



## Utilisation des argiles faiblement kaolinitiques de Songololo (province du Kongo central en République Démocratique du Congo) comme matériaux cimentaires supplémentaires

Guyghens Bongwele Onanga<sup>1,2</sup>, Eric Kisonga Manuku<sup>1</sup>, Daddy Patrick Ilito Lofongo<sup>3</sup>, Riadh Ben Khalifa<sup>2</sup>  
Dominique Wetshondo Osomba<sup>1</sup>

<sup>(1)</sup>Université de Kinshasa. Faculté des Sciences et Technologie. Mention Géosciences. BP 190 Kinshasa XI (RDC).  
E-mail : bongweleguy@gmail.com

<sup>(2)</sup>Cimenterie Nyumba Ya Akiba (CIMKO). Songololo, Province du Kongo Central (RDC).

<sup>(3)</sup>Centre de Recherches Géologiques et Minières (CRGM). BP 898 Kinshasa/Gombe (RDC).

Reçu le 10 février 2025, accepté le 21 mars 2025, publié en ligne le 29 mars 2025

DOI : <https://dx.doi.org/10.4314/rafea.v8i1.12>

### RESUME

**Description du sujet.** De nos jours, l'industrie du ciment s'appuie sur les Matériaux Cimentaires Supplémentaires (MCS) pour réduire le facteur clinker, et par conséquent, les émissions de dioxyde de carbone (CO<sub>2</sub>). Cependant, cette solution n'est efficace que si elle repose sur des matériaux réactifs, disponibles en grande quantité et à faible coût.

**Objectif.** Cette étude examine la possibilité d'utiliser les argiles calcinées faiblement kaolinitiques (<40 %) en association soit avec du calcaire soit avec du calcaire dolomitique comme MCS pour la production des ciments Portland composés appelés LC3 (Limestone Calcined Clay Cement) ou DLC3 (Dolomitic Limestone Calcined Clay Cement).

**Méthodes.** La composition minéralogique, la température de calcination et la composition chimique des argiles et autres composants ont été analysées respectivement à l'aide de la diffraction des rayons X, de la thermogravimétrie et de la spectrométrie de fluorescence des rayons X. Les ciments à différents taux de substitution du clinker ont été préparés et les analyses physiques et mécaniques sur mortiers ont été effectuées. Enfin, l'Indice de Développement de Résistance comparé aux ciments de référence a été mesuré à 1, 2, 7, 28 et 90 jours.

**Résultats.** Les résultats montrent que malgré la faible teneur en kaolinite, la calcination des argiles à 800 °C pendant 3 - 5 min et la cooccurrence des minéraux argileux ont un effet positif sur leur réactivité et permet de produire des ciments LC3 et DLC3 aux performances mécaniques conformes à la norme EN 197-1 et similaires aux ciments de référence.

**Conclusion.** Les argiles dites pauvres peuvent être utilisées comme MCS dans l'industrie du ciment dans la province du Kongo central en République Démocratique du Congo.

**Mots-clés :** Argile kaolinitique, composition minéralogique, clinker, ciment composé, Songololo/RDC

### ABSTRACT

**Use of low kaolinitic clays from Songololo (Kongo Central Province in the Democratic Republic of Congo) as supplementary cementitious materials**

**Description of the subject.** The cement industry today relies on supplementary cementing materials (SCMs) to reduce the clinker content in cement, thereby lowering carbon dioxide (CO<sub>2</sub>) emissions. This approach is effective only when using reactive, abundant, and readily available SCMs. In the past, various materials have been used as SCMs, but the substitution rates for clinker rarely exceed 25 %.

**Objective.** This study investigates the potential of using calcined clays with low kaolinitic content (<40 %), mixed with limestone or dolomitic limestone, as SCMs to produce an eco-friendly cement known as limestone calcined clay cement (LC3) or dolomitic limestone calcined clay cement (DLC3).

**Methods.** The phase content, calcination temperature, and oxide content of clays and other components were

analyzed using X-ray diffraction (XRD), thermogravimetric analysis (TG), differential thermal analysis (DTA), and X-ray fluorescence (XRF) spectrometry. Cements with varying clinker substitution rates were prepared, and both physical and mechanical analyses were conducted on mortars. The strength development index compared to that of reference cements was measured at 1, 2, 7, 28, and 90 days.

**Results.** The results highlighted that despite the low kaolinite content, calcining these clays at 800°C for 3–5 minutes, and the co-occurrence of other clay minerals, positively influenced their reactivity and the development of mechanical properties of the mortars. The mortars exhibited compressive strengths that met the EN197-1 standard and were comparable to those of reference cements.

**Conclusion.** So-called poor clays can be used as MCS in the cement industry in the Kongo Central province in the Democratic Republic of Congo.

**Keywords:** Low kaolinitic clay, mineralogical composition, clinker, composite cement, Songololo/DRC

---

## 1. INTRODUCTION

Le ciment est un matériau abordable, largement disponible et facile à manipuler, mais sa production génère des émissions substantielles de dioxyde de carbone (CO<sub>2</sub>). En moyenne, la fabrication d'une tonne de Ciment Portland Ordinaire (OPC) émet entre 0,8 et 0,9 tonne de CO<sub>2</sub>. On estime que l'industrie du ciment représente entre 5 et 8 % des émissions mondiales d'origine anthropique et environ 35 % des émissions industrielles mondiales (Taylor, 1997 ; Cancio, 2017). La production d'OPC repose sur une consommation massive de matières premières naturelles et est énergivore. Toutefois, l'une des raisons de son succès réside dans la grande disponibilité des ressources nécessaires à sa fabrication, telles que le calcaire, l'argile et le sable (Taylor, 1997 ; Scrivener & Favier, 2015).

Les émissions du dioxyde de carbone (CO<sub>2</sub>) lors de la production du ciment proviennent principalement de la décomposition de la calcite (CaCO<sub>3</sub>), principal constituant des calcaires, en chaux (CaO) et CO<sub>2</sub> pendant la cuisson à 950 °C d'une part, et d'autre part, par l'utilisation de combustibles fossiles dans le four (Gartner, 2004 ; Scrivener, 2014 ; Cancio, 2017).

