

Etude des isothermes de sorption d'un agromatériau à base de chanvre-amidon

Chadi MAALOUF*, Tala MOUSSA, Benitha Sandrine UMURIGIRWA, Mohammed LACHI, Ton Hoang MAI

Laboratoire de Thermomécanique, GRESPI, Faculté des Sciences, Moulin de la Housse, 51100 Reims.

*(auteur correspondant : chadi.maalouf@univ-reims.fr)

Résumé A l'issue du Grenelle de l'environnement, atteindre 10% de matériaux bio-ressourcés dans le secteur du bâtiment hors bois d'œuvre, fait partie des objectifs fixés d'ici 2020. Parmi ces matériaux bio-ressourcés, le béton de chanvre en fait partie. Il est apprécié principalement pour ses qualités: régulateur hydrique, isolant thermique et acoustique, béton léger etc... Le béton de chanvre est utilisé pour l'enveloppe du bâtiment en tant que matériau de remplissage avec une structure porteuse en bois de préférence.

Dans cette étude, on s'intéresse aux isothermes de sorption d'un agro matériau à base de chanvre-amidon. Deux compositions sont étudiées: la première à base des fibres de chanvre brut dans un liant à base d'amidon de blé et la deuxième composition à base de fibres de chanvre traitées dans un liant à amidon de blé également, le traitement des fibres ayant pour but d'améliorer les propriétés d'adhésion de la matrice. Les courbes d'adsorption sont déterminées par la méthode gravimétrique, dans des dessiccateurs et pour des températures de 15°C et 23°C. Elles sont lissées par des modèles analytiques (modèle de Merakeb, GAB et Van Genuchten). La courbe de désorption est aussi déterminée pour une température de 23°C. Un phénomène d'hystérésis est bien illustré surtout pour les fibres traitées.

Mots clés : Chanvre, amidon, sorption, expérimental, humidité.

Nomenclature

a	paramètre
b	paramètre
E	déviati on relative moyenne
g	accélération de pesanteur m^2/s
u	teneur en eau Kg/Kg
M_u	teneur en eau Kg/Kg
M	masse molaire Kg/mol
R	constante des gaz parfait, $J/mol.K$
$RMSE$	Erreur moyenne
T	température, $^{\circ}K$

Symboles grecs

φ Humidité relative

Indices et exposants

l eau

s saturation

1. Introduction

Pour assurer le confort dans un bâtiment, l'humidité relative de l'air avoisinant est un facteur important. L'utilisation d'un matériau régulateur d'humidité est un moyen efficace pour stabiliser l'humidité ambiante sans consommer de l'énergie et assurer ainsi un niveau de confort satisfaisant. Les matériaux de construction qui absorbent et libèrent l'humidité peuvent être utilisés pour réduire de manière positive les écarts extrêmes entre les niveaux d'humidité au sein de la paroi. Les bétons de chanvre en général font partie de ces matériaux et ils sont réputés pour leurs performances hygrothermiques.

Le béton de chanvre est fabriqué à base d'un liant qui peut être d'origine minérale tel que la chaux ou le ciment ou végétale tel que l'amidon. Ce matériau de construction est utilisé pour concevoir des panneaux ou bien des parois par moulage de blocs, coulage ou pulvérisation [1]. Plusieurs travaux effectués sur le béton de chanvre-chaux montrent que ce matériau a des performances intéressantes du point de vue isolation thermique, acoustique et se présente comme un excellent régulateur d'humidité [2,3]. Ces performances sont liées à sa porosité très élevée et essentiellement « ouverte » [4]. En revanche, l'utilisation d'une matrice minérale contribue à l'épuisement des ressources naturelles par le processus d'extraction des matières premières. Dans le cadre du développement durable, concevoir un matériau 100% végétal tel que le béton de chanvre-amidon paraît intéressant pour l'avenir. A ce jour, les travaux publiés dans la littérature concernent les propriétés mécaniques de ce matériau pour différentes formulations de chanvre et d'amidon [5,6].

Dans cet article, les auteurs présentent et analysent les isothermes de sorption de ce matériau pour 15°C et 23°C. Deux types de chènevotte sont utilisés de la chènevotte brute et de la chènevotte traitée chimiquement afin d'améliorer l'adhérence entre la chènevotte et la matrice polymère.

