

BETONS ET MORTIERS DE SOUFRE : PROPRIETES ET MISE EN OEUVRE

Par

A. AIT-MOKHTAR, A. TAHAKOURT et M. TEMIMI
Chercheurs, Laboratoire G.T.Ma. I.N.S.A de Rennes

Résumé

Cette étude présente les techniques de fabrication et de mise en oeuvre des bétons et mortiers de soufre, ainsi que leurs propriétés intrinsèques. Celles-ci peuvent se résumer par d'excellentes résistances mécaniques à exploitation rapide. L'utilisation du soufre comme liant est d'intérêts certains : d'une part en complément des liants classiques (ciments et chaux) en cas de production insuffisante de ceux-là, et d'autre part pour assurer sa récupération en tant que déchet industriel.

Mots clés : soufre - béton - mortier - liant - résistance - retrait.

1 INTRODUCTION

Le soufre pourrait être un matériau de construction intéressant pour des pays dont la fabrication de liants classiques (ciments et autres) est absente ou même insuffisante. La rapidité d'obtention des résistances d'utilisation, leur supériorité globale relativement à celles des bétons de ciment et la bonne tenue aux acides sont les principales propriétés qui font de ce type de matériaux une solution intéressante aux problèmes rencontrés dans certaines catégories de constructions (sols d'industries chimiques ou subissant d'intenses sollicitations de contact) [1].

Le but de cette étude est de présenter les propriétés des bétons et mortiers de soufre, les modes de leur fabrication et de mise en oeuvre et quelques techniques d'optimisation de leurs caractéristiques (ajouts de fines et leur influence, ainsi que la minimisation de la quantité de liant).

2 GENERALITES

L'idée d'utiliser le soufre comme matériau de construction est ancienne. Le premier brevet d'emploi du soufre fondu en remplacement du liant (*ciment, chaux, etc.*) a été présenté par Wright (1859), suivi de ceux de Bassett (1865) et de Caduc (1868) [2]. Ce dernier utilisa du sable,

du gravier et du soufre pour réaliser un parement de rue. Vers les années 20, plusieurs autres brevets ont été présentés notamment sur l'utilisation du béton de soufre comme matériau résistant aux acides [3].

2.1 Disponibilité et fabrication du soufre

Le soufre est un des éléments les plus répandus dans la nature, on le trouve soit à l'état libre, soit sous une forme combinée. L'écorce terrestre en contient environ 0,05% de son poids, l'eau de mer de 0,08 à 0,09% provenant de la dissolution des sulfates. Les principaux centres de production (à partir de gisements brutes) dans le monde sont la Sicile, le Texas et le Golfe du Mexique. Il est également présent dans le gaz naturel et le pétrole. Les dispositions anti-pollution adoptées pour les carburants ont entraîné l'extraction du soufre des hydrocarbures par raffinage.

Le soufre est purifié par distillations successives après son extraction, il est commercialisé alors sous forme de blocs solides (*soufre canon*) ou de poudre (*fleur de soufre*). Il trouve de nombreuses applications dans l'agriculture (où il est utilisé comme engrais), les industries chimiques (fabrications de l'acide sulfurique), la médecine et le génie civil.

2.2 Différents états du soufre

L'état du soufre dépend des conditions de température et de pression. Que ce soit à l'état solide, liquide ou gazeux, il est susceptible de se présenter sous diverses apparences. On ne s'intéressera qu'aux variétés dont les propriétés permettent d'expliquer certains comportements des mortiers et bétons de soufre. Dale et Ludwig [4] donnent le diagramme d'équilibre des phases (Figure 1) qui fait apparaître les deux formes allotropiques majeures : S_{α} et S_{β} .

2.2.1 Soufre orthorhombique S_{α} (ou soufre octaédrique)

Stable sous les conditions normales de température et de pression, c'est la forme "naturelle" du soufre : opaque,