Afin de réduire les impacts environnementaux, l'industrie du ciment a proposé plusieurs solutions, parmi lesquelles, la substitution du clinker par des Matériaux Cimentaires Complémentaires (MCS) s'avère être la plus efficace (Lothenbach *et al.*, 2011). Par le passé, divers types de MCS ont été utilisés, allant des roches naturelles aux sous-produits industriels. Toutefois, le taux de substitution du clinker par les MCS ne dépasse généralement pas 25 % et cette approche n'est viable que si elle repose sur des MCS réactifs, abondants et facilement disponibles et à faible coût (Antoni *et al.*, 2012 ; Scrivener, 2014 ; Scrivener *et al.*, 2015 ; Scrivener *et al.*, 2018).

En 2008, un nouveau ciment ternaire appelé Limestone Calcined Clay Cement (LC3), utilisant le

mélange argile calcinée (argile avec > 40 % de kaolinite) – calcaire comme MCS a été mis au point, permettant des taux substitution du clinker par les MCS jusqu'à 50 %, et produisant un Eco-ciment avec des propriétés mécaniques similaires avec amélioration sur certains aspects de la durabilité du mortier (Zunino *et al.*, 2021 ; Scrivener *et al.*, 2018 ; Onanga *et al.*, 2023). Les argiles contenant moins de 40 % de kaolinite sont dites pauvres et sont considérées comme moins réactives et par conséquent ne peuvent pas être considérées comme des bons MCS (Tironi *et al.*, 2013 ; Antoni *et al.*, 2012).

La présente étude examine la possibilité d'utiliser les argiles, faiblement kaolinitiques (<40 %), calcinées en association avec le calcaire comme MCS pour la production de ciments Portland composés appelés LC3 d'une part, et d'autre part en association avec le calcaire dolomitique pour produire le ciment Portland composé appelé DLC3 (Dolomitic Limestone Calcined Clay Cement). Il est question d'étudier la réactivité de ces argiles en présence du calcaire ou du calcaire dolomitique ainsi que les performances mécaniques des mortiers qui en résulteront. Ceci permettra de valoriser les argiles faiblement kaolinitiques ainsi que les roches dolomitiques, qui sont actuellement considérées comme des matériaux à éviter dans l'industrie du ciment.

## 2. MATERIEL ET METHODES

Les matières premières nécessaires à la production de ciment composé LC3 ou DLC3 sont le clinker, le calcaire ou le calcaire dolomitique, l'argile kaolinite et le gypse. Dans cette étude, les différents types d'argile de la région de Songololo et leur potentielle utilisation, en association avec le calcaire ou calcaire dolomitique comme MCS ont été analysés. Macroscopiquement, trois types d'argiles dans cette région, et nous les avons codifiées YC, RC et LC (qui se distinguent par leur couleur et leur texture, comme le montre la figure 1).



**Figure 1.** Différent types d'argiles de Songololo

Ces différentes argiles sont étudiées sur le plan minéralogique, chimique et thermogravimétrique afin de connaître leur compositions minéralogique et chimique ainsi que le mode d'activation. Les autres composants (calcaire, calcaire dolomitique, gypse et sable), ont été cependant analysés uniquement sur le plan chimique.

### 2.1. Diffraction des rayons X (DRX)

Six échantillons d'argile (YC, RC et LC) ont été analysés pour leur contenu minéralogique. Les poudres ont été collectées et analysées sur un diffractomètre Philips PW1050 utilisant un rayonnement Cu-K $\alpha$  graphite-monochromatisé ( $\lambda = 1,5418 \text{ \AA}$ ) dans la gamme  $2\theta$  4-65° (longueur de pas : 0,02°  $2\theta$ , temps de balayage : 5s ; 40 kV et 20 mA). La méthode de Rietveld a ensuite été utilisée pour calculer les différentes phases minéralogiques (Wilson, 1987 ; Aparicio & Galan, 1999; Brigatti *et al.*, 2013).

### 2.2. Spectrométrie de fluorescence X (XRF)

Six échantillons d'argiles (YC, RC et LC) ainsi que les échantillons de chaque composant ont été analysés pour déterminer leur teneur en oxydes majeurs à l'aide d'un spectromètre de fluorescence X Thermo Scientific ARL 9900 series IntelloPower X-Ray analyzer.

### 2.3. Analyse thermogravimétrique (TG) et analyse thermique différentielle (ATD)

Le comportement thermique d'un échantillon de l'argile YC a été étudié à l'aide d'un calorimètre DSC-

TGA simultané SDT Q600, de la température ambiante jusqu'à 1200 °C, avec une vitesse de chauffage de 20 °C/min sous une atmosphère dynamique de N<sub>2</sub> (100 cm<sup>3</sup> /min) (Bich, 2005 ; Gasparini *et al.*, 2013).

Ensuite, l'indice Slope Ratio (SR) a été calculé comme le rapport entre la branche descendante et la branche ascendante de la pente du même pic sur la courbe ATD. La technique ATD est appropriée pour la sélection de la température de calcination afin d'obtenir une déshydroxylation complète de la kaolinite (Wilson, 1987 ; Antoni *et al.*, 2012 ; Scriviner & Favier, 2015).

### 2.4. Formulation des ciments Portland composés

Les ciments composés LC3 ou DLC3 sont formulés en substituant partiellement le clinker respectivement par les mélanges argile calcinée – calcaire et argile calcinée – calcaire dolomitique. Les tableaux 1 et 2 indiquent la proportion de chaque composant dans la formulation du ciment LC3 - DLC3 et dans les ciments de référence (CIMKO 32.5 et 42.5).

