting physisorption data for gas/solid systems with special reference to the determination of surface area and porosity. IUPAC, Pure and Appl. Chem. 1985;(57): 603-619.
- Šveda.M. Effect of water absorption on frost resistance of clay roofing tiles. Brit.Ceram.Trans 102, (2003), 43-45.
- Tite MS, Maniatis Y. Scanning electron microscopy of fired calcareous clays. Brit Ceram T 1975;74:19–22.
- Tourneret L, Berger F, Mavon C and Chambaudet A. Calcium sulphate formation during the heat-up period: some essential parameters. Applied Clay Science. 1999, Vol. 14 (5-6) pp. 299-317
- Toxicity Characteristic Leaching Procedure. Method 1311. USA Norm.
- Vieira CMF, Peçanha Jr LA, Monteiro SN. Effect of kaolinitic clays from the State of Rio de Janeiro in the composition of whiteware floor tile bodies. Cerâmica 52 (2006) 138-145
- Vanthuyne M, Maes A, Cauwenberg P. The use of flotation techniques in the remediation of heavy metal contaminated sediments and soils: an overview of controlling factors. Minerals Engineering, 2003, vol.16, pp. 1131-1141.
- Warren J, Conservation of Brick. Butterworth Heinemann, Oxford, 1999.
- Weaver, 1989. Clay, muds, and shale. Developments in sedimentology 44, Elsevier.
- Weng CH, Lin DF. Use of Sewage Sludge Ash as Brick Material. Journal of Environmental Engineering, 2001;vol. 127, No. 10 :922-927.
- Weng CH, Lin DF, Chiang PC. Utilization of sludge as brick materials. Advances in Environmental Research, 2003;7:679-685.
- Whiteley P, Russman HD and Bishop J D, Porosity of building materials. A collection of published results. J. Oil Col. Chem. Assoc., 1977, 60, 142–150.

- Whittemore OJ and Halsey GD, Pore structure characterization by mercury porosimetry. In *Advances in Materials Characterization*, ed. D. R. Rossington, R. A. Condrade and R. L. Snyder. Plenum Press, New York, 1983, pp. 147–157.
- Wiebusch B, Ozaki M, Watanabe H, Seyfried CF. Assessment of leaching tests on construction material made of incinerator ash (sewage sludge). Investigations in Japan and Germany. *Wat Sci Tech*, 1998;38:195–205.
- Winkler, H.G.F., 1954. Bedeutung der Korngrossenverteilung und des Mineralbestandes von Tonen für die Herstellung grobkeramischer Erzeugnisse. *Ber. Dtsch. Keram. Ges.* 31 (10), 337– 343.
- Wray, WK, 1985. Atterberg limits. *Measuring Engineering Properties of Soil*. Prentice-Hall, USA, Englewood Cliffs, NJ Chapter 4.
- Wriedt HA and Darken LS, *Trans. SME-AIME*, 1973, vol. 254, pp. 1-9
- Yuping Luo. The experimental research of complete fly ash fired bricks. *New Build Mater* 1998;(6):19–21.
- Zejiang Gao. Development of porous bricks sintered with high volume fly ash. *Fly Ash Comprehensive Utilization* 2000;(1):48–50.
- Ziegel Industrie Jahrbuch, ZI annual, Bauverlag BV GmbH.