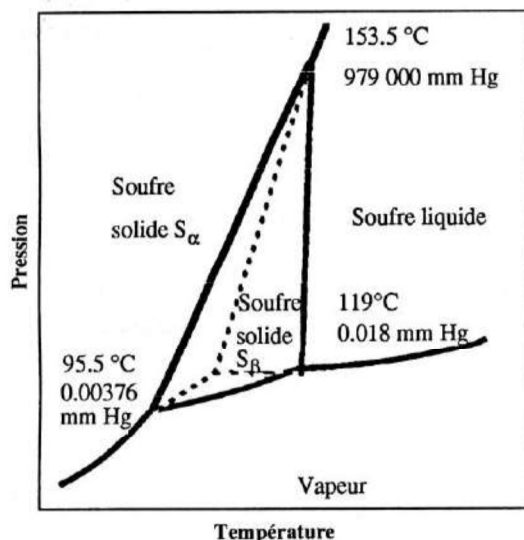


Figure 1 : Diagramme d'équilibre des phases. Les traits discontinus représentent l'équilibre métastable du soufre S_{α} , observé s'il est chauffé rapidement, d'après [4].

de couleur jaune fonçant avec la chaleur, de masse volumique ρ de 2.06 g/cm^3 et de conductivité thermique λ de $0.25 \text{ W/(m.}^\circ\text{C)}$. En chauffant, cette forme passe à la deuxième variété S_{β} à partir de 95°C .

2.2.2 Soufre monoclinique S_{β} (ou soufre prismatique)

Aux conditions normales, cette variété retrouve plus ou moins sa forme initiale S_{α} . Les propriétés du soufre évoluent aussi sous cette forme ($\rho = 1.96 \text{ g/cm}^3$ et $\lambda = 0.17 \text{ W/(m.}^\circ\text{C)}$) : elles sont légèrement inférieures à celles du soufre orthorhombique. Pur, le soufre S_{β} a un point de fusion "idéal" à 119°C .

2.2.3 Soufre liquide

Comme le montre la figure 2, le soufre fond à partir de 120°C et donne un liquide jaune clair, fluide, qu'on appelle

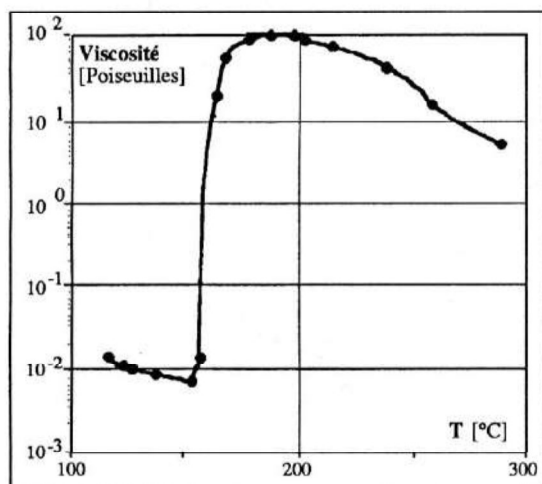


Figure 2 : Viscosité du soufre liquide en fonction de la température.

le soufre S_{λ} . Sa viscosité à cette température est supérieure d'environ 11 fois celle de l'eau, elle augmente brusquement à 160°C et diminue vers 240°C jusqu'à la température d'ébullition (445°C).

3 LES MATERIAUX DE BASE

Comme pour les bétons et mortiers de ciment, les résistances mécaniques de ceux du soufre sont étroitement liées aux caractéristiques des granulats (nature, forme, granulométrie...) et à la proportion de soufre servant de liant. Il est à noter que les granulats utilisés pour ce type de matériaux sont strictement les mêmes que ceux des bétons et mortiers "classiques" ; avec cependant, un ajout d'éléments fins en proportions étudiées pour optimiser la compacité et, par conséquent, les résistances. Dans l'étude présentée les essais ont été réalisés sur des éprouvettes de mortier.

3.1 Le granulat

Il est bien connu que les résistances d'un matériau et son aspect sont tributaires pour une part de sa compacité. Aussi, plus le volume des vides du granulat est important, plus la quantité de liant (dans notre cas de soufre) à utiliser doit être conséquente afin d'occuper ces vides. Seulement, on a tout aussi intérêt économiquement à limiter cette dernière, d'où l'avantage d'une granulométrie continue et variée. C'est dans cet esprit qu'un ajout d'éléments fins est effectué, ce sont soit des pyrites, soit des poussières de concassage [5,6,7]. Des études ont été réalisées au laboratoire G.T.Ma. afin d'optimiser la proportion des fines au regard des résistances. La méthode retenue, dite "de compacité maximale", est exposée ci-dessous.

3.2 Mise au point du mélange

En plus d'un maximum de compacité recherché, l'objectif est également l'obtention d'une ouvrabilité suffisante pour un moulage correct du matériau. La méthode de la compacité maximale consiste à rechercher les proportions optimales des éléments constituant le mélange de granulats correspondant à un maximum de compacité ; cette dernière étant le rapport entre les densités apparente et réelle du mélange sec vibré.