**Tableau 1.** Proportion des différents composants dans le ciment mélangé LC3/DLC3

Composants	Proportion (%)
Clinker	50 – 65
Argile calcinée	15 – 30
Calcaire ou calcaire dolomitique	3 – 32
Gypse	3 – 5

**Tableau 2.** Formulation des ciments Portland composés LC3/DLC3 par rapport aux ciments de référence

Ciments	Clinker (%)	Argile calcinée (%)	Calcaire (%)	Calcaire dolomitique (%)	Gypse (%)
CIMKO 32.5	65	0	32	0	3
CIMKO 42.5	84	0	13	0	3
LC3 (1)	50	30	15	0	5

DLC3	50	30	0	15	5
LC3 (2)	50	25	20	0	5
LC3 (3)	60	25	10	0	5
LC3 (4)	65	22	8	0	5
LC3 (5)	65	20	10	0	5
LC3 (6)	70	18	7	0	5
LC3 (7)	70	17	8	0	5

## 2.5. Essais physiques sur mortiers

Les performances du ciment composés LC3 et DLC3 sont analysées sur mortiers et comparées à celles des ciments de référence (CIMKO 32.5 et 42.5). Ces essais ont porté sur la finesse de la mouture, les temps de prise (initiale et finale), la consistance normale (CN) ainsi que l'expansion réalisés conformément à la norme EN 196-3 (British Standard EN197-1, 2000 ; British Standard EN196-3, 2008).

## 2.6. Résistance à la compression

Les cylindres de mortier ont été préparés à un rapport E/C de 0,50 et ont été utilisés pour étudier la résistance à la compression des ciments composés LC3 et DLC3 selon la norme EN 196-1:2008 (British Standards EN 196-1, 2005). Les ciments de référence (CIMKO 32.5 et 42.5) ont été pris comme référence pour la détermination de l'Indice de Développement des Résistances (IDR).

## 3. RÉSULTATS ET DISCUSSION

La réactivité de l'argile ou son activité pouzzolanique est essentielle pour le développement des résistances mécaniques du mortier. Ces résistances, mesurées aux jours 1, 2, 7, 28 et 90, dépendent largement de la minéralogie des argiles, de la chimie des composants ainsi que des propriétés physiques des mortiers.

### 3.1. Composition minéralogique

L'analyse par diffraction des rayons X (DRX) de différents échantillons d'argile (tableau 3) montre que le principal minéral argileux dans les argiles de Songololo est la kaolinite (37 % dans YC, 26 % dans RC et 31 % dans LC) avec cooccurrence de l'illite et de la muscovite. La teneur en kaolinite étant inférieure à 40 % dans toutes les argiles. Par conséquent, ces argiles sont dites « Pauvres ».

Les phases amorphes sont présentes dans les argiles YC et LC et malheureusement absentes dans l'argile RC. Ces phases témoignent du désordre dans la structure cristalline des argiles et par conséquent, augment leur réactivité en face des matériaux cimentaires. Enfin, le quartz est l'impureté majeure de toutes les argiles.

**Tableau 3.** Composition minéralogique de différentes argiles de la région de Songololo

Phase (%)	Echantillons Argiles					
	YC1	YC2	RC1	RC2	LC1	LC2
Quartz	31,6	30,1	68	67,3	20,4	20,1
Muscovite	3,3	2,9	2	2,3	3,1	3,0
Kaolinite	36,4	37,5	25,4	26,2	31,6	30,5
Illite	16,2	15,3	-	-	-	-
Goethite	4,3	4,2	3,3	4,2	27,8	28,7
Hematite	0,4	0,3	-	-	3,2	3,1
Amorphes	9,6	9,7	-	-	13,9	14,6

Selon les critères d'utilisation des argiles en tant que MCS (Antoni *et al.*, 2012 ; Scriviner *et al.*, 2014 ; Scriviner *et al.*, 2015), les argiles de Songololo ne sont pas assez bonnes, mais la cooccurrence des minéraux argileux et la présence d'une phase amorphe peuvent augmenter la réactivité de ces argiles et en faire de bon MCS.

Néanmoins, les argiles YC et LC avec des teneurs en kaolinite proches de 40 %, une phase amorphe élevée et moins de quartz peuvent être considérées MCS. Mais il faudra approfondir les études sur l'argile LC car elle possède une abondante phase ferri-fère (28 % goethite et 3 % hématite) (Tableau 3). Ainsi, sur le plan minéralogique, la seule

argile pouvant servir de MCS efficace est l'argile YC.

### 3.2. Composition chimique

Les argiles requises comme pouzzolane pour la production du ciment portland composé sont alumineuses, contrairement au ciment portland ordinaire qui utilise les argiles siliceuses. Les critères d'acceptation des argiles utilisées en tant que pouzzolanes dans la production du ciment LC3 sont donnés dans le Tableau 4 (Tironi *et al.*, 2012 ; Scriviner *et al.*, 2015 ; Zunino *et al.*, 2021).

Les éléments nuisibles à éviter dans la matière première sont notamment la chaux, le fer et le soufre. La chaux dans l'argile pourrait affecter négativement le béton en réagissant avec le CO<sub>2</sub> et en réformant la calcite (réaction de carbonatation), le fer conditionne l'aptitude à la cuisson de l'argile et le soufre est un pyrophobe qui ne facilite pas la bonne exploitation des fours (Taylor, 1997 ; Bich, 2005).

La détermination de la composition chimique permet d'estimer la teneur en oxydes pouzzolaniques (dioxyde de silicium (SiO<sub>2</sub>), oxyde d'aluminium (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) et oxyde de fer (III) (Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>), connus pour être à la base de l'activité pouzzolanique qui donne des hydrates responsables de la résistance (Avet & Scrivener, 2018 ; Scriviner *et al.*, 2018).

**Tableau 4.** Critères d'acceptation des argiles utilisées comme MCS (Scriviner *et al.*, 2014)

Oxydes et Ratio	Limites admissibles (%)
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	>18,0
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> / SiO <sub>2</sub>	> 0,2
CaO (%)	< 3,0
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (%)	< 10,0
SO <sub>3</sub> (%)	< 3,0
Somme Oxydes Pouzzolaniques (%)	> 75,0
Perte au Feu	< 10,0

Les tableaux 5 et 6 montrent la composition chimique des différentes argiles ainsi que divers ratios qui conditionnent leur utilisation en tant que MCS dans la production des ciments LC3 et DLC3.