Annexes

Annexe A

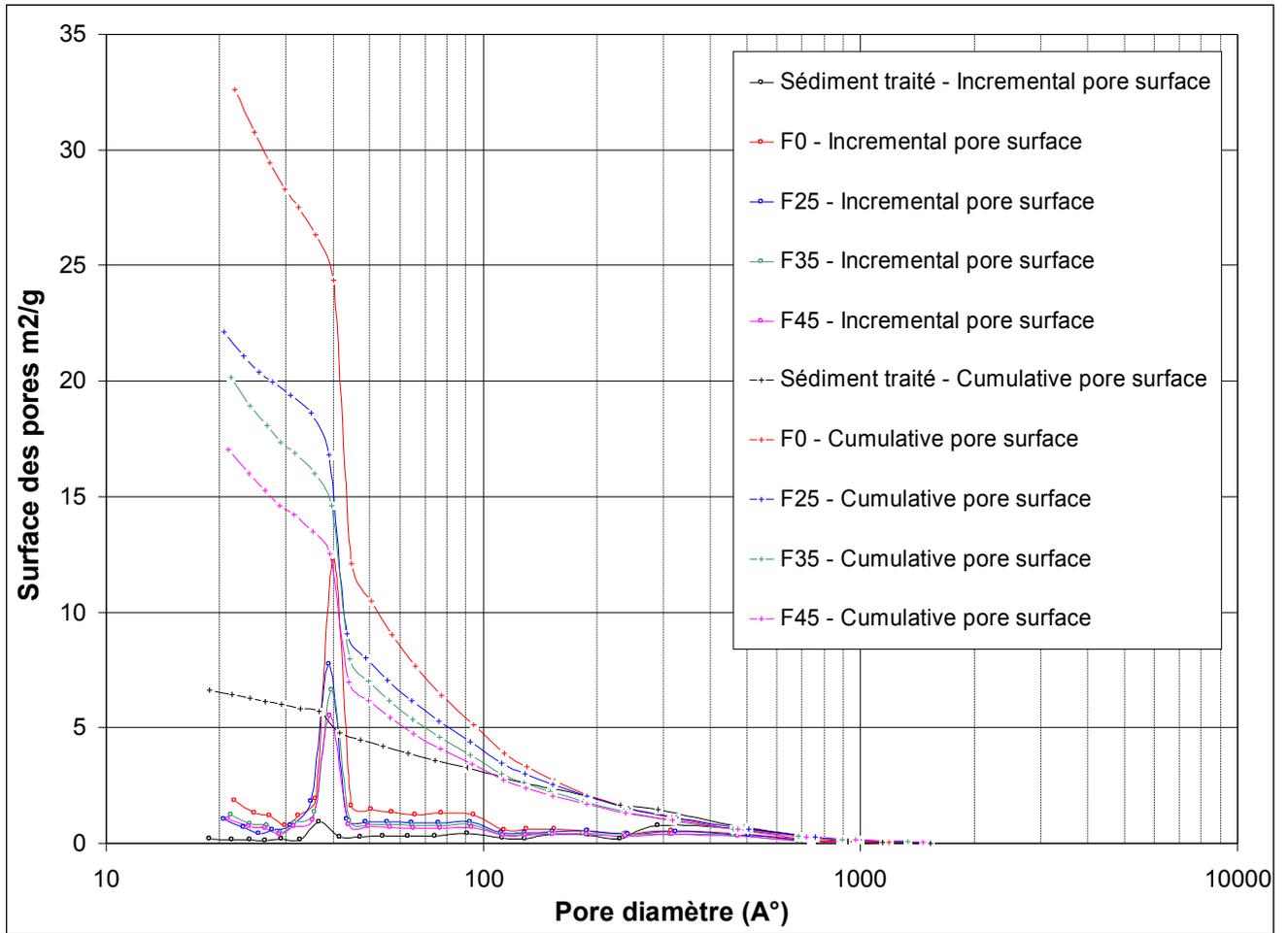


Fig. A-1: Influence de sédiment traité sur la surface des micropores

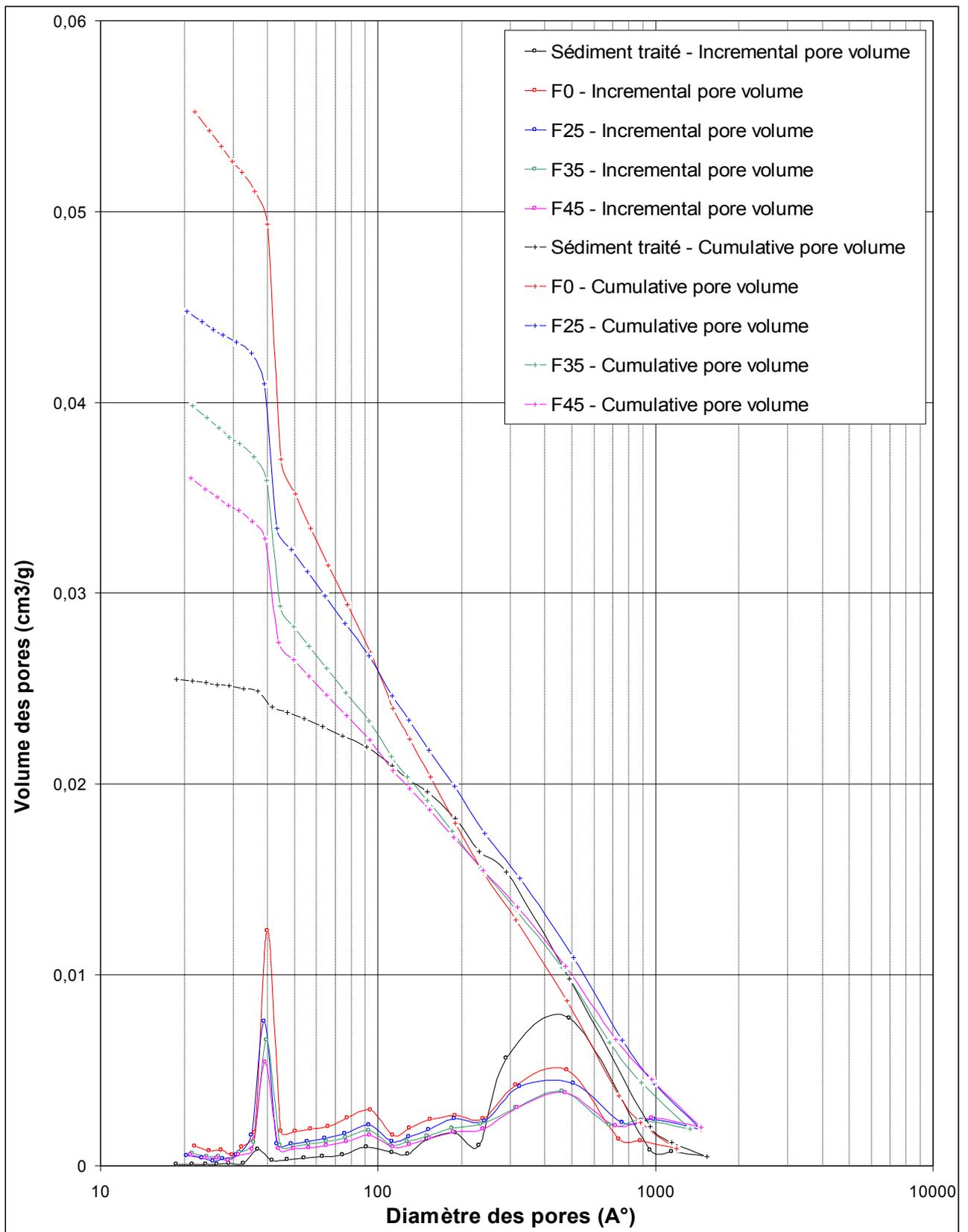


Fig. A-2 : Influence de sédiment traité sur le volume des micropores

Annexe B

Le phénomène de frittage

Le frittage correspond à la consolidation thermique d'un matériau pulvérulent sans fusion d'au moins l'un de ces constituants. Au cours du cycle thermique, la microstructure se met en place, par transport de matière entre les grains, afin de minimiser les excès d'énergies d'interface, se qui s'accompagne généralement d'une diminution de la porosité. Cette dernière se manifeste de façon macroscopique par un retrait par rapport à la pièce « crue ». [German, 1996; Bernache-Assollant, 1993].