2. Matériaux

Le chanvre est une plante qui pousse dans les climats tempérés sans engrais ni traitements. Un granulât végétal appelé « chènevotte » est extrait à partir de la tige de chanvre (Aube, France). La chènevotte utilisée dans ce travail s'appelle «KANABAT» et provient de la

chanvrière de l'Aube. Elle se présente sous forme de fibres dont la taille varie de 5 à 20 mm. Afin d'améliorer l'adhérence entre les fibres et la matrice polymère à base d'amidon de blé, les fibres ont subi un traitement de surface à base de NaOH et ensuite traitées avec un agent de couplage silane pour améliorer la matrice [7]. L'amidon de blé utilisé provient de la société Chamtor (Pomacle, France). Il a été conservé dans une chambre climatisée à 23°C et 50 % d'humidité relative. Il est dissout dans de l'eau chauffée et forme un liant par un processus irréversible de gélatinisation provoqué par le gonflement des granules. Le liant rapproche les fibres entre elles et stabilise la structure composite afin d'assurer la transmission des forces de cisaillement dans le composite. La formulation utilisée est donnée dans la référence [8].

3. Isothermes de sorption : Méthode expérimentale

Un matériau présentant une porosité dite « ouverte » tel que le béton de chanvre, a la capacité d'échanger de l'humidité relative avec l'air ambiant. Lorsque l'humidité relative de l'air augmente à la surface du matériau elle entraîne une augmentation de la masse apparente et cette prise de masse est due au phénomène d'adsorption physique qui permet de fixer les molécules d'eau à la surface des pores d'une façon réversible. De même, une diminution d'humidité de l'air environnant entraîne une perte de masse apparente et c'est le phénomène de désorption. L'adsorption se décompose en trois phases : adsorption monomoléculaire, adsorption polymoléculaire et la condensation capillaire. Ces trois phases permettant de décrire le comportement du matériau à l'échelle microscopique proposé par [3].

Les essais de sorption sont menés en respectant la norme NF EN ISO standard 12572: 2000 [9]. Ils permettent de tracer la courbe de sorption représentant pour une température donnée, la variation de la teneur en eau du matériau en fonction de l'humidité relative de l'air ambiant. Celle-ci est définie par :

$$w = \frac{m - m_0}{m_0} \quad (1)$$

Avec m_0 la masse de l'échantillon à l'état sec. Le point de départ de la courbe de sorption correspond à la masse sèche des échantillons. Ils sont placés à l'intérieur d'un dessiccateur contenant du chlorure de calcium anhydre créant 0 % d'humidité relative, puis l'ensemble est placé dans une enceinte climatique Binder MKF 720 maintenue à 23°C, jusqu'à ce que l'équilibre hygroscopique soit atteint. L'échantillon est considéré en équilibre une fois que la masse de l'échantillon présente une variation inférieure à 1% de la masse totale, sur trois pesées successives, effectuées à 24 heures d'intervalle. Après chaque pesée des échantillons, nous avons réalisé le vide d'air à l'intérieur du dessiccateur à l'aide d'une trompe à eau puis le dessiccateur est replacé dans l'enceinte climatique. Le chlorure de calcium est régénéré à 250 °C avant son utilisation et pendant deux heures.

Après avoir trouvé le point initial de la courbe, les échantillons sont ensuite placés à des humidités relatives de 20% ; 33 % ; 53 %, 75 % ; 84% ; 94 % et 97% en adsorption et en désorption. La Figure 1a montre les échantillons étudiés et la Figure 1b montre l'enceinte climatique utilisée pour les mesures.



Figure 1: (a) Photographie des échantillons, (b) Enceinte climatique Binder MKF 720.