**Tableau 5.** Composition chimique des argiles

Echantillons	Oxydes majeurs (%)							
	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CaO	MgO	K <sub>2</sub> O	Na <sub>2</sub> O	SO <sub>3</sub>
LC1	28,24	17,99	41,77	0,08	0,04	0,24	0,03	0,06
LC2	31,00	18,41	37,73	0,42	0,15	0,43	0,03	0,32
RC1	78,51	15,37	4,25	0,03	0,15	0,38	0,02	0,00
RC2	84,81	12,58	3,19	0,77	0,07	0,08	0,03	0,00
YC1	51,53	20,37	11,07	0,07	0,82	3,38	0,03	0,04
YC2	50,62	18,77	15,41	0,01	0,67	2,82	0,04	0,03

**Tableau 6.** Ratios chimiques des argiles

Echantillons	Ratio			
	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> / SiO <sub>2</sub>	SiO <sub>2</sub> /Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Oxydes Pouzzolaniques	Non Argileux
LC1	0,64	1,57	88,00	42,22
LC2	0,59	1,68	87,14	39,08
RC1	0,20	5,11	98,13	4,83
RC2	0,15	6,74	100,58	4,14
YC1	0,40	2,53	82,97	15,41
YC2	0,37	2,70	84,80	18,98

L'argile YC possède de bonnes propriétés chimiques (teneur élevée en Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> autour de 18 %), le rapport Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/SiO<sub>2</sub> autour de 0,35 se trouve dans la plage acceptable ensuite des teneurs faibles en SO<sub>3</sub> et en CaO. Néanmoins, la teneur

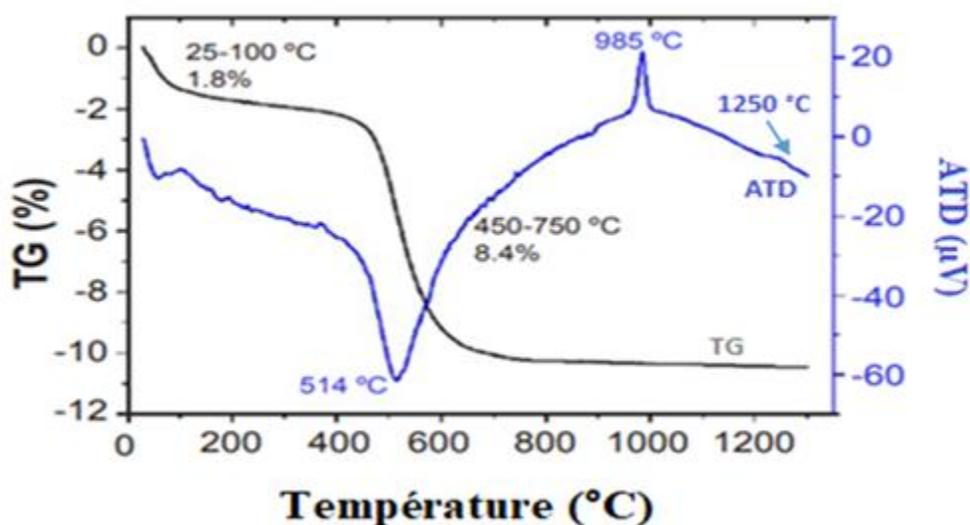
élevée en  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ , ceci aura une incidence sur la couleur du produit de calcination. Cette argile présente des bonnes perspectives chimiques mais l'optimisation de la couleur de l'argile calcinée sera nécessaire

L'argile RC possède de faibles propriétés chimiques (faible teneur en  $\text{Al}_2\text{O}_3 < 18\%$ ), le rapport  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$  est faible en raison de la teneur élevée en silice. Cette argile a un faible potentiel de calcination.

L'argile LC présente des propriétés chimiques modérées (teneur élevée en  $\text{Al}_2\text{O}_3$  autour de  $18\%$ ), le rapport  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$  se trouve dans la plage acceptable, des teneurs faibles en  $\text{SO}_3$  et en  $\text{CaO}$  mais avec des teneurs élevées en  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ . Ainsi, sur le plan chimique, les argiles YC et LC peuvent être considérées comme des MCS dans la production des ciments LC3 et DLC3.

### 3.3. Analyse thermogravimétrique (TG) et thermo-différentielle (ATD)

Les tests thermogravimétriques ont été effectués uniquement sur l'argile YC, du fait que c'est la seule argile qui a répondu positivement aux critères minéralogiques et chimiques. La Figure 2 montre le résultat des courbes combinées de l'analyse thermogravimétrique (TG) et son dérivé Thermodifférentielle (ATD).



**Figure 2.** Courbes TG et ATD de l'argile YC

La courbe TG montre que cette argile perd  $1,8\%$  de sa masse entre  $25$  et  $100\text{ °C}$  correspondant à la perte de l'humidité et de l'eau adsorbée, et  $8,4\%$  de sa masse entre  $450$  et  $750\text{ °C}$  liée à l'élimination des ions  $\text{OH}^-$  et du réarrangement des ions aluminium dans sa structure cristalline (Aparicio & Galan, 1999 ; Gasparini *et al.*, 2013). Au-delà de  $750\text{ °C}$ , la masse de cette argile reste stable.

En revanche, la courbe ATD montre deux pics importants (Figure 2), l'un à  $514\text{ °C}$  correspondant à une réaction endothermique liée à la déshydroxylation et l'autre à  $985\text{ °C}$  correspondant à une réaction exothermique liée à la cristallisation de la mullite (mullitisation) (Tironi *et al.*, 2012 ; Brigatti *et al.*, 2013).

Ainsi, entre  $750\text{ °C}$  et  $985\text{ °C}$ , l'argile se trouve dans un état amorphe qui correspond à une déshydroxylation complète avec formation du métakaolin. La bonne fenêtre de calcination de l'argile YC se situe donc entre  $600$  et  $800\text{ °C}$ , mais pour la présente étude, la température de référence était de  $800\text{ °C}$  avec différents temps de séjour allant de  $5$  à  $10$  minutes.

La valeur de l'indice SR résumée dans le tableau 7 classe l'échantillon YC comme contenant des structures désordonnées (Aparicio & Galan, 1999).