Pour un béton composé de plusieurs classes granulométriques (cas général), la composition correspondant à la compacité maximale s'obtient par recherches successives des compacités maximales de mélanges intégrant une à une les classes granulométriques par ordre décroissant de diamètre. Autrement dit, pour le cas d'un granulat composé d'un gravier, d'un sable et de fines, on a les étapes :

- détermination des proportions des éléments correspondant à une compacité maximale pour le mélange "gravier et sable".
- réalisation de la même opération en rajoutant les fines, c'est-à-dire pour le mélange (gravier + sable) et fines.

3.3 Détermination de la quantité de soufre

Il existe de même pour le liant (soufre) une proportion optimale donnant les meilleures résistances. Des études

[5,8] montrent que cette proportion varie entre 20 et 30% du poids du mélange total en fonction des caractéristiques des granulats. On étudiera alors la proportion optimale correspondant à la confection d'un mortier composé d'un sable 0 - 5 mm et de poussières de concassage servant de fines.

4 FABRICATION, MISE EN OEUVRE ET ESSAIS

Afin d'avoir la meilleure ouvrabilité du soufre, la condition à respecter est la réalisation du mélange dans une plage de température comprise entre 120°C et 160°C. Historiquement, les premières bétonnières utilisées avaient des parois chauffées par des brûleurs à gaz. Cependant, ce système présente des difficultés de régulation de température, entraînant des surchauffes locales qui provoquent l'inflammation du soufre. Ceci a conduit à l'élaboration au laboratoire G.T.Ma d'un malaxeur doté d'une régulation thermique électronique schématisée par la figure 3.

L'introduction des constituants peut se faire par l'un des procédés suivants :

- mélange "granulats + soufre" à froid puis chauffage,
- chauffage séparé des granulats et du soufre puis mélange et malaxage à chaud,
- chauffage des granulats jusqu'à 150°C, puis ajout du soufre en poudre.

4.1 Fabrication des éprouvettes et conservation

Les granulats préalablement séchés et chauffés à 140°C sont introduits dans le malaxeur maintenu à cette même température. Le soufre en poudre est alors ajouté par petites quantités afin d'éviter la formation de grumeaux. Après un malaxage analogue à celui des bétons de ciment, le mélange est coulé dans des moules métalliques de 4 x 4 x 16 cm chauffés à 140°C afin de permettre un meilleur remplissage [8]. Suite à une vibration de 20 secondes, les éprouvettes se refroidissent à l'air ambiant et sont démoulées après 24 heures. Leur conservation se fait dans une salle régulée (20 °C et 50 % d'humidité relative).

4.2 Mise en oeuvre à l'échelle industrielle

Le processus est légèrement simplifié dans le cas d'une fabrication pour chantiers. Les granulats sont chauffés tels qu'ils puissent faire fondre le soufre dans le malaxeur. Etant donné leurs caractères similaires, la mise en oeuvre industrielle ferait appel à une installation équivalente à celle utilisée pour la production d'enrobés bitumineux.

4.3 Essais

Les essais visent l'étude de deux paramètres : d'abord la détermination de la quantité de soufre permettant d'avoir les résistances optimales, vient ensuite l'étude de l'influence de la proportion des fines sur les propriétés du matériau.

Des essais de variations dimensionnelles et pondérales, et de résistances mécaniques sont effectués au cours du temps sur un minimum de trois éprouvettes par type d'essai.

5 RESULTATS ET DISCUSSIONS

5.1 Etude de la quantité de soufre optimale

L'utilisation de la méthode de la compacité maximale pour le mélange sable 0 - 5 mm et fines (poussières de concassage) donne un granulat composé de 80% de sable et 20% de fines. Quant au soufre, compte tenu de la plage de proportion évoquée, les pourcentages étudiés sont 21, 23, 24 et 25% du mélange total. Tous les pourcentages sont des proportions pondérales.