Les premiers travaux théorique sur le frittage ont été développés à l'échelle du grains par Frenkel [Frenkel, 1945], Kuczinky [Kuczinky, 1949], Kingery [Kingery et *al.*, 1955] et Coble [Coble, 1961]. D'un point de vue thermodynamique, l'énergie de surface, E , s'écrit en fonction de la tension de surface solide/vapeur (γ_{sv}) de la tension de surface solide/solide (γ_{ss}) et de leurs aires respectives A_{sv} , et A_{ss} :

$$E = A_{sv} \cdot \gamma_{sv} + A_{ss} \cdot \gamma_{ss} \quad (\text{B.1})$$

Prenons le cas simple d'un système de disques arrangés sur un réseau carré, où la tension de surface solide/solide est plus faible que la tension de surface solide/vapeur. Sur l'état initial (cru), les aires des interfaces solide/solide (joints de grains dans le cas d'une céramique) sont très faibles alors que les surfaces solide/vapeur sont considérables (**fig. B-1**). Sous l'action de la température, la matière peut se déplacer. La taille des interfaces solide/solide augmente et les surfaces solide/vapeur diminuent. La diminution d'énergie induite par la diminution des surfaces solide/vapeur étant plus importante que l'augmentation de l'énergie solide/solide, l'énergie de surface totale, E , diminue. L'état final stable est atteint lorsque l'énergie de surface est minimisée.