**Tableau 7.** Indice SR de l'échantillon YC

Technique	Indice SR	RANGE	~1	>2
ATD	2,2	Structure	Ordonnée	Désordonnée

L'indice SR caractérise la présence de défauts de surface d'un minéral : Pour  $\text{SR} = 1$ , le pic est symétrique et la

kaolinite ne présente pas beaucoup de défauts de surface, elle est ordonnée. Pour SR supérieur à 2, comme le cas de l'argile YC, le minéral présente des défauts de surface, elle est désordonnée, et par conséquent, elle possède une activité pouzzolanique (Aparicio & Galan, 1999).

### 3.4. Formulation des ciments composés

Les différents ciments LC3 et DLC3 ont été préparés en utilisant l'argile YC. La proportion de chaque composant est indiquée dans le tableau 1. Huit formulations (LC3 « 1 - 7 » ainsi que DLC3) ont été étudiées et les tableaux 8 et 9 donnent les compositions chimiques des composants ainsi que les différentes formulations des ciments. Toutes les formulations LC3 et DLC3 ont des teneurs en CaO qui ne dépassent pas 55 %, ce qui aura des incidences sur l'hydratation au jeune âge.

**Tableau 8.** Composition chimique des différents composants

Composants	Oxydes							
	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CaO	MgO	SO <sub>3</sub>	K <sub>2</sub> O	Na <sub>2</sub> O
Calcaire	0,88	0,13	0,08	54,32	1,29	0,06	0,00	0,01
Gypse	1,61	0,40	0,25	31,49	0,51	40,90	0,15	0,03
Clinker	21,24	5,22	3,72	65,12	2,41	0,73	0,43	0,9
Argile calcinée	57,19	22,82	8,48	0,14	1,38	0,02	3,42	0,36
Sable standard	99,41	0,00	0,3	0,4	0,00	0,00	0,004	0,00

**Tableau 9.** Analyse chimique des ciments LC3, DLC3 et Ciments de référence

Ciments	Eléments Analysés									
	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CaO	MgO	K <sub>2</sub> O	Na <sub>2</sub> O	SO <sub>3</sub>	PF	Chaux libre
CIMKO 32.5	15,46	3,62	2,9	65,43	1,67	0,50	0,15	1,81	13,53	2,70
CIMKO 42.5	18,67	4,42	3,43	63,68	1,8	0,60	0,19	2,18	4,29	3,56
LC3 (1)	39,40	9,50	1,86	47,60	2,73	1,66	0,18	1,78	8,24	1,78
DLC3	36,08	8,56	1,45	43,60	0,94	1,47	0,12	1,82	8,25	1,89
LC3 (2)	38,68	9,52	1,75	45,26	0,91	1,67	0,14	1,84	10,62	1,89
LC3 (3)	21,90	6,82	4,45	54,30	1,73	0,83	0,13	2,55	8,83	2,89
LC3 (4)	23,00	6,91	4,57	53,30	1,73	0,83	0,13	2,56	8,64	2,51
LC3 (5)	23,62	7,64	4,96	51,48	1,7	0,93	0,13	2,38	8,49	2,67
LC3 (6)	23,72	7,64	4,96	50,48	1,7	0,93	0,13	2,38	8,50	2,18
LC3 (7)	22,61	6,91	4,57	53,32	1,73	0,83	0,13	2,56	8,65	2,17

### 3.5. Essais physiques sur mortiers

Les tableaux 10 et 11 présentent les résultats des analyses physiques du ciment LC3, DLC3 et ciments de référence.

#### Finesse Blaine du mortier

Les ciments LC3 et DLC3, avec des surfaces spécifiques dépassant 5000 cm<sup>2</sup>/g, sont plus fins que les ciments de référence (environ 3500 cm<sup>2</sup>/g) (Tableau 10), ce qui a un impact positif sur le développement des propriétés mécaniques. Plus la finesse du ciment est élevée, meilleure est la résistance à la compression (British Standards EN 197-1, 2000).

**Tableau 10.** Finesse de Blaine des différents ciments

Ciments	Finesse (cm <sup>2</sup> /g)	Résidu (%)	
		45μ	90μ
CIMKO 32.5	3606	7,4	0,1
CIMKO 42.5	3224	6,4	0,1
LC3 (1)	5885	18,1	0,1
DLC3	5829	21,0	0,1
LC3 (2)	5500	16,2	0,1

LC3 (3)	5462	12,5	0,1
LC3 (4)	6019	14,3	0,1
LC3 (5)	6395	16,7	0,1
LC3 (6)	6400	14,4	0,1
LC3 (7)	6430	14,2	0,1

### Consistance normale (CN)

Les ciments LC3 et DLC3 ont une consistance normale plus élevée (29,5 à 33 %) que les ciments de référence (Tableau 11), ce qui peut avoir un impact négatif sur la consommation d'eau, l'hydratation précoce et l'ouvrabilité. Une optimisation sur le rapport E/C est nécessaire pour les ciments LC3 et DLC3.

### Temps de prise et Expansion

La norme BS EN 196-3:2005+A1:2008 prescrit que les temps de prise (initiale et finale) des OPC doivent être compris respectivement entre  $100 \pm 10$  min et  $170 \pm 10$  min, tandis que pour les ciments composés, ces temps sont compris entre  $180 \pm 10$  min et  $240 \pm 10$  min (British Standards EN 196-3, 2008).

Le tableau 11 donnent les temps de prise des différents ciments (LC3, DLC3 et référence) et on constate des temps de prise initiale très longue pour les ciments LC3 et DLC3. Dans des études précédentes, il a été rapporté que le remplacement partiel du clinker par le calcaire et le métakaolin ( $Al_2O_3 \cdot SiO_2$ ) peut induire une réaction d'hydratation supplémentaire mais aussi un retard dans la prise initiale (Bich, 2005).

En revanche, l'utilisation combinée des argiles et des calcaires / calcaires dolomitique a eu un effet positif sur l'expansion des mortiers LC3 et DLC3. L'expansion du mortier (moins de 10 mm) (tableau 11) se situe dans la limite de la norme, même dans le cas du mortier DLC3 contenant environ 15 % de roches dolomitiques (British Standards EN 197-1, 2000).

