

Effect of Addition of PET in the Thermal Properties of Polymer-Mortar Composite Materials

A. S. Benosman^{1,2,3}, M. Mouli², H. Taïbi¹, M. Belbachir¹, Y. Senhadji², I.M. Bahlouli¹, D. Houivet⁴

¹Faculty of Science, Laboratory of Polymer Chemistry, University of Oran Es-Senia, Oran 31000; Algeria.

²Civil Engineering Department, Laboratory of Materials LABMAT, ENPO, Oran 31000, Algeria.

³Department of Chemistry, EPST Tlemcen, BP 165 RP, Bel- Horizon, Tlemcen 13000, Algeria.

⁴University of Caen Basse-Normandie, Laboratory of LUSAC EA 2607, Cherbourg Octeville, French.

Abstract. The polymer-mortar composites are often used as low-cost promising materials for preventing or repairing various reinforced concrete structures. The Thermal behavior of the building materials is relevant to any use of concrete or composite, especially in relation to structures where it is desirable to have low thermal conductivity, dimensional stability, high specific heat and little or no decrease of stiffness upon heating. Although much work has been done on the effect of admixture and the mechanical properties of concrete or composite, relatively little work has been done on the thermal conductivity. So, Thermal conductivity (λ), thermal resistance (R) and the surface coefficients of transmission (U) of polymer-mortar composites made up of mixtures of polyethylene terephthalate PET waste were measured. To determine the effect of the PET on the thermal conductivity of PET-mortar composites, PET was added as replacement for cement by decreasing the cement weights in the ratios of 2.5%, 5% and 7.5% by weight. The highest thermal conductivity of 1.45 W/mK was observed with the samples containing only plain cement. It decreased with the increase of PET as replacement for cement. The lowest value of thermal conductivity and the surface coefficient of transmission were obtained with the samples prepared with PET waste polymer at 7.5 % replacement of cement. The composites were also observed by DTA, MOP led to the positive identification of the products'. In this way, the results obtained highlight the beneficial effect of waste PET as thermal insulation in comparison with other insulation materials. In addition, the obtained PET-mortar composites would appear to be low-cost materials which would contribute to resolving some of the solid waste problems in addition to conserving energy.

1 Introduction

Les matériaux composites [1] sont aujourd'hui l'objet de recherche tant théorique qu'expérimentale, car un regain d'intérêt se manifeste dans le monde pour l'utilisation des composites mortier- polymère [2-5] dans l'industrie du bâtiment pour différentes applications.

L'isolation joue un rôle fondamental pour la réduction des consommations énergétiques et également pour créer un espace de vie sain et plus confortable. En hiver, l'isolation permet de garder la chaleur à l'intérieur et donc de limiter les déperditions thermiques du bâtiment. En été elle permet également de limiter le flux de chaleur entre l'extérieur et l'intérieur du bâtiment. Aujourd'hui, il existe dans le commerce un grand nombre d'isolants et bien souvent, le choix n'est pas toujours évident.

La conductivité thermique est la vitesse d'écoulement de la chaleur à travers l'unité d'épaisseur du matériau. Elle est fonction, dans d'étroites limites, de la densité du matériau, et cette propriété est aussi modifiée par la teneur en eau du béton. Le comportement thermique du béton est pertinent à chacune de ses utilisations, en particulier en ce qui concerne les structures où il est souhaitable d'avoir une faible conductivité thermique, la stabilité dimensionnelle, une

chaleur spécifique élevée et peu ou pas de diminution de la rigidité lors du chauffage. Bien que beaucoup de travaux aient été fait sur l'effet des formulations et les propriétés mécaniques du béton, relativement peu de travaux ont été réalisés sur la conductivité thermique [6-8]. La conductivité thermique du béton augmente avec l'augmentation de la teneur en humidité. Comme l'eau a une conductivité d'environ 25 fois supérieure que celle de l'air, il est clair que lorsque l'air qui est dans les pores a été partiellement déplacé par l'eau ou l'humidité le béton doit avoir une plus grande conductivité [9]. Steiger et Hurd, [10] ont rapporté que, lorsque le poids unitaire du béton a augmenté de 1% en raison de l'absorption d'eau, la conductivité thermique de ces spécimens a augmenté de 5%.