4. Résultats

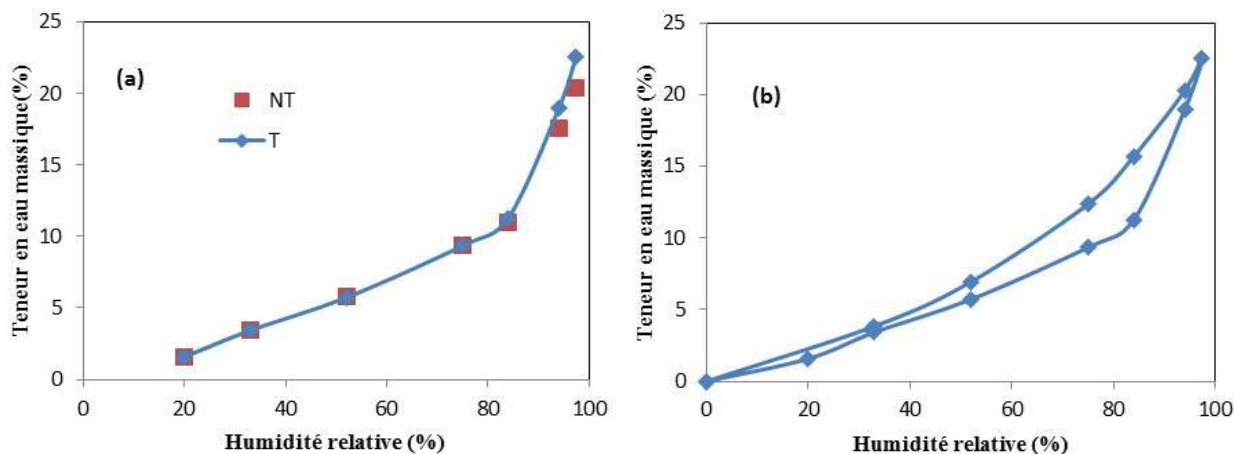


Figure 2 : Isotherme d'adsorption et de désorption du béton de chanvre amidon à 23°C : 2a courbes d'adsorption pour les échantillons traités et non traités 2b les courbes d'adsorption et de désorption pour les échantillons traités.

La Figure 2a montre la courbe d'adsorption pour les échantillons traités (T) et non traités (NT). On remarque que le traitement de la chènevotte n'a pas d'impact sur la teneur en eau du matériau sauf pour les humidités relatives élevées où la chènevotte traitée semble retenir plus de l'eau. Ceci est dû au traitement silane qui est hydrophile. Les isothermes obtenues pour les deux compositions présentent une sigmoïde de type 2 selon la théorie de Brunauer, Emmett et Teller (BET), typique pour les matériaux cellulosiques [10-12] et de type II d'après la classification IUPAC [13].

La relation entre la teneur en eau et l'humidité relative est une fonction non-linéaire. Pour les humidités relatives faibles et moyennes, la teneur en eau augmente légèrement. A titre de comparaison, à 53 % d'humidité relative, la teneur en eau est de 5,7 % pour le chanvre-amidon traité et 5,8 % pour le chanvre-amidon brut. Pour les humidités relatives élevées, nous constatons une forte augmentation de la teneur en eau jusqu'à 19% pour le chanvre-amidon traité à 94 % d'humidité relative contre 17,6 % pour le chanvre-amidon brut.

La Figure 2b montre la courbe d'adsorption et de désorption pour le chanvre-amidon traité. On remarque l'existence d'un phénomène d'hystérésis dont la valeur à une humidité relative

donnée représente la différence entre la teneur en eau de la courbe de désorption et celle de la courbe d'adsorption. Ce phénomène est lié à l'effet de la « bouteille d'encre » [14] se produisant dans les pores ainsi qu'à la différence de mouillabilité des pores en adsorption et désorption évoqué par [15]. Ce phénomène est moins important pour la chènevotte brute dont la courbe de désorption n'a pas été présentée.

La Figure 3 montre la courbe d'adsorption en fonction de la température pour les échantillons traités (T) et non traités (NT). Pour les deux cas, lorsque la température augmente de 15°C à 23°C, la teneur en eau dans le matériau diminue. L'augmentation de la température entraîne l'augmentation de la pression de la vapeur dans le matériau ce qui favorise le transfert de l'eau du matériau vers l'ambiance.

