

EVALUATION DE LA QUALITÉ INDUSTRIELLE DES ARGILES FIBREUSES DE BLED RMEL, BASSIN DU GHARB, MAROC

Hajar Bensalem

Malika Aadjour

Hassan El Hadi

Najib Saber

Laboratoire de Géologie Appliquée, Géomatique et Environnement, UH2M,
Faculté des Sciences Ben M'sik Casablanca, Maroc

Ali. El Ouazzani

Abdellah Mouttaqi

Office National des Hydrocarbures et des Mines (ONHYM), Rabat; Maroc

Abstract

This work concerns the physico-chemical characterization and the industrial valuation of fibrous clays of the Eocene series of 'Bled Rmel', (Souk El Arbaa of Gharb area). Four specific samples were the object of analyses by X-rays, spectrometry, thermogravimetric analysis, and technological tests. The results confirm the relation between the composition of the clays and the quality of the final ceramic product. The chemical analysis made on four samples (BR1 to BR4) reveals their low content in Fe_2O_3 (lower than 3 %), a rate in alkaline reaching 3 % and a content in high silica (superior to 40 %). Al_2O_3 is lower than 4 % for samples BR1 et BR2 while it is superior to 10 % for samples BR3 and BR4. The mineralogical analysis reveals very nearby mineralogical compositions. The thermogravimetric analysis underlines a bearable loss of weight, for four samples, due to the decomposition of the calcite and the dolomite. The technological tests on four samples (BR1 to BR4) indicate that products of clays sample BR1, BR2 and BR3 can be considered not refractory. In the other hand, the product of BR4 has very good quality and can be used for the manufacturing of ceramic products tiles, grounds and walls, pottery of service, etc.

Keywords: Fibrous clays, chemical and mineralogical composition, Quality, Ceramic industry, Gharb Basin

Résumé

Ce travail concerne la caractérisation physico-chimique ainsi que la valorisation industrielle des argiles fibreuses de la série éocène de Bled Rmel, (région Souk El Arbaa, bassin du Gharb). Pour ce fait, quatre échantillons spécifiques ont fait l'objet d'analyses par diffractométrie aux rayons X, spectrométrie à fluorescence X, analyse thermogravimétrique et tests technologiques. Les résultats confirment l'étroite relation existante entre la composition des argiles et la qualité du produit céramique final. L'analyse chimique effectuée sur les quatre échantillons (BR1, BR2, BR3 et BR4) révèlent leur faible teneur en Fe_2O_3 (inférieur à 3%), un taux en alcalins atteignant 3% et une teneur en silice élevée (supérieure à 40%). Par ailleurs, la teneur en Al_2O_3 est inférieure à 4% pour les échantillons BR1 et BR2 alors qu'elle est supérieure à 10 % pour les échantillons BR3 et BR4.

L'analyse minéralogique révèle des compositions minéralogiques très voisines pour les quatre échantillons. L'analyse thermogravimétrique souligne une perte de poids tolérable, pour ces argiles, due à la décomposition de la calcite et de la dolomite.

Les tests technologiques effectués sur les quatre échantillons, indiquent que les argiles provenant des échantillons BR1, BR2 et BR3, de teinte blanche à grise à l'affleurement, peuvent être considérées comme argiles grésantes, c'est-à-dire non réfractaires. Par ailleurs, l'argile grise (BR4) est de très bonne qualité et peut être utilisée pour la fabrication de produits céramiques à savoir les carreaux sols et murs, poterie de service, etc.

Mots clés: Argiles fibreuses , Composition chimico-minéralogique, Qualité, Industrie céramique, Bassin du Gharb

Introduction

La qualité des produits céramiques, entre autre celle des carreaux céramiques, est infiniment liée à la maîtrise de certains paramètres minéralogiques, chimiques, physiques et mécaniques. La complexité des transformations que subit le produit façonné, dépend de la composition chimique et minéralogique de la matière première et de la nature et la quantité des impuretés présentes. Plusieurs études dans le domaine de la céramique tentent de déterminer les compositions des argiles et leurs traitements afin d'optimiser la qualité des produits céramiques. Le présent travail entre dans le cadre de la valorisation des matériaux utiles du Nord du Maroc. En effet, l'étude consiste en la caractérisation physico-chimique des argiles éocènes affleurant à Bled Rmel (bassin du Gharb, fig. 1) et à des tests technologiques pour une éventuelle utilisation de ces argiles en céramique.