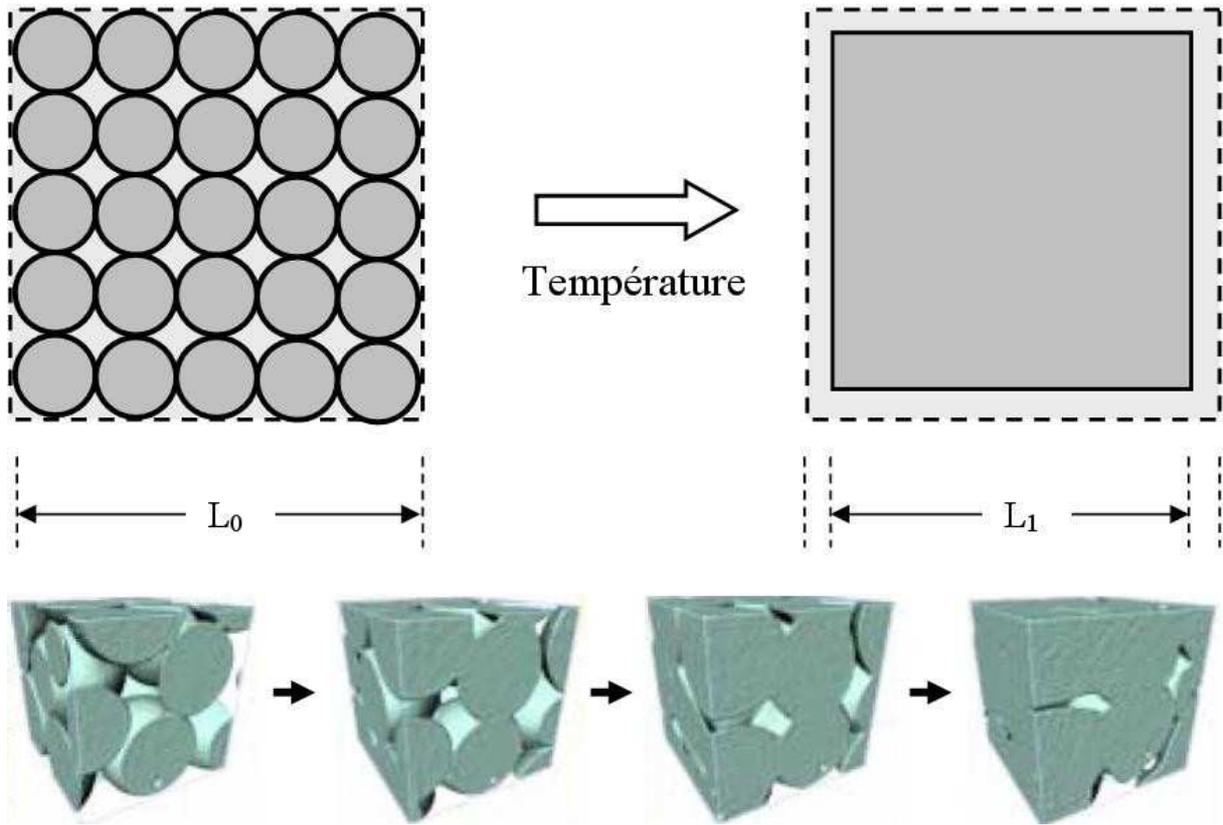


Fig. B-1: Au cours du frittage les surfaces solide/solide augmentent et les surfaces solide/vapeur diminuent afin de minimiser l'énergie de surface du système

La première étape du frittage au cours de laquelle les ponts entre grains se forment est modélisée par la soudure de deux grains sphériques de même taille. L'apparition des premiers contacts entre les grains peut être due à des forces de type électrostatique ou à des liaisons chimiques entre les espèces superficielles (élimination d'eau entre les grains). Le tore ainsi formé comporte deux rayons de courbure : le premier ρ est positif, le second r est négatif (**fig.B-2**).

Plusieurs mécanismes peuvent être employés pour expliquer la formation des ponts. Ces mécanismes sont basés sur la différence de l'énergie libre entre le secteur de pont et la surface de la particule. La pression à l'intérieur de la phase solide P_i est donnée par la relation suivante :

$$P_i = P_\infty + \frac{2\gamma_{sg}}{r} \quad (\text{B.2})$$

où P_∞ est la pression dans le solide quand $r \rightarrow \infty$ (cas d'un plan) et qui est égale à la pression de vapeur; γ_{sg} est la tension superficielle solide-gaz.

La présence de ces différents rayons de courbure induit des gradients de contrainte dans le solide. Ces gradients vont conduire à la diffusion de matière vers la surface extérieure du pont qui est en tension et qui possède la plus faible tension de vapeur (lois de la diffusion de Fick).