En outre, on peut déterminer par un ensemble de propriétés physiques bien précises les caractéristiques qui permettent à la fois de comparer et de définir les applications la plus appropriée des matériaux composites utilisés et conçu pour un bâtiment dit intelligent. On peut dissocier deux types de propriétés:

- Les caractéristiques statiques comme la conductivité thermique (λ), la résistance thermique (R), le coefficient de transmission surfacique (U), la capacité thermique (ρC), et la perméabilité à la vapeur d'eau (μ).

- Les caractéristiques dynamiques comme la diffusivité thermique (a) et l'effusivité thermique (E) qui caractérisent le comportement d'un matériau en fonction de son temps de réaction.

La valeur U donne une information sur la performance d'isolation d'un élément de construction (mur, toit, plancher, porte, fenêtre...) Elle indique la quantité de chaleur qui passe en une seconde à travers une surface de 1 m^2 lorsqu'il y a une différence de température de 1°C entre l'intérieur et l'extérieur. Le béton, l'acier, la brique, le bois ou les matériaux isolants ont des conductibilités thermiques très différentes: l'aluminium est, par exemple, 5000 fois plus conducteur que la laine de verre. La résistance thermique R est l'inverse de la valeur U , autrement dit elle indique la tendance d'un élément de construction à résister au passage de la chaleur [11].

Le but de ce travail est de présenter les résultats d'une étude expérimentale portant sur les propriétés mécaniques et performances thermiques des matériaux composites mortier-polymère qui contiennent du polytéréphtalate d'éthylène (déchet de bouteilles en PET) broyé comme substituant au ciment pour un bâtiment conçu au développement durable. Un complément d'information sur la microstructure a été fait par une analyse thermique ATD et microscopie optique.

2 Conditions expérimentales

On décide de réaliser des composites avec des teneurs en polymère différentes telles $P/C \in \{0, 2.5, 5, 7.5\} \%^m$, avec P : polymère (PET) et C : ciment. Le mortier utilisé dans notre étude, se compose de la proportion en masse suivante: (1 ciment, 3 sable et un rapport eau sur ciment $E/C = 0.5$ constant pour tous les mortiers).

Les mortiers et/ou composites ont été coulés dans des moules prismatiques ($5 \times 5 \times 5 \text{ cm}^3$) et compactées mécaniquement à l'aide d'une table à choc (NF EN 196.1 [12]). Les moules contenant les spécimens ont été couverts de film plastiques et stockés dans l'environnement du laboratoire. Après 24 heures, les échantillons ont été démoulés et conservés jusqu'à l'âge de l'essai dans l'environnement suivant : Eau saturée en chaux : ($T = 20 \pm 2^\circ\text{C}$, $R.H = 100\%$).

Deux types d'essais sont effectués sur les spécimens de mortiers et/ou composites Mortier-Polymère PET0, PET2.5, PET5 et PET7.5, conservés dans l'eau douce. Ces essais sont :

1. Evaluation de la résistance à la compression ($5 \times 5 \times 5 \text{ cm}^3$) en fonction de l'âge (ASTM C109 [13]);
 2. Mesure de la conductivité thermique ($70 \times 70 \times 70 \text{ mm}^3$).
- Ces tests de contrôle sont effectués à l'âge de 7, 28 & 90 jours pour les essais mécaniques et après 90 jours pour les performances thermiques.

L'analyse du polymère PET utilisé a été fait en utilisant un appareil ATG/ATD 92 de Setaram, porte échantillon en alumine de 100 microL, rampe de température : montée 10K/mn jusqu'à 350°C , disponible à l'Université de Caen Basse-Normandie, Laboratoire LUSAC EA, France.

Pour mesurer la conductivité thermique des mortiers on a utilisé un appareil type 'Isomet 2104' (Figure 1). C'est un instrument de mesure portable pour la mesure directe du coefficient de conductivité thermique, capacité volumétrique spécifique et la température en utilisant l'échange de seringues et sondes de surface, selon la norme ISO8302 [14].

Les échantillons sont analysés par un microscope optique, type Keyence VH-5911 commandé par un logiciel Microvision, disponible au Laboratoire Matériaux et durabilité des constructions LMDC, INSA de Toulouse, France.



Fig. 1. Appareil de mesure de la conductivité thermique Isomet 2104 (LABMAT-ENPO).

2.1 Le ciment

Il s'agit d'un ciment Portland composé type CPJ-CEM II/A provenant de l'usine de Zahana (située au Nord-Ouest de l'Algérie). Ce ciment a une finesse de $2986 \text{ cm}^2/\text{g}$, de densité absolue 3.09 et d'une résistance à la compression à 28 jours de 36 MPa. Les caractéristiques chimiques et minéralogiques de ciment sont donnés par le tableau 1.