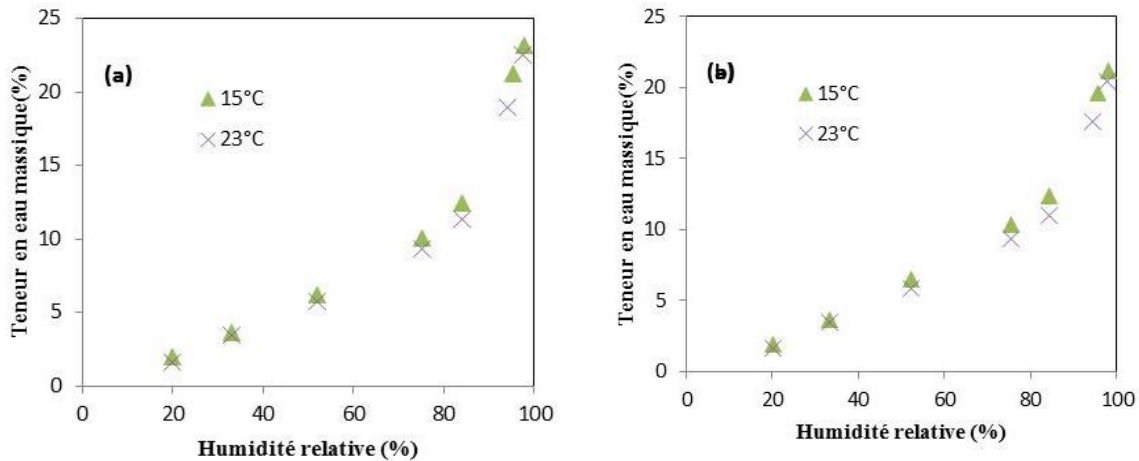


Figure 3 : Isotherme d'adsorption du béton de chanvre amidon à 15°C et à 23°C : 3a courbes d'adsorption pour les échantillons traités 3b les courbes d'adsorption pour les échantillons non traités.

5. Modélisation et analyse des données expérimentales

Trois modèles sont utilisés pour modéliser les isothermes de sorption : Le modèle GAB, le modèle de Van Genuchten et celui de Merakeb [16]. Ce dernier a été choisi puisqu'il est basé sur une approche thermodynamique et semble être adapté aux matériaux cellulosiques. Les équations de ces modèles et leurs paramètres sont donnés dans le *Tableau 1*. Les données expérimentales sont ajustées aux modèles en utilisant la méthode des moindres carrés. Le coefficient de détermination, R^2 , est calculé pour donner une mesure de la proportion de la variabilité attribuée au modèle. En plus de R^2 , deux autres critères sont utilisés pour évaluer la qualité de l'ajustement de chaque modèle l'écart relatif moyen, E et l'erreur quadratique moyenne RMSE dont les formules sont données par :

$$E = \frac{100}{N} \sum_{i=1}^n \frac{|m_e^i - m_p^i|}{m_e^i} \quad (2)$$

$$RMSE = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (m_e^i - m_p^i)^2}{N}}$$

Où m_e est la valeur expérimentale, m_p est la valeur estimée par le modèle et N le nombre totale des valeurs expérimentales. Une valeur de l'écart relatif moyen ne dépassant pas 10 % indique un bon ajustement entre les valeurs expérimentales et analytiques. D'ailleurs, plus les valeurs de E et RMSE sont faibles, mieux est la qualité de l'ajustement.

<i>Modèle</i>	<i>Equation</i>	<i>Paramètres</i>
Merakeb	$\ln\left(\frac{u}{u_s}\right) = a \ln(\phi) \exp(b\phi)$	a, b, u_s
GAB	$u = \frac{M_0 C K \phi}{(1 - K\phi)[1 - K\phi + C K \phi]}$	C, K, M_0
Van Genuchten (VG)	$u = u_s \left(1 + \left \alpha_{ads} \frac{RT}{M_l g} \ln \phi \right ^{\eta_{ads}}\right)^{-\left(1 - \frac{1}{\eta_{ads}}\right)}$	$u_s, \alpha_{ads}, \eta_{ads}$

Tableau 1: Modèles mathématiques utilisés pour les isothermes de sorption.

<i>Echantillons</i>			
<i>Modèle</i>	<i>Paramètres</i>	<i>Traité (T)</i>	<i>Non Traité (NT)</i>
Merakeb	a	1,155	1,144
	b	1,436	1,275
	u_s	0,253	0,224
	R^2	0,9979	0,9977
	E(%)	8,160	7,737
	RMSE	0,357	0,337
GAB	C	3,136	3,183
	K	0,855	0,822
	M_0	0,038	0,043
	R^2	0,998	0,998
	E(%)	8,960	6,557
	RMSE	0,519	0,272
Van Genuchten (VG)	α_{ads}	0,0008	0,0006
	η_{ads}	1,750	1,770
	u_s	0,234	0,207
	R^2	0,995	0,994
	E(%)	11,962	11,905
	RMSE	0,523	0,540

Tableau 2: Valeurs des paramètres pour l'isotherme de sorption pour les T et NT à 23°C.