Cadre géographique et géologique

La zone d'étude (Souk El Arbaa du Gharb) fait partie du bassin sud-rifain occidental (CIRAC, 1985), elle recouvre en partie le prérif occidental et le Rharb septentrional (Fig.1).

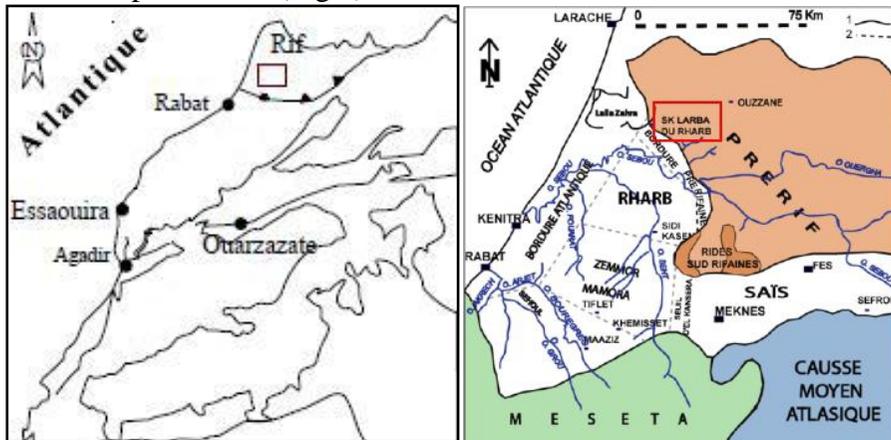


Figure 1 : Situation géographique des principales régions du bassin sud-rifain occidental (CIRAC, 1987 ; MAYCHOU, 2009)

 Zone d'étude

Bordant le Pré-rif, le bassin du Gharb, correspond à une zone de subsidence à remplissage mio-plio-quadernaire. Ainsi, ce dernier est formé par le Néogène (grés mollassiques et marnes) et le Quaternaire (marnes, grés, limons et alluvions).

La colonne stratigraphique des formations néogènes du bassin du Rharb est connue d'après les données de surface (FEINBERG, 1986 ; WERNLI, 1987), et de subsurface (ERICO, 1991). Elle comporte des sédiments d'âge Tortonien à Quaternaire (fig. 2). La nature lithologique de ces dépôts varie de la bordure vers le centre du bassin, où l'épaisseur totale peut dépasser les 2000m (LITTO, 2001). Il s'agit en général d'une succession épaisse de marnes et de sables transgressifs, discordants sur les séries plus anciennes du Paléozoïque et du Mésozoïque au niveau de la marge sud, et sur celles de la nappe pré-rifaine au niveau de la marge Nord. Ils constituent des séquences sédimentaires formées d'épais niveaux argilo-silteux de mer ouverte, témoignant d'un environnement deltaïque et turbiditique. Sur les bordures du bassin, les dépôts de sables bioclastiques ou de carbonates indiquent un environnement de plate forme (CIRAC, 1987 ; WERNLI, 1987 ; FLINCH, 1993, 1996).