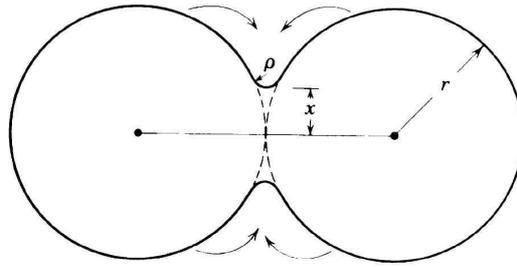


Fig. B-2 : Formation du pont, entre deux grains sphériques de même taille, par diffusion de la matière

Dans la phase solide, deux chemins de diffusion sont envisageables : le flux peut être concentré à la surface des grains (diffusion superficielle) ou se propager par l'intérieur des grains (diffusion en volume). Ces deux mécanismes expliquent le phénomène du retrait et le comblement de porosité. En effet, lorsque les atomes proviennent de la surface des grains, le pont grandit sans évolution de la distance entre les grains. Le développement du joint de grains conduit alors à une consolidation de la pièce sans retrait important (la diminution des dimensions extérieures due à la sublimation des surfaces est négligeable). Par contre, si les atomes proviennent du centre du joint de grains, le maintien de la cohérence de la pièce nécessite un rapprochement des deux grains. En appelant $2h$ le rapprochement des centres, le rapprochement relatif vaut h/r . Pour un comprimé, le retrait relatif linéaire est mesuré par $\Delta L / L_0$, si on appelle L_0 la longueur initiale du barreau et ΔL le retrait absolu. À ce retrait linéaire correspond un retrait volumique relatif $\Delta V / V_0$.