**Tableau 11.** Analyse physique des différents mortiers

Mortiers	CN (%)	Prise initiale (min)	Prise finale (min)	Expansion (mm)
CIMKO 32.5	28,5	150	230	1,05
CIMKO 42.5	29,0	140	240	1,10
LC3 (1)	30,0	200	240	1,50
DLC3	29,5	240	235	1,50
LC3 (2)	30,5	210	230	1,50
LC3 (3)	32,5	190	227	1,40
LC3 (4)	33,0	190	226	1,40
LC3 (5)	33,0	190	220	1,34
LC3 (6)	33,0	190	225	1,33
LC3 (7)	33,0	190	223	1,35

### 3.6. Résistance à la compression

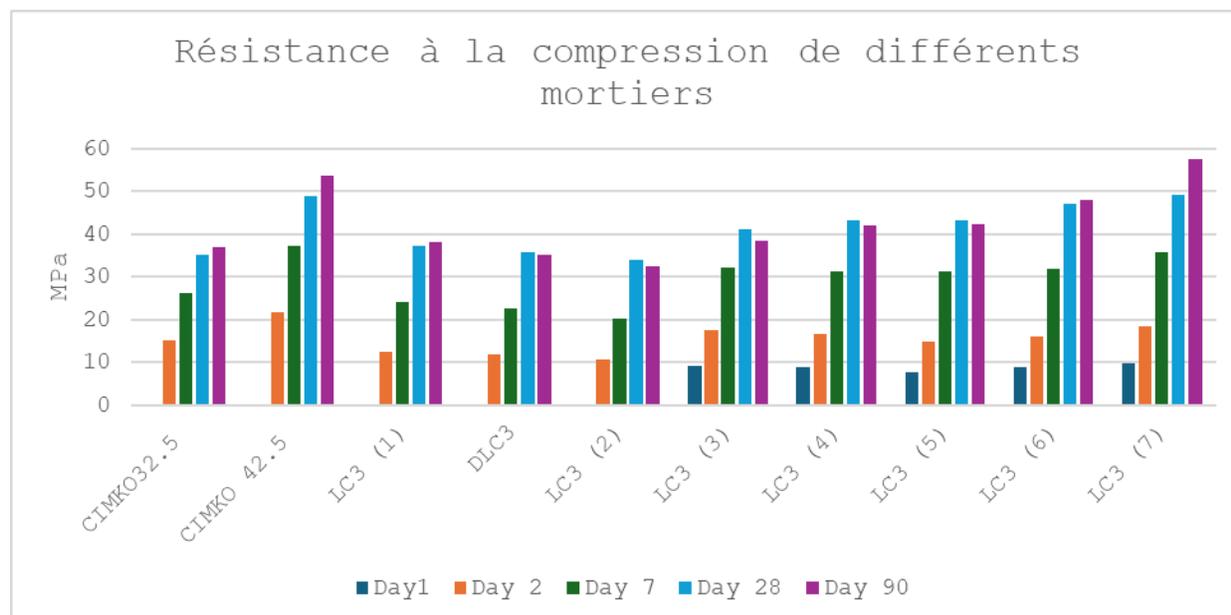
Dans le cas des mortiers utilisant les ciments LC3 ou DLC3, les résistances à la compression développées par les mortiers, à différents âges, dépendent de la réactivité des MCS en présence des matériaux cimentaires. Cette réactivité dépend des phases amorphes de l'argile kaolinite, de l'ordre/désordre dans la structure cristalline de la kaolinite et de la surface spécifique.

La surface spécifique joue un rôle sur l'hydratation au jeune âge tandis que le désordre dans la structure cristalline joue sur les performances mécaniques à la maturité du mortier à 28 jours (Taylor, 1997 ; Tironi *et al.*, 2012). Le tableau 12 donne les résistances à la compression développées par les différents ciments aux jours 1, 2, 7, 28 et 90.

**Tableau 12.** Résistance à la compression des différents mortiers vs la norme EN 197-1

Mortiers	Essai de résistance a la compression							
	Jour 1 (Mpa)	Jour 2 (Mpa)		Jour 7 (Mpa)		Jour 28 (Mpa)		Jour 90 (Mpa)
		Norme	Test	Norme	Test	Norme	Test	
CIMKO 32.5	-	8	15,1	14	26,1	30	35,2	37,0
CIMKO 42.5	-	8	21,7	-	37,1	40	48,8	53,7
LC3 (1)	-	8	12,5	-	24,1	-	37,3	38,1
DLC3	-	8	11,7	-	22,5	-	35,7	35,1
LC3 (2)	-	8	10,7	-	20,3	-	33,9	32,4
LC3 (3)	9,2	8	17,4	-	32,2	-	41,0	38,5
LC3 (4)	8,8	8	16,6	-	31,4	-	43,2	42,0
LC3 (5)	7,8	8	14,7	-	31,4	-	43,2	42,3
LC3 (6)	8,9	8	16,0	-	32,0	-	47,0	47,9
LC3 (7)	9,7	8	18,4	-	35,8	-	49,2	57,6

Au jeune âge, les mortiers LC3 et DLC3 développent des résistances à la compression conformes à la norme EN197-1 (British Standards EN 197-1, 2000) mais inférieures aux ciment de référence, ce qui signifie une faible réactivité des MCS. En revanche, aux jours 7, 28 et 90, il a été observé une bonne réactivité des MCS, ce qui se traduit par le développement des résistances à la compression proches des ciments de référence. La faible hydratation initiale peut être corrigée en utilisant les activateurs chimiques. La figure 3 illustre les résistances à la compression des différents ciments.

**Figure 3.** Résistance à la compression de différents mortiers

L'indice de développement de résistance (IDR) montre que les formulations LC3 (1-2) et DLC3 sont similaires au CIMKO 32.5 et que les formulations LC3 (3 - 7) sont bien meilleures que le CIMKO 32.5 (figure 4). Les formulations LC3 (6 - 7) ont des performances presque identiques à celles du CIMKO 42.5 (figure 5).