Tableau 1. Composition chimique et minéralogique du ciment (CPJ-CEM II/A).

Eléments	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	CaO	MgO	SO ₃	CaO libre	Loss
Pourcentage (%)	21.82	6.57	4.01	63.43	0.21	1.86	0.24	2.09

Eléments	C ₃ S	C ₂ S	C ₃ A	C ₄ AF
Pourcentage (%)	40.20	32.25	10.64	12.19

2.2 Le polymère (PET)

Le polymère utilisé est le polytéréphtalate d'éthylène (PET), son analyse thermique ATD faite au laboratoire LUSAC EA montre une température de fusion au environ de 250°C (Figure 2). Le PET est obtenu par le broyage très fin des bouteilles de boisson, sa courbe granulométrique est représentée dans la Figure 3.

Après plusieurs essais préliminaires, on a choisi pour cette étude les particules du polymère dont le diamètre est $< 1 \text{ mm}$.

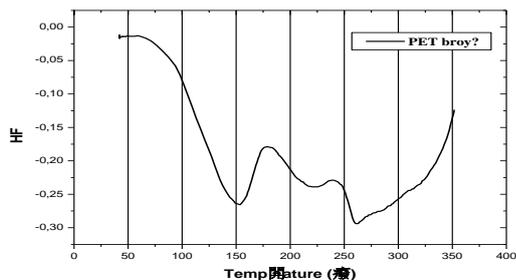


Fig. 2. Courbe d'analyse thermique ATD du PET broyé.

3.2 Le sable

C'est un sable concassé obtenu de la carrière de Kristel (Oran, Ouest Algérien). Ses principales caractéristiques physiques et chimiques sont regroupées dans le tableau 2. Sa courbe granulométrique est représentée dans la figure 3.

Tableau 2. Paramètres Physiques du Sable Utilisé

Masse volumique absolue (g/cm ³)	2.53
Equivalent du sable (%)	84
Module de finesse	2.55
Nature	Calcaire
Coefficient d'absorption (%)	0.5

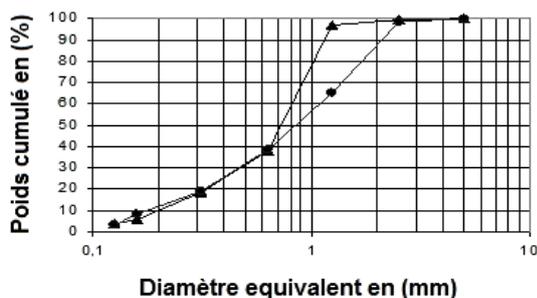


Fig. 3. Les courbes granulométriques : (▲) du polytéréphtalate d'éthylène broyé et (●) du sable concassé

3. Résultats et discussion

3.1 Evaluation de la résistance à la compression des composites PET-Mortier

Les résultats de la résistance à la compression (ASTM C109) [13] des composites avec et sans ajout de PET à l'âge de 7, 28 et 90 jours sont présentés dans le tableau 3. On observe que les composites à base de PET exhibe une résistance à la compression inférieure à celle du mortier témoin non modifié. On observe également que la résistance en compression de tous les composites augmente avec l'âge de conservation. Avec l'augmentation de l'âge de 28 à 90 jours, le % d'augmentation de résistance à la compression du PET0, PET2.5, PET5 et PET7.5 étaient de 12.24%, 17.78%, 8.83% et 17.61% respectivement. Des résultats similaires

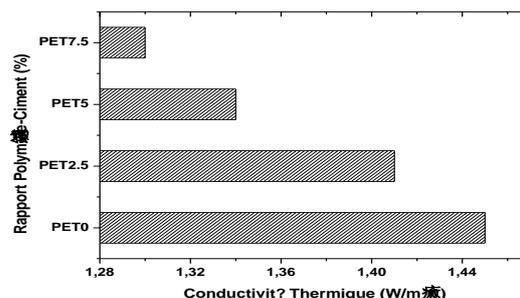
ont été rapportés par Frigione [15] et Saikia et al. [3]. Par conséquent, Saikia et al. [3] ont rapporté que le facteur qui peut être responsable à la faible résistance en compression du composite/mortier contenant un agrégat plastique est: la nature hydrophobe des déchets en plastique, qui peut inhiber la réaction d'hydratation du ciment en restreignant le mouvement de l'eau.