En supposant que la cinétique de croissance du pont dépend seulement de la diffusion de matière, la vitesse d'élaboration du pont peut être déterminée en utilisant la première loi de Fick qui donne la densité de flux de matière pénétrant dans le pont, lorsqu'il existe un gradient de la contrainte σ entre deux parties d'un système [Kingery *et al.*, 1955] :

$$\frac{x}{t} = \left[\frac{40\gamma a^3 D^* r^2}{kTt^4} \right]^{1/5} \quad (\text{B.3})$$

où γ est l'énergie de surface, a^3 est le volume atomique du solide, D^* le coefficient de diffusion.

L'influence de la température est mise en évidence par la relation suivante :

$$\frac{x}{t} \propto T^5 \left[\exp\left(\frac{-E_v}{kT} \right) \right]^{1/5} \quad (\text{B.4})$$

où E_v est l'énergie d'activation du mécanisme de diffusion considéré.

Annexe C

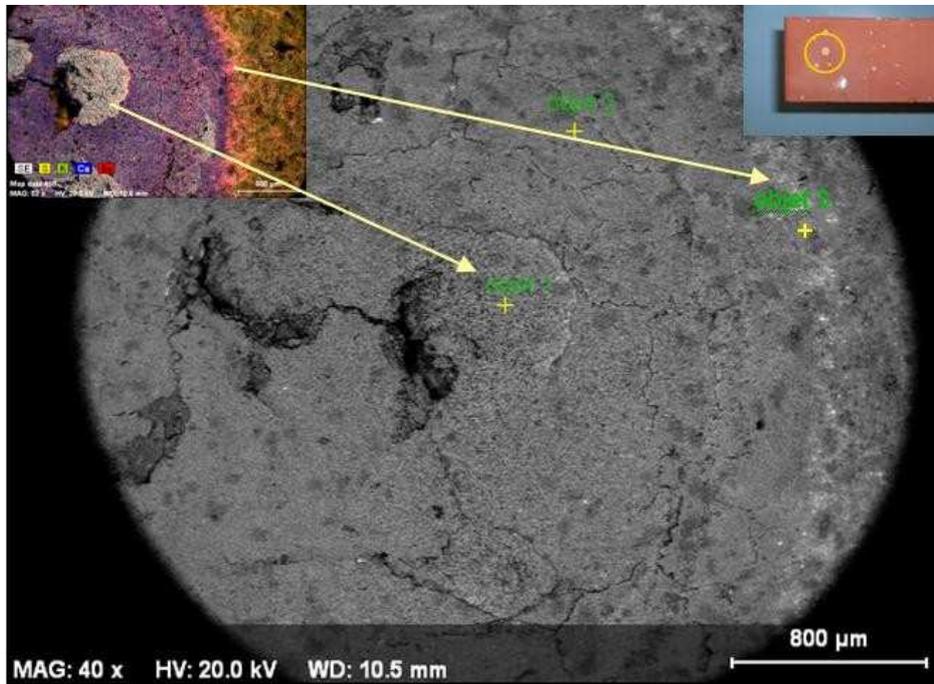


Photo C-1 : Présence des taches blanches à la surface des briques

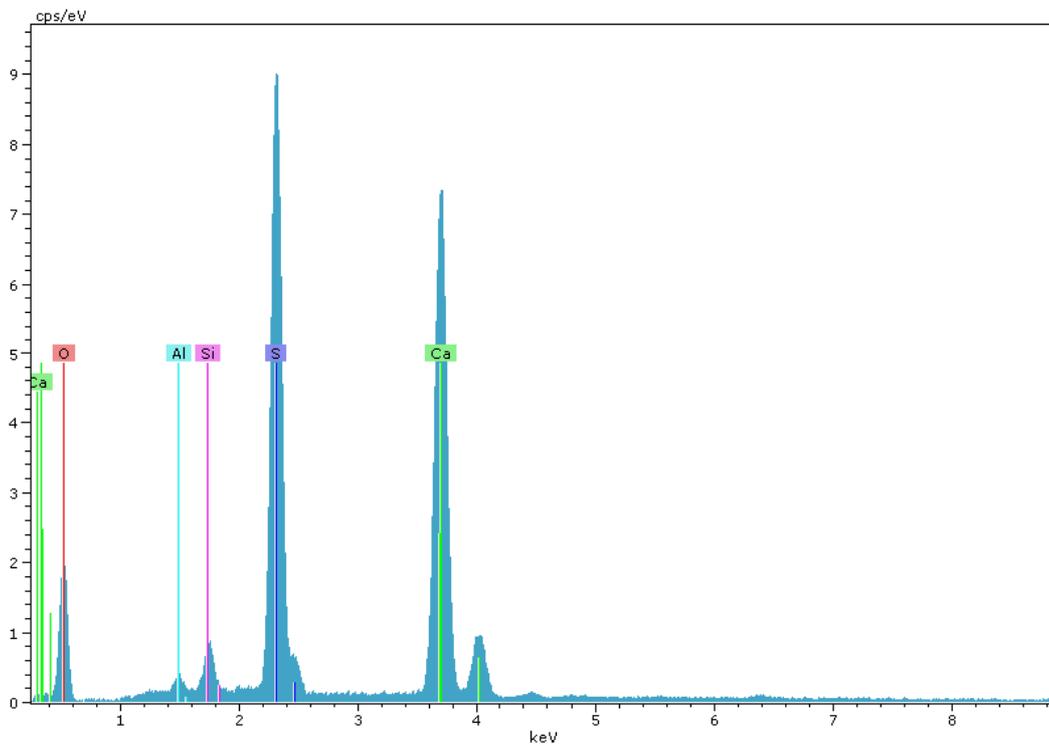


Fig. C-1 : Spectre de l'objet 1 (gypse)