5.1.1 Retraits et pertes de poids

Notons que, d'après les figures 4a et 4b, la majeure partie du retrait du mortier de soufre se fait au cours des deux premières heures suivant le moulage des éprouvettes, c'est-à-dire au cours du refroidissement du mortier. A partir d'un jour, on observe une stabilité dimensionnelle qui peut

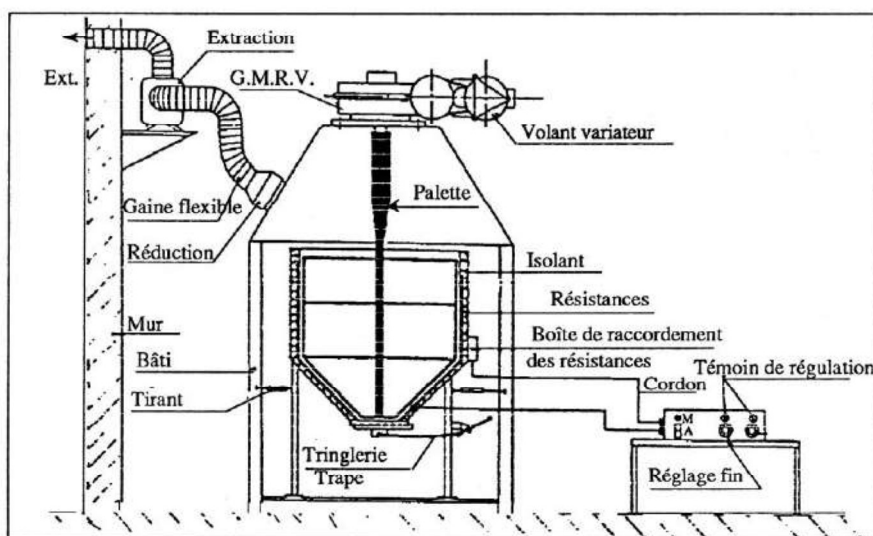


Figure 3 : Schéma du malaxeur chauffant.

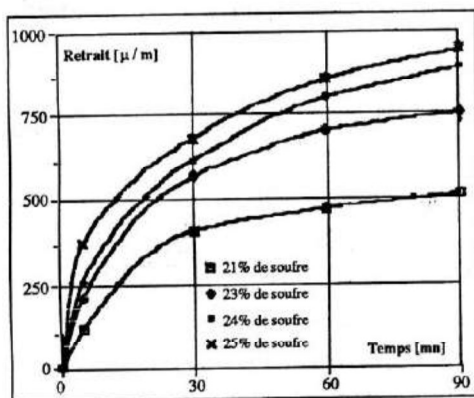


Figure 4a : Retraits en fonction du temps (juste après fabrication).

s'expliquer par le fait que le mortier, ne contenant pas d'eau, ne pourrait présenter de variations dimensionnelles après la recristallisation du soufre sous sa variété allotropique stable S_{α} . Dès lors, il devient compréhensible que plus la quantité de soufre contenue dans le mortier est grande, plus les retraits correspondants sont importants.

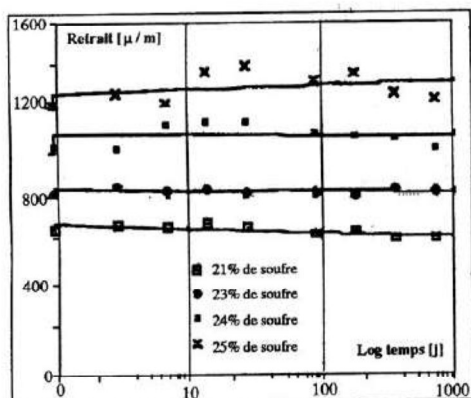


Figure 4b : Retraits en fonction du temps (à long terme).

Pour les mêmes raisons que précédemment, nous n'avons pu enregistrer de variations pondérales. Les mesures réalisées ne présentent pas de valeurs significatives, tant les quelques écarts observés ne relèvent que des imprécisions de mesure et de quelques effritements mineurs des éprouvettes.

5.1.2 Résistances mécanique

Les figures 5a et 5b montrent que les résistances à la traction par flexion et à la compression s'obtiennent dès le démoulage des éprouvettes 24 heures après leur fabrication, c'est l'un des avantages de ce type de matériaux. Au delà, on observe une quasi stabilité des résistances à la compression et une légère croissance pour celles à la traction par flexion jusqu'à 3 jours d'âge. Quant aux résistances optimales, aussi bien à la compression qu'à la traction par flexion, elles sont obtenues par le mélange contenant 24% de soufre.