Tableau 3. Effet du PET sur la résistance en compression des composites à l'âge de 7, 28 et 90 jours.

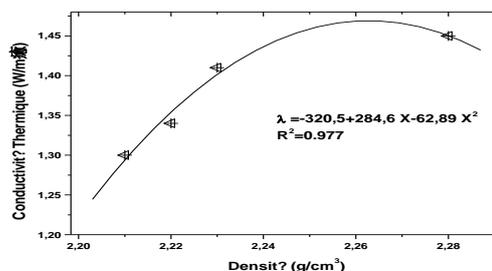
Rapport P/C	Résistance à la Compression (MPa)		
	7 jours	28 jours	90 jours
PET0	34.4	41.64	47.45
PET2.5	30.03	38.60	46.95
PET5	25.49	36.65	40.20
PET7.5	24.16	32.47	39.41

3.2 Conductivité Thermique, Résistance thermique et Coefficient de Transmission Surfaccique des composites PET-Mortier

La mesure de la conductivité thermique a été réalisée sur des spécimens (70x70x70mm³) et suivant la norme ISO8302 [14]. La figure 4(a) exhibe la variation de la conductivité thermique expérimentale par rapport à la teneur en particules de PET (% en poids) à 90 jours. On observe que l'addition de particules de PET dans la matrice de ciment réduit la conductivité thermique des composites.



(a)



(b)

Fig. 4. a-Variation de la conductivité thermique des composites avec le rapport PET-ciment (%). b-Relation entre la conductivité thermique et la densité du composite.

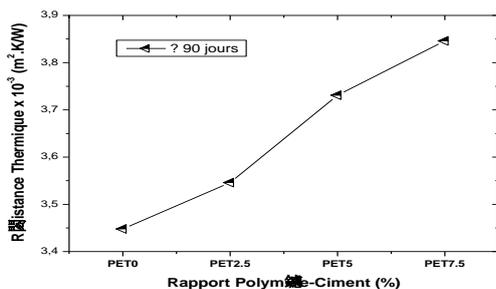
Ceci correspond à une diminution d'environ 10% pour le PET7.5. La réduction de la conductivité thermique du composite est due à l'effet isolant des particules de PET, qui présente une conductivité thermique plus faible (0.13

W/m.K) par rapport à celle de la matrice cimentaire. Ainsi, les agrégats ayant une faible conductivité thermique produit des composites moins conducteur. Des études antérieures montrent que le type d'agrégat aurait une grande influence sur la conductivité thermique des matériaux [16]. La relation correspondante entre la conductivité thermique et de la densité du matériau composite est représenté par la figure 4(b). La conductivité thermique λ (W/m.K) décroît avec la diminution de la densité (g/cm^3). La corrélation extraite est du type: $\lambda = -62,89 x^2 + 284,6 x - 320,5$ (ce qui donne un coefficient de corrélation $R^2 = 0,977$). La variation obtenue est similaire à celle rapportée dans des travaux antérieurs effectués sur des bétons légers [9,17,18].

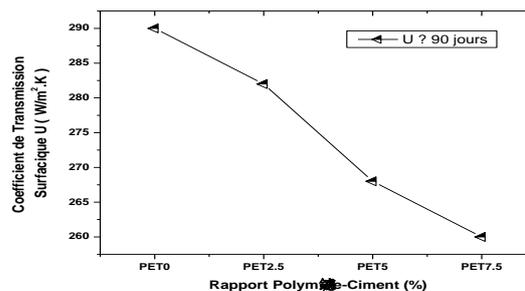
La conductivité thermique des matériaux dépend de nombreux facteurs, y compris leur structure, leur formulation, le type d'agrégat, densité porosité etc. Donc, la diminution de la conductivité thermique est également liée à la faible densité du PET ($1,35g/cm^3$) contenu dans la matrice. Par conséquent, cette faible densité permet l'allègement du composite PET-mortier. L'effet d'isolation thermique des particules PET est la plus attrayante et indique un potentiel élevé et prometteur pour le développement. Ces résultats corroborent ceux obtenus par Benazzouk. et al. (2008) [18] et Saikia et al. (2012) [3].