Les tableaux 2 et 3 montrent les valeurs des paramètres des différents modèles utilisés pour des températures de 15 et 23°C. Les modèles de GAB et de Merakeb sont plus capables de prédire la teneur en eau dans le chanvre amidon puisque leur écart relatif moyen reste inférieur à 10% à 15 et à 23°C. Les valeurs expérimentales ainsi que les valeurs lissées du modèle GAB et celui de Merakeb sont tracées dans la figure 4 pour 15 et 23°C.

<i>Echantillons</i>			
<i>Modèle</i>	<i>Paramètres</i>	<i>Traité (T)</i>	<i>Non Traité (NT)</i>
Merakeb	a	1,71	1,085
	b	1,504	1,247
	u_s	0,256	0,225
	R^2	0,995	0,994
	E(%)	6,891	6,805
	RMSE	0,495	0,484
	C	4,412	3,479

GAB	K	0,850	0,802
	M_0	0,0409	0,0484
	R^2	0,996	0,995
	E(%)	5,376	5,772
	RMSE	0,457	0,443
Van Genuchten (VG)	α_{ads}	0,0008	0,0006
	η_{ads}	1,734	1,754
	u_s	0,237	0,210
	R^2	0,995	0,992
	E(%)	9,828	11,460
	RMSE	0,522	0,6002

Tableau 3: Valeurs des paramètres pour l'isotherme de sorption pour les T et NT à 15°C.

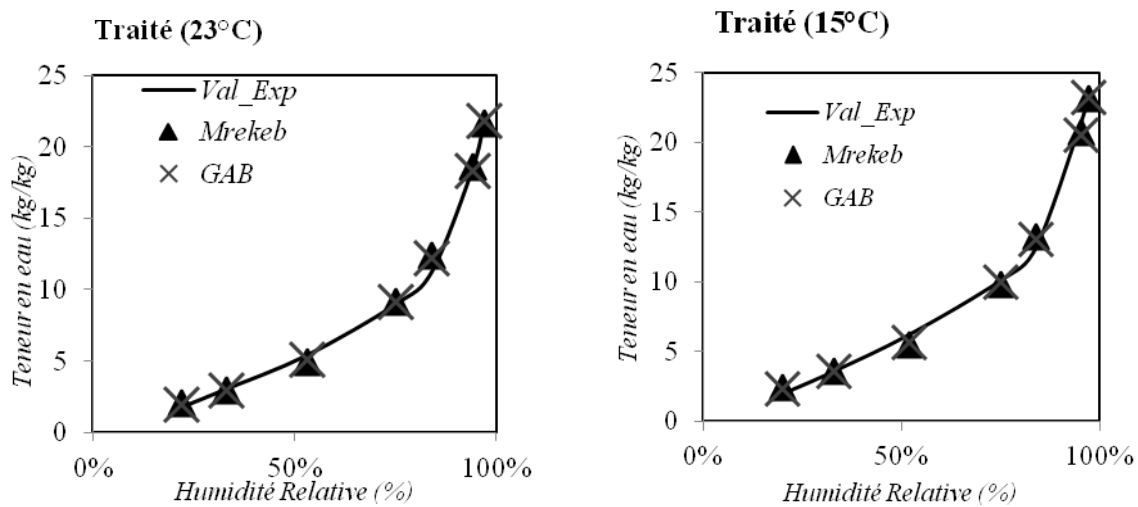


Figure 4 : Isothermes de sorption à 23°C pour le composite chanvre-amidon traité à 15 et 23°C.

Pour le modèle GAB, la teneur en eau de la couche monomoléculaire varie de 3,8 à 4,09% et de 4.3 à 4.84% lorsque la température varie de 23 à 15°C pour les échantillons traités et non traités respectivement. La valeur du paramètre C est supérieure à 2 pour tous les cas confirmant que la forme de la courbe est de forme sigmoïde [17].