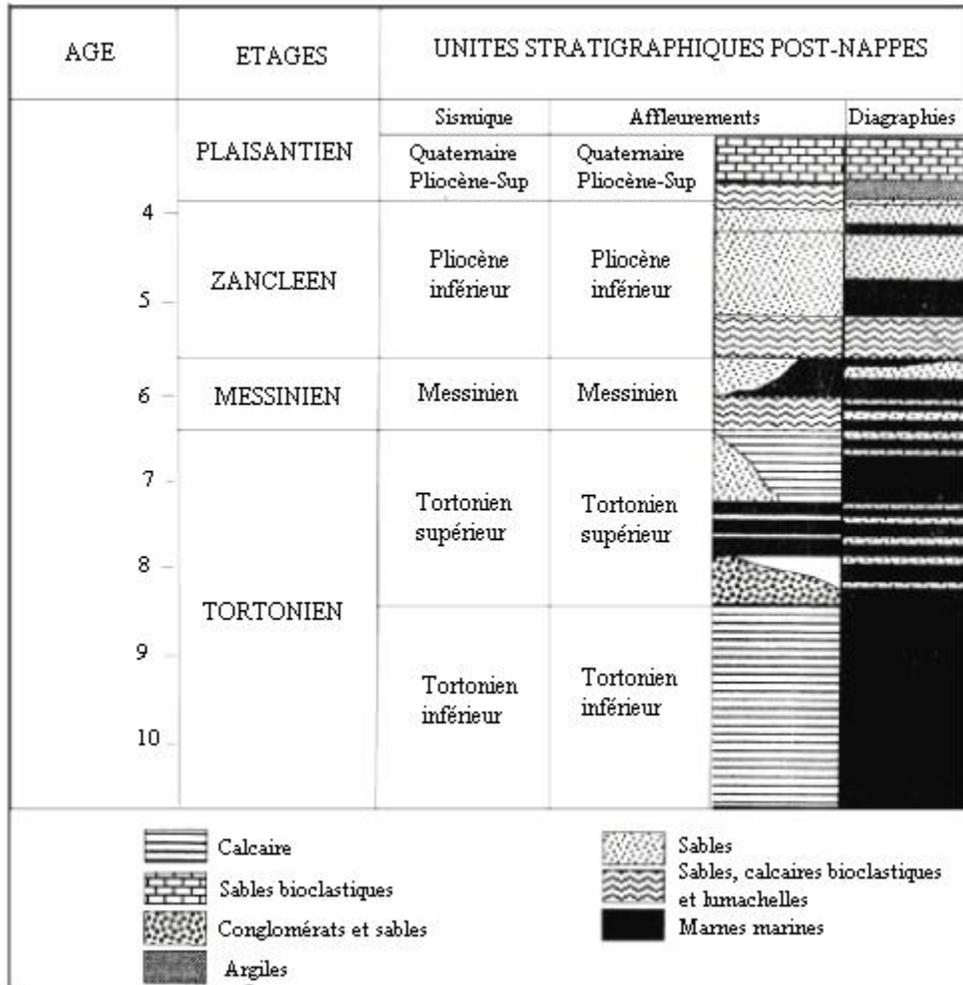


Figure 2 : Colonne stratigraphique des formations néogènes du bassin du Rharb (ERICO, 1991)

Méthodologie

L'échantillonnage a été réalisé au niveau d'une série marneuse de l'Eocène (allant jusqu'à 60 m et plus), contenant les argiles fibreuses. Quatre échantillons (les plus représentatifs, BR 1 à BR 4), ont été prélevés : BR1 (X= N34°43.938' et Y= 005°47.606'), BR2 (X= 34°43.916' et Y= 005°47.769'), BR3 (X = N34°43.908' et Y =005°47.775') et BR4 (X =N34°43.899' et Y= 005°47.803') ; (Fig. 3).