En outre, la diminution de la conductivité thermique est également liée à la teneur en air dans la matrice. Cela peut être dû à la fois à la capacité du PET à repousser l'eau (caractère hydrophobe) et à l'augmentation de l'enracinement d'air, qui se manifeste par des pores fermés vides, qui ne sont pas accessibles à l'eau. Les augmentations de la teneur en air avec des particules de PET permettent de réduire les ponts thermiques dans la matrice et de contribuer à l'amélioration de l'isolation du composite. En termes d'adhérence, Benosman et al. [19] ont rapporté qu'ils y a une bonne cohésion entre les particules du PET et la matrice cimentaire (Figure 7).

La figure 5 présente la variation de la résistance thermique et le coefficient de transmission surfacique par rapport au pourcentage en particules du PET (% en poids) à 90 jours. On observe que l'addition de particules du PET dans la matrice de ciment réduit la valeur du coefficient de transmission surfacique et augmente la valeur de la résistance thermique des composites.



(a)

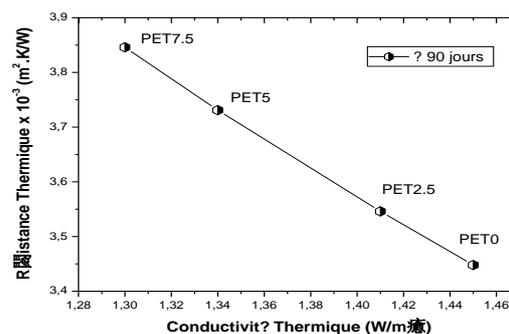


(b)

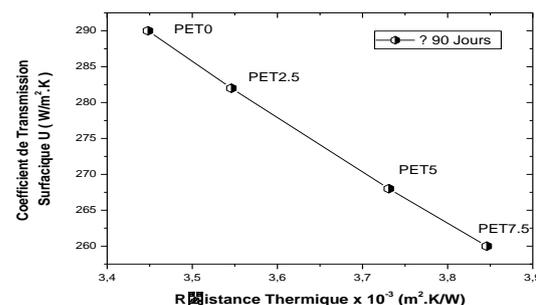
Fig. 5. a-Variation de la résistance thermique des composites avec le rapport PET-ciment (%).

b-Variation du coefficient de transmission thermique des composites avec le rapport PET-ciment (%).

Or, plus lambda (W/m.K) est petite, moins le matériau laisse perdre de chaleur pour une même épaisseur. Connaissant aussi que plus la valeur U (W/m².K) est petite, meilleure est l'isolation thermique et moins l'élément laisse perdre de la chaleur et plus la résistance (m².K/W) d'un élément de construction est élevée, moins il laisse perdre de chaleur [20] (Figure 6). Ainsi, on pourra conclure que les composites contenant du PET ont des propriétés d'isolation thermique meilleure que ceux du mortier non modifié. En conséquence, ils pourraient fournir de multiples applications, en particulier pour empêcher le transfert de chaleur et pour économiser de l'énergie au sein d'un bâtiment conçu pour un développement durable.



(a)



(b)

Fig. 6. a- Relation entre la résistance thermique et la conductivité thermique. b-Relation entre le coefficient de transmission thermique et la résistance thermique.

La figure 7 exhibe la micrographie optique du composite Mortier-Polymère contenant des particules en PET. En termes d'adhérence, la surface rugueuse des particules favorise un plus grand contact entre le PET et la matrice du ciment. Les particules semblent bien recouvertes par la matrice cimentaire.

L'introduction de l'ajout du PET broyé, conduit à une densification de la matrice cimentaire. La mouture des particules de PET, permet à ses grains de s'intercaler dans les macrospores entre les granulats et les produits d'hydratation (Figure 7). Ce qui développe l'adhérence particule/matrice et par conséquent augmente la résistance du mortier modifié par PET vis-à-vis des attaques des milieux fortement agressifs [21,22].



Fig. 7. Image obtenue au microscope optique MOP sur la fracture des échantillons d'un mortier modifié par du PET (25X).

4. Conclusions

A la faveur de ce qui précède, on a pu tirer les conclusions suivantes :

- Les particules PET ont une conductivité thermique et un coefficient de transmission surfacique significativement plus faible que l'agrégat naturel et la matrice cimentaire utilisé dans la formulation du mortier. Ainsi, les composites contenant du PET ont des propriétés d'isolation thermique meilleure que ceux du mortier non modifié. Ils pourraient fournir de multiples applications, en particulier pour empêcher le transfert de chaleur et pour économiser de l'énergie.