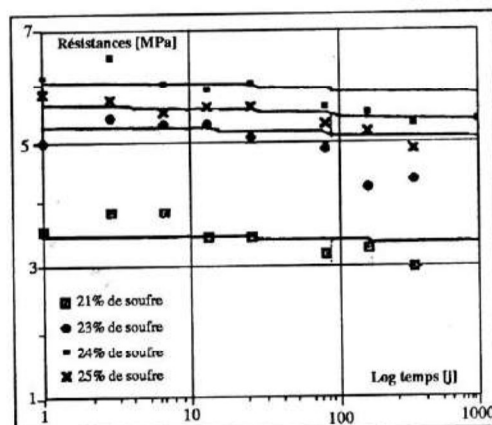


Figure 5a : Résistances à la traction par flexion en fonction du temps.

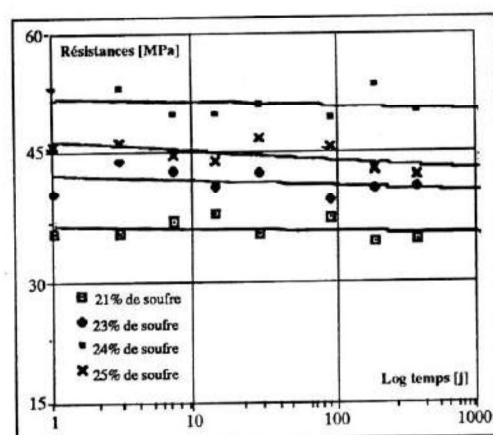


Figure 5b : Résistances à la compression en fonction du temps.

Ainsi, ce qui vient d'être présenté résume la démarche à suivre pour l'obtention d'une composition optimale d'un mortier (béton) de soufre. Cependant, comme la proportion de chaque élément entrant dans cette composition a son influence, et que celle de l'ajout de fines semble prépondérante, il devient intéressant d'étudier l'influence de leur ajout sur les propriétés globales du matériau.

5.2 Influence de l'ajout des fines

Il est vrai que les dosages des éléments sont interdépendants, néanmoins on fixera ici la quantité de soufre à 24% du mélange total et l'on fera varier la proportion de fines dans le granulat. Celui-ci se composera alors successivement de :

Sable (%)	100	90	80	70
Fines (%)	0	10	20	30

Le mélange sans fines se moule avec quelque difficulté, il présente en outre une porosité que la quantité de soufre n'arrive pas à combler. Pour celui à 30% de fines, la proportion de celles-ci tend à provoquer un excès de plasticité.

5.2.1 Retraits

Les résultats obtenus ne présentent pas de variations importantes entre les différents mélanges (Figures 6a et 6b). Il est à signaler cependant que les retraits minimaux sont enregistrés pour le mélange à teneur en fines correspondant à un maximum de compacité pour le granulat. Cette observation peut s'expliquer par le fait qu'étant de meilleure compacité, le matériau conserve mieux ses dimensions initiales ; contrairement au cas où la présence de pores lui permet de se "contracter" avec moins de contraintes. Cette contraction est bien entendu due à la recristallisation du soufre.

Ainsi, se joint une autre qualité confirmant le choix de la méthode de la compacité maximale pour la confection d'un matériau performant.

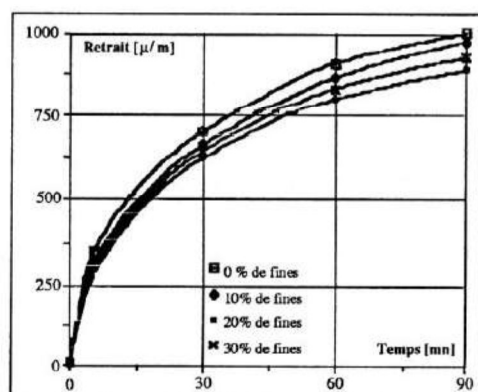


Figure 6a : Retraits en fonction du temps (juste après fabrication).

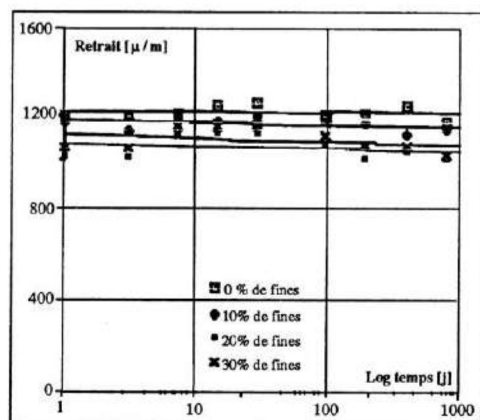


Figure 6b : Retraits en fonction du temps (à long terme).