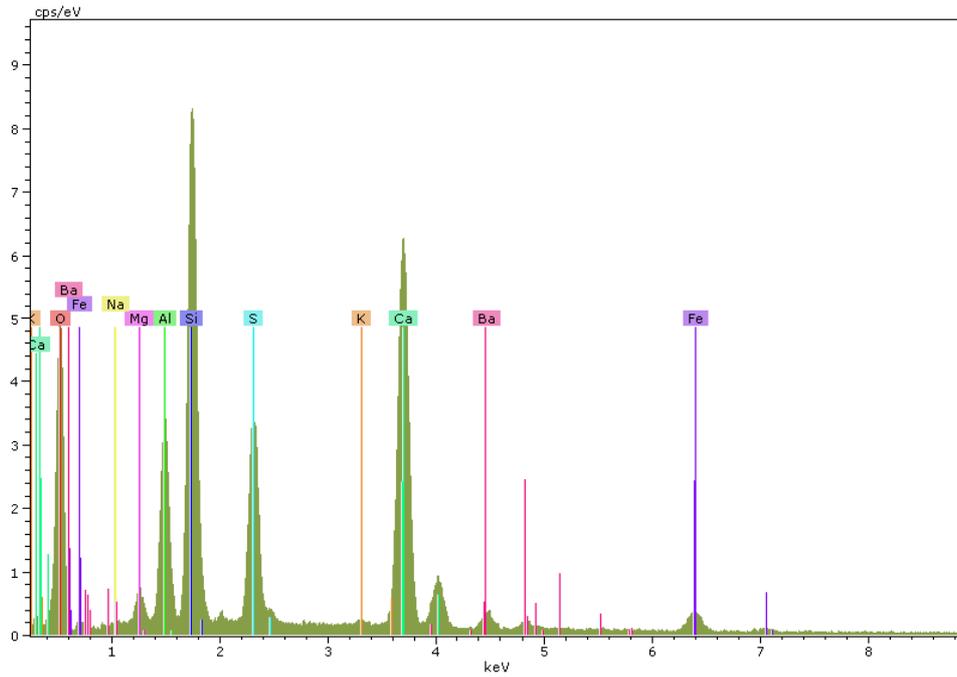


Fig. C-2 : *Spectre de l'objet 3 (barytine)*

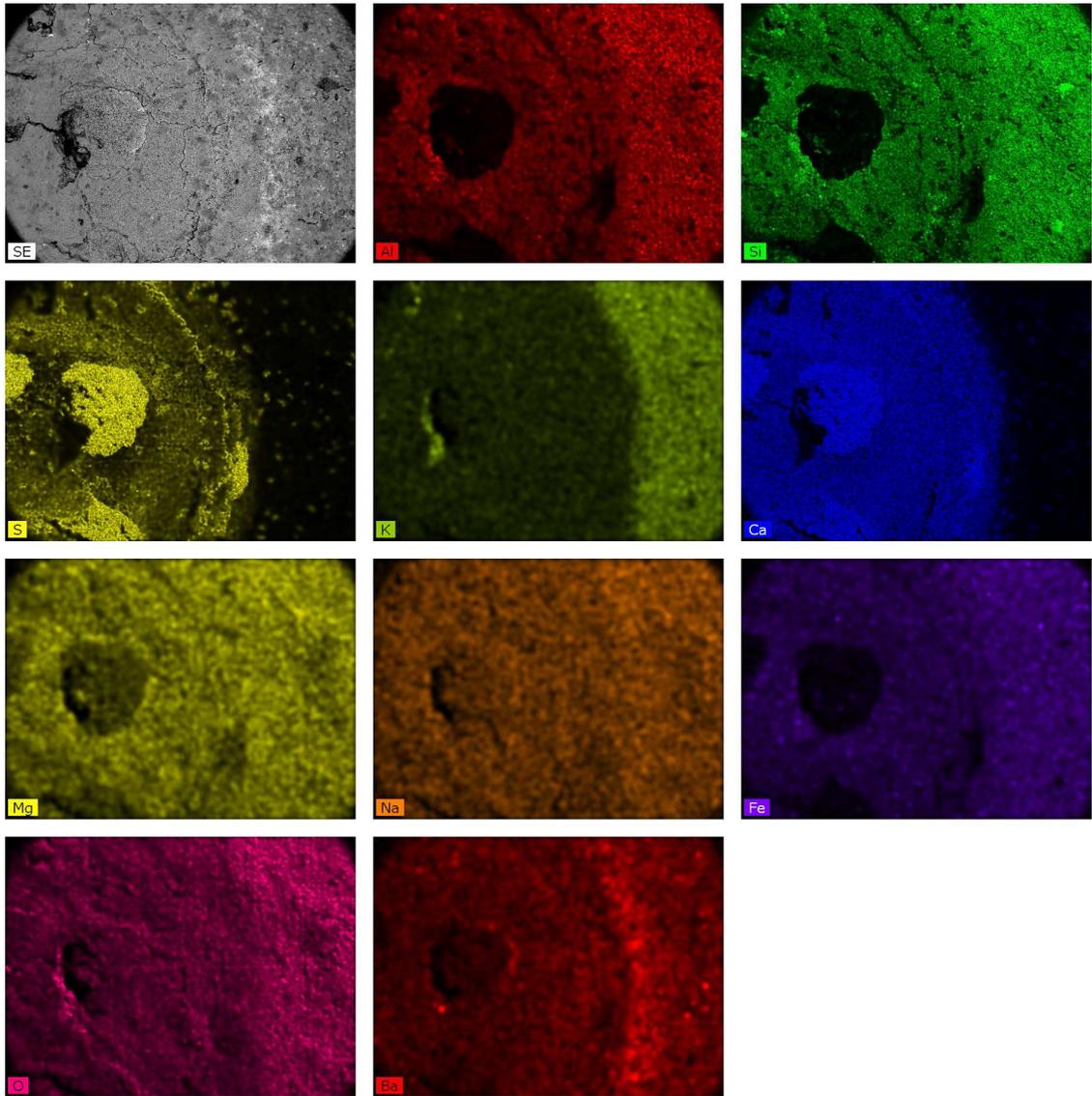


Fig. C-3 : Cartographie (MEB) de la zone autour du grain de calcaire