- Plus la conductivité thermique ($W/m.K$) est petite, moins le matériau laisse perdre de chaleur pour une même épaisseur. Aussi, plus la valeur du coefficient de transmission surfacique ($W/m^2.K$) est petite, meilleure est l'isolation thermique et moins l'élement laisse perdre de la chaleur et plus la résistance thermique ($m^2.K/W$) d'un élement de construction est élevée, moins il laisse perdre de chaleur.

- Indépendamment du type de polymère PET, les propriétés et performances thermiques des matériaux composites mortier-polymère sont meilleures que celle du mortier non modifié, et tendent généralement à donner des résultats positifs avec l'augmentation du rapport de polymère-ciment. De tels mortiers modifiés peuvent être recommandés comme des matériaux efficaces pour les diverses structures en béton au cœur du développement durable.

Références

1. Y. Ohama, *Hand book of polymer-modified concrete and mortars, properties and process technology*. Noyes Publications, USA, (1995).
2. S. Chandra, Y. Ohama, *Polymers in Concrete*, CRC Press, Boca Raton, p 204, (1994).
3. E. Sakai, J. Sugita, *Cem. Concr. Res.* **25** [1] 127 (1995).
4. N. Saikia, J. de Brito, *Constr. Build. Mater.* **34**, 85 (2012).
5. R. Siddique, J. Khatib, I. Kaur, *Waste Manage.* **28**, 1835 (2008).
6. X. Fu, D.D.L. Chung, *Cem. Concr. Res.* **27**, 1799 (1997).
7. R. Gül, H. Uysal, R. Demirboga, *Investigation of the Thermal Conductivity of Lightweight Concrete Made with Kocapınar's Pumice Aggregate*, *Advanced in Civil Eng.: III. Technical Congress*, vol. **2**, METU, Ankara, Turkey, (In Turkish) pp. 553–562 (1997).
8. P. Chen, D.D.L. Chung, *Cem. Concr. Res.* **25**, 465 (1995).
9. R. Demurboga, R. Gül, *Cem. Concr. Res.* **33**, 723 (2003).
10. R.W. Steiger, M.K. Hurd, *Concr. Constr.* **23** (7) 411 (1978).
11. AGEDEN - *Energies Renouvelables en Isère, Propriétés et performances thermiques des matériaux*, Web: <http://www.ageden.org>. (2008),
12. EN 196-1, *Methods of testing cement - Part 1: determination of strength*. CEN, (1995).
13. ASTM C109/C109M, *Standard Test Method for Compressive Strength of Hydraulic Cement Mortars*, ASTM International (2011).
14. ISO8302, *Thermal Insulation--Determination of Steady-State Areal Thermal Resistance and Related Properties--Guarded-Hot-Plate Apparatus* (1991).
15. M. Frigione, *Waste Manage.* **30**, 1101 (2010).
16. A. Bouguerra JP. Laurent, MS. Goual, M. Quéneudec, *J. Appl. Phys.* **30**, 2900 (1997).
17. K. Al-Rim, A. Ledhem, O. Douzane, RM. Dheilly, M. Quéneudec, *Cem. Concr. Comp.* **21**, 269 (1999).
18. A. Benazzouk, O. Douzane, K. Mezreb, B. Laidoudi, M. Quéneudec, *Constr. Build. Mater.* **22**, 573 (2008).
19. A.S. Benosman, M. Mouli, H. Taibi, M. Belbachir, Y. Senhadji, I. Bahlouli and D. Houivet, *Mater. Sci. and Appl. MSA*, **3** [3] 139 (2012).
20. NF EN ISO 10456, *Matériaux et produits pour le bâtiment - Propriétés hygrothermiques - Valeurs utiles tabulées et procédures pour la détermination des valeurs thermiques déclarées et utiles*, Juin (2008).
21. A.S. Benosman, M. Mouli, H. Taibi, M. Belbachir, Y. Senhadji, *Internat. J. of Eng. Res. in Africa*, JERA.5.1, **5.1**, 1 (2011).
22. A.S. Benosman, M. Mouli, H. Taibi, M. Belbachir, Y. Senhadji, I. Bahlouli, D. Houivet, *La Durabilité des Matériaux Composites PET-Mortier dans un Environnement Agressifs*, Actes du Colloque International sur les Matériaux et le Développement Durable CIMDD'2013, ISBN : 978-9931-9090-1-9,

Université Boumerdès (Algérie), 06-09 Mai 2013,
330 pages.