6. Conclusion

Dans cet article les isothermes de sorption d'un agro-matériau à base de chanvre amidon sont présentées pour des températures de 15 et 23°C. Un phénomène d'hystérésis est présent entre les courbes d'adsorption et de désorption. Les valeurs expérimentales ont été modélisées. Le modèle GAB et celui de Merakeb sont capables de prédire la teneur en eau dans ce type de matériau. Les mesures actuelles en cours vont permettre de mesurer l'isotherme de sorption à 30°C pour ensuite calculer les chaleurs de sorption isostériques à l'aide de l'équation de Clausius Clapeyron.

7. Références

- [1] S. Andy, M. Lawrence, P.Walker, Hygrothermal performance of an experimental hemp-lime building, *Construction and building materials* 36, (2012), 270-275.
- [2] A.Korjenic, V. Petrànek, J. Zach, J. Hroudová, Development and performance evaluation of natural thermal-insulation materials composed of renewable resources, *Energy and Buildings*, 43, (2011), 2518-2523.
- [3] F. Collet, S. Pretot, Experimental investigation of moisture buffering capacity of sprayed hemp concrete, *Construction and building materials*, 36, (2012), 58-65.
- [4] A. Evrard, A. De Herde, Bioclimatic envelopes made of lime and hemp concrete, *In CISBAT*, (2005), 25-30, Lausanne, Suisse.
- [5] G. Balčiūnas, S. Vėjelis, S. Vaitkus, S and A. Kairyte , Physical properties and structure of composite made by using hemp hurds and different binding materials, *Procedia engineering*, 57, (2013), 159-166.
- [6] A.T. Le, A. Gacoin, A. Li, T.H. Mai, M. Rebay, Y. Delmas, Experimental investigation on the mechanical performance of starch–hemp composite materials, *Construction and Building Materials* 61 (2014) 106–113.
- [7] B.S. Umurigirwa, L. Tigzer, P. Dony, T.H. Mai et C. Maalouf, Influence of chemical treatments on the properties of green composites based on hemp fibers and starch, *6th international wood fibre polymer composites symposium*, September 23-24, (2013), Biarritz.
- [8] B.S.Umurigirwa, A. Gacoin, A. Li, C. Maalouf, T.H. Mai et M. Rebay, Etude expérimentale du béton de chanvre à base d'amidon, XXX^{èmes} Rencontres AUGC/IBPSA, 6-8 Juin, (2012) Chambery.
- [9] AFNOR, Hygrothermal performance of building materials and products, Determination of hygroscopic sorption properties, *NF EN ISO standard 12572*, (2001).
- [10] G.S.Park, Transport Principles—Solution, Diffusion and Permeation in Polymer Membranes. *NATO ASI Series*, Volume 181, (1986), 57-107.
- [11] S.Alix, et al., Effect of chemical treatments on water sorption and mechanical properties of flax fibres. *Bioresour. Technol.*, 100 (20), (2009), 4742–4749.
- [12] A. Celino, S. Freour, S. Jacquemin, F &P. Casari, The hygroscopic behavior of plant fibers: a review. *Frontiers in Chemistry*, 1 (43), (2014), 1-12.
- [13] K.S. Sing, W. et al., Reporting physisorption data for gas/solid systems with special reference to the determination of surface to the determination of surface area and porosity, *Pure and Applied Chemistry*, 57 (4), (1985), 603-619.
- [14] J.F. Daian, Processus de condensation et de transfert d'eau dans un matériau méso et macroporeux. Etude expérimentale du mortier de ciment, s.l.: Thèse de doctorat, Université de Grenoble : USTMG/INPG, (1986), 329.
- [15] C.A. Leon y Leon, New perspectives in mercury porosimetry, *Advances in Colloid and Interface science*, Volume 76-77, (1998), 341-342.
- [16] S. Merakeb, F. Dubois, C. Petit, Modeling of the sorption hysteresis for wood, *Wood Science Technology*, 43, (2008) 575-589.
- [17] S.K. Bajpai, N. Chand, R. Lodhi, Moisture sorption isotherms and heat of sorption of sago starch films, *As. J. Food Ag-Ind.*, 4 (04), (2011), 233-246