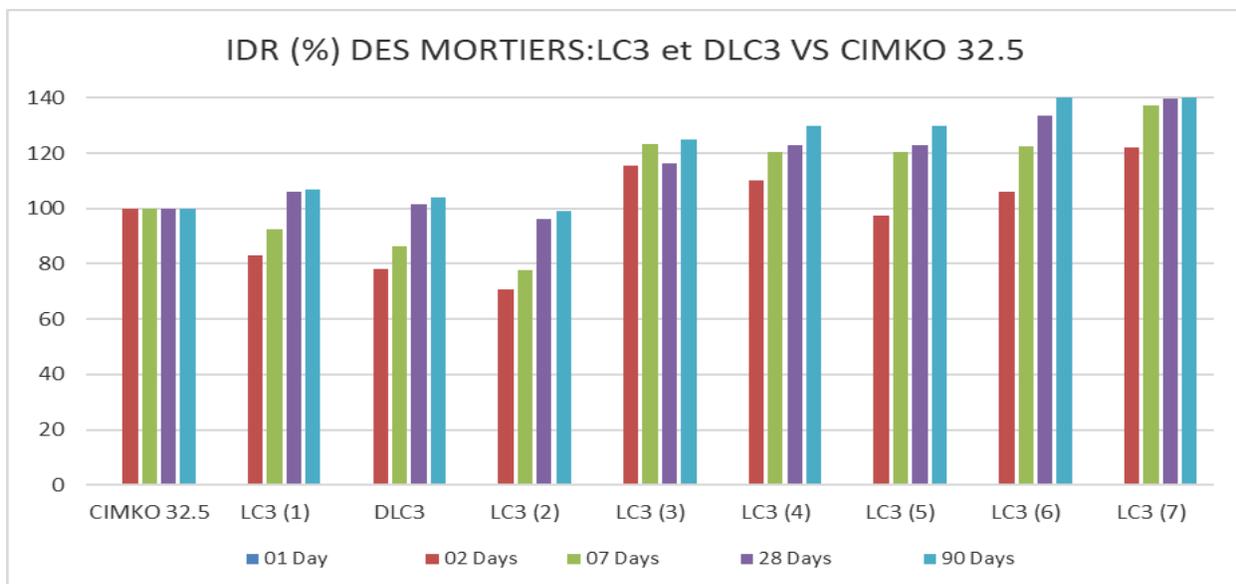


Figure 4. IDR des mortiers LC3 et DLC3 vs CIMKO 32.5

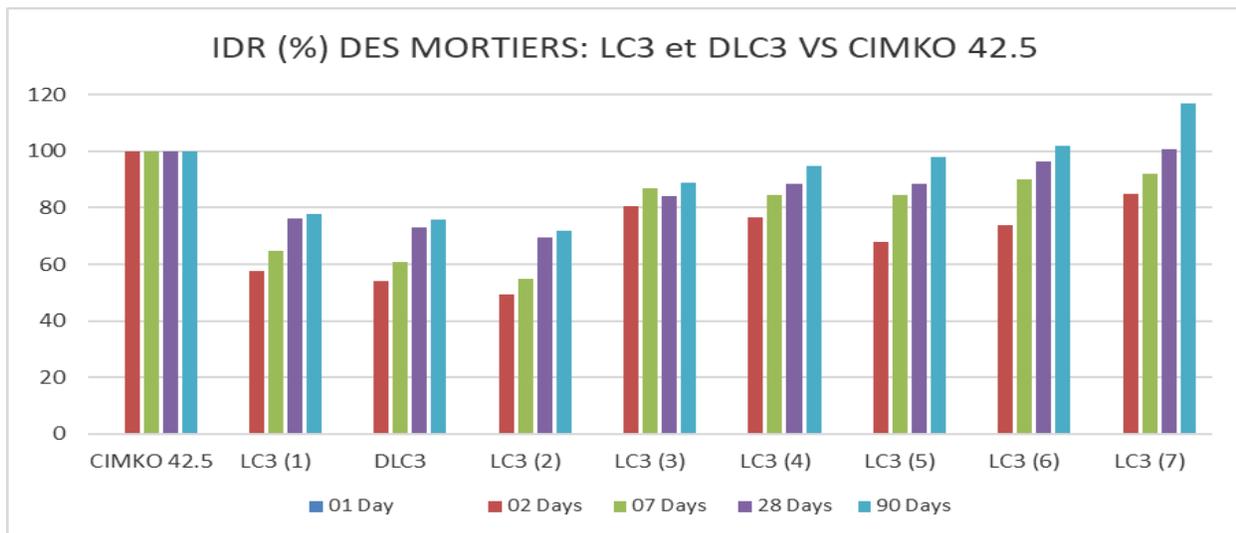


Figure 5. IDR des mortiers LC3 et DLC3 vs CIMKO 42.5

#### 4. CONCLUSION

Trois types d'argile (YC, RC et LC) ont été étudiés afin de déterminer leur potentielle utilisation en tant que MCS dans la production de ciment Portland composés LC3 ou DLC3. Sur le plan minéralogique, la principale phase minérale dans les argiles est la kaolinite (37 % dans YC, 26 % dans RC et 31 % dans LC) mais malheureusement sa teneur ne dépasse pas 40 %, et les argiles sont dites « pauvres » et ne peuvent pas, selon la littérature actuelle, être considérées comme MCS pour la production des ciment portland composés de type LC3. Néanmoins, la cooccurrence de minéraux argileux (illite et muscovite), la faible teneur en quartz ainsi que des phases amorphes dans les argiles LC et YC peuvent

suffire pour leur activation. Mais, il faudra approfondir les études sur l'argile LC car elle possède une abondante phase ferrifère (28 % goethite et 3 % hématite). Ainsi, sur le plan minéralogique, l'argile YC peut être considérée comme un bon MCS dans la production des ciments LC3 et DLC3.

Sur le plan chimique, les trois types d'argiles présentent aussi des variabilités avec des teneurs en alumine et silice différentes. L'argile RC possède de faibles propriétés chimiques (faible teneur en  $Al_2O_3 < 18\%$ ), le rapport  $Al_2O_3/SiO_2$  est faible en raison de la teneur élevée en silice. Cette argile a un faible potentiel de calcination. L'argile YC possède de

bonnes propriétés chimiques (teneur élevée en  $\text{Al}_2\text{O}_3$  autour de 18 %), le rapport  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$  autour de 0,35 se trouve dans la plage acceptable ensuite des teneurs faibles en  $\text{SO}_3$  et en CaO. Cette argile présente des bonnes perspectives chimiques. L'argile LC présente des propriétés chimiques modérées (teneur élevée en  $\text{Al}_2\text{O}_3$  autour de 18%), le rapport  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$  se trouve dans la plage acceptable, des teneurs faibles en  $\text{SO}_3$  et en CaO mais avec des teneurs élevées en  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ . Ainsi, les argiles YC et LC peuvent être considérées comme des MCS dans la production des ciments LC3 et DLC3.