5.2.2 Résistances mécaniques

La comparaison des figures 7a et 7b montre que les résistances à la compression sont légèrement plus stables au cours du temps. Aussi bien en traction par flexion qu'en compression, il est remarqué une nette faiblesse des valeurs des résistances du mélange sans fines. Jusqu'à 10% de ces dernières dans le granulat, on observe un accroissement rapide des résistances, se modérant au delà, pour atteindre

des valeurs optimales à 20%, proportion correspondant au maximum de compacité.

Ceci met en lumière l'influence des fines sur les performances mécaniques du matériau et confirme, là encore, la supériorité du mélange dont le dosage en granulats est basé sur la méthode de la compacité maximale.

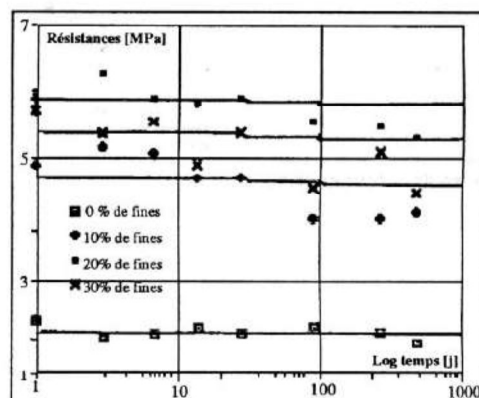


Figure 7a : Résistances à la traction par flexion en fonction du temps.

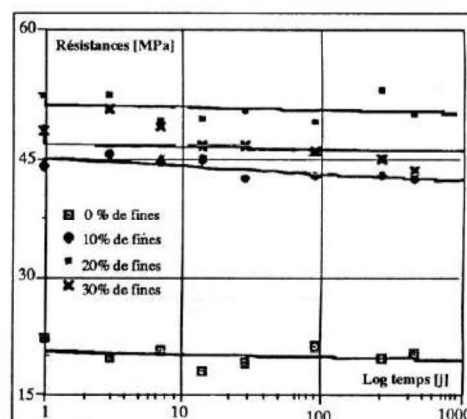


Figure 7b : Résistances à la compression en fonction du temps.

6 CONCLUSIONS

A travers les résultats obtenus, on peut noter les propriétés physiques positives des bétons et mortiers de soufre. Les valeurs obtenues pour les retraits sont globalement équivalentes à celles des bétons et mortiers de ciment, quant aux résistances, elles sont nettement supérieures. Indéniablement, c'est là l'un des avantages de ce type de matériaux, hormis celui que constitue l'obtention rapide de ces dernières (1 à 3 jours). En considération des autres caractéristiques : résistances aux acides et à l'usure notamment, l'éventail de l'utilisation de ce matériau ne peut s'en trouver qu'élargi. A ce propos, ces propriétés feront l'objet d'un éventuel prochain article.

Toutefois, il est à noter que la mise en œuvre est quelque peu délicate au regard de celle des bétons classiques.

Son utilisation appropriée (revêtement de sols industriels, de réseaux de canalisation, ...) demeure cependant viable et d'intérêt certain ⑥

BIBLIOGRAPHIE

- [1] Commission des sols industriels de C.E.G.O.S: "*Méthode de choix des sols industriels*". Edition d'information 567-18-4.
- [2] B. Meyer : "*Sulfur containing materials. Sulfur, energy and environment*". Elsevier Scientific Publishing Company 1977, pp. 308-320.
- [3] W.M. Kobbe : "*New uses for sulfur industry*". Industrial and engineering chemistry, 1924. Vol. 16, n°10, pp. 1026-1028.
- [4] J.M. Dale et A.C. Ludwig : "*Mechanical properties of sulfur allotropes*". Materials research and standards. Vol.5, August 1965, pp.411-417
- [5] H.C. Razafinjoelina : "*Les mortiers de soufre : Propriétés anti-acides*". Thèse de Docteur-Ingénieur, INSA Rennes 1985.
- [6] A. Aït-Mokhtar : "*Analyse de l'adhérence béton de soufre- béton de ciment*". Mémoire de DEA, INSA Rennes 1987.
- [7] A. Tahakourt : "*Amélioration de la tenue à l'eau des mortiers de soufre avec pyrites*". Mémoire de DEA, INSA Rennes 1987.
- [8] A. Roux : "*Influence des fines sur les mortiers de soufres*". Thèse de 3ème cycle, INSA Rennes 1982.