Les analyses thermogravimétriques ont révélé que l'argile YC complète la déshydroxylation à 574 °C, avec création des phases amorphes et une recristallisation apparaît à 950 °C. Ainsi, la température de 800 °C a été considérée pour l'activation de cette argile.

Les essais sur des mortiers utilisant les différentes formulations de LC3 ou DLC3 ont développé des performances (physiques et mécaniques) conformes à la norme EN 197-1 et presque similaires aux ciments de référence. L'Indice de Développement des Résistances (IDR) par rapport aux ciments de référence est supérieur à 80 %.

Les formulations LC3 (3 -7) et DLC3 qui représentent près de 35 % de substitution du clinker, par rapport à la formulation standard, peuvent être considérés pour la production des ciments de classe de résistance 32.5 tandis que les formulations LC3 (6 - 7), qui représentent 30 % de substitution du clinker, par rapport à la formulation standard, peuvent être considérés pour la production des ciments de classe de résistance 42.5.

Ainsi, la teneur en kaolinite à elle seule ne suffit pas pour déterminer le potentiel d'une argile comme MCS dans la production des ciments portland composés. Il faudra regarder d'autres paramètres comme la présence des autres minéraux argileux ainsi que les phases amorphes. Au regards des résultats, l'argile YC, faiblement kaolinitique est un bon MCS.

## Références

Antoni M., Rossen J., Martirena F. & Scrivener K., 2012. Cement substitution by a combination of metakaolin and limestone. *Cement and Concrete Research*, 42, 1579–1589.

Aparicio P. & Galan E., 1999. Mineralogical interference on kaolinite crystallinity index measurements. *Clays Miner*, 47, 12–27.

Avet F. & Scrivener K., 2018. Investigation of the calcined kaolinite content on the hydration of Limestone Calcined Clay Cement (LC3). *Cem. Concr. Res.*, 107:124–135

Bich C., 2005. *Contribution à l'étude de l'activation thermique du kaolin : évolution de la structure cristallographique et activité pouzzolanique*. Thèse doctorat, Institut National des Sciences Appliquées de Lyon, France, 490 p.

Brigatti M.F., Galán E. & Theng B.K.G., 2013. Structure and Mineralogy of Clay Minerals. In *Handbook of Clay Science*; Bergaya, F., Lagaly, G., Eds. Elsevier. Amsterdam, pp. 21–81.

British Standards EN 196-1, 2005. *Methods of testing cement — Part 1: Determination of strength*, 21 p.

British Standards EN 196-3:2005+A1:2008, 2008. *Methods of testing cement, Part 3 - Determination of setting times and soundness*, 26 p.

British Standards EN 197-1:2000, 2000. *Part 1: Composition, specifications and conformity criteria for common cements*, 27 p.

Cancio D. Y., 2017. Limestone calcined clay cement as a low-carbon solution to meet expanding cement demand in emerging economies. *Development Engineering*, 2, 82–91.

Gartner E.M., 2004. Industrially interesting approaches to "low- $\text{CO}_2$ " cements. *Cement and Concrete Research*, 34, 1489 – 1498.

Gasparini E., Tarantino S.C., Ghigna P., Riccardi M. P., Cedillo-González E. I., Siligardi C. & Zema M., 2013. Thermal dehydroxylation of kaolinite under isothermal conditions. *Applied Clay Science*, 80–81, 417–425.

Lothenbach B., Scrivener K. & Hooton R. D., 2011. Supplementary cementitious materials. *Cement and Concrete Research*, 41(12), 1244–1256. doi.org/10.1016/j.cemconres.2010.12.001.

Onanga G.B., Manuku E. K., Ben Khalifa R., Lofongo D. P. I., Preat A., Nkula V. K. & Osomba D. W., 2023. Production of an eco-cement by clinker substitution by the mixture of calcined clay and limestone, Songololo (DR Congo). *Journal of Geosciences and Environment Protection*, 11, 67-80. DOI: [10.4236/gep.2023.117005](https://doi.org/10.4236/gep.2023.117005)

Scrivener K., 2014. Options for the future of cement. *Indian Concrete Journal*, 88(7), 11-21.

Scrivener K., Martirena K., Bishnoi S. & Maity S., 2018. Calcined clay limestone cements (LC3). *Cement and Concrete Research*, 114, 49–56.

Scrivener K. & Favier A., 2015. *Calcined Clays for Sustainable Concrete*. RILEM Book series, pp. 323–329.

Taylor H.F.W., 1997. *Cement chemistry*. 2<sup>nd</sup> edition, Thomas Telford Publishing, London.

Tironi A., Trezza M. A., Scian A. N. & Irassar E.F., 2012. Kaolinitic calcined clays: Factors affecting its performance as pozzolans, *Construction and Building Materials*. Elsevier, 28, 276–281.

Tironi A., Trezza M. A., Scian A.N. & Irassar E. F., 2013. Assessment of pozzolanic activity of different calcined

clays. *Cem. Concr. Compos.*, 37, 319-327. doi: 10.1016/j.cemconcomp.2013.01.002.

Wilson M. J., 1987. *A Handbook of Determinative Methods in Clay Mineralogy*. Blackie & Son Ltd., London, 308p.

Zunino F. & Scrivener K., 2020. Increasing the kaolinite content of raw clays using particle classification techniques

for use as supplementary cementitious materials. *Constr. Build. Mater.*, 244, 118335. DOI: 10.1016/j.conbuildmat.2020.118335.

Zunino F., Martirena F. & Scrivener K., 2021. Limestone calcined clay cements (LC3). *ACI Materials Journal*, 118(3), 49–60. [doi.org/10.14359/51730422](https://doi.org/10.14359/51730422).