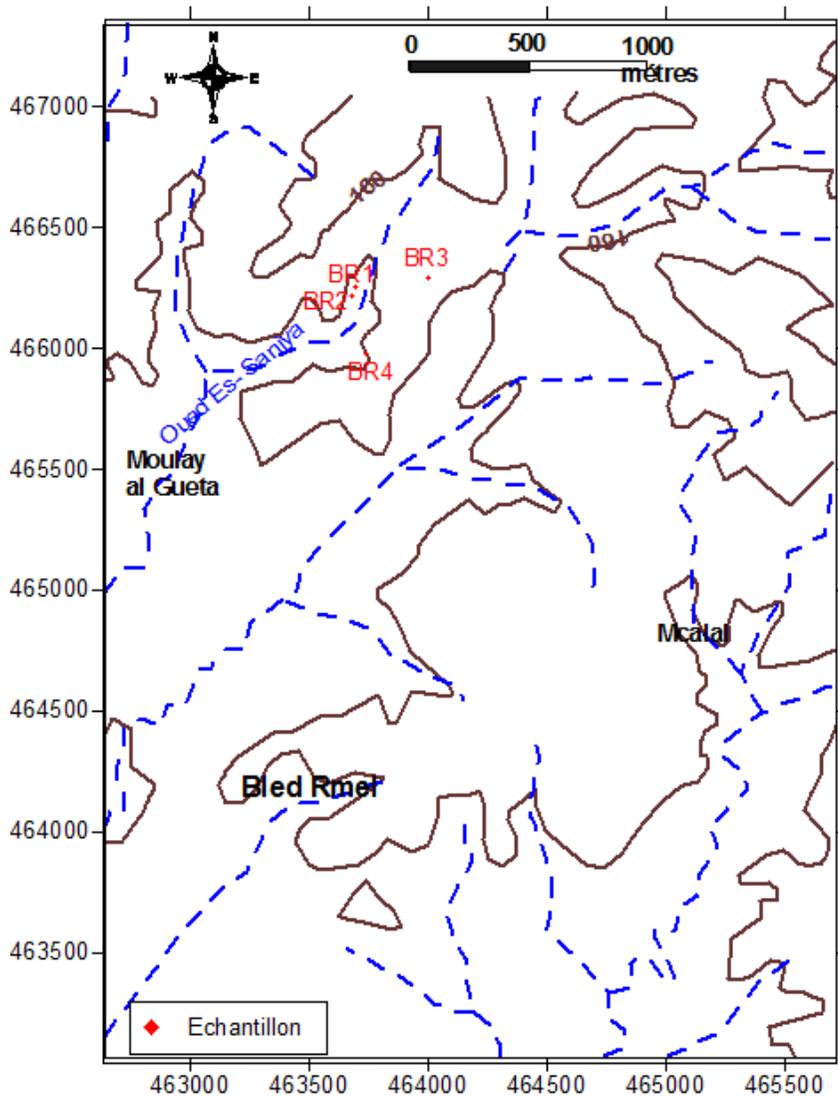


Figure 3 : Carte de localisation des échantillons prélevés à Bled Rmel, Souk El Arbaa (Bassin du Gharb)

La démarche méthodologique adoptée dans ce travail comporte deux grandes étapes : la première concerne la caractérisation de la matière première, et la seconde porte sur la caractérisation du produit céramique final.

1- Caractérisation de la matière première : Nous avons essayé de mener une étude minéralogie, chimique et physique sur les quatre échantillons spécifiques prélevés. Nous avons effectué la préparation des échantillons, destinés aux analyses chimiques et minéralogiques, dans les

laboratoires de la direction de l'exploration minière au sein de l'Office National des Hydrocarbures et Mines, Rabat (ONHYM). Après une phase d'étuvage à 100 °C pendant 24 h, les quatre échantillons ont été broyés et tamisés à 75 µm. Les échantillons ainsi préparés ont été divisés en deux parties ; la première, préparée sous forme de perles (CLAISSE, 1955), a été analysée par le spectromètre 'PANalytical AXIOS' à fluorescence X afin de quantifier les principaux éléments majeurs. La deuxième partie de fraction inférieure à 2 µm séparée par centrifugation, destinée à la confection de lames, a été analysée par diffractométrie aux rayons X en utilisant le diffractomètre 'Philips PANalytical' avec les radiations Cu-K α ($\lambda = 1,5418\text{\AA}$) pour déterminer les différentes phases minérales présentes. L'analyse minéralogique par diffractométrie aux rayons X, a été faite sur la poudre et les lames à agrégats orientés (normales, traitées avec l'éthylène glycol et chauffées) des quatre échantillons (BR1 à BR4).

La caractérisation physique tourne autour de l'analyse thermogravimétrique qui a été effectuée au sein de l'École Normale Supérieure de l'Enseignement Technique de Rabat (ENSET). La préparation se fait en mélangeant l'échantillon et le KBr (Bromure de Potassium) afin de former une pastille et de la sécher dans l'étuve, pour ensuite l'analyser. Ainsi, la préparation, faite pour chaque échantillon, est placée dans une nacelle en alumine suspendue au fléau d'une balance, se trouve dans une enceinte à température contrôlée. L'équilibre de la balance est assuré par un système de compensation électromagnétique. La variation de la masse, donnée par le système de rééquilibrage, est enregistrée en fonction de la montée en température (AFNOR 4).

Caractérisation du produit céramique final

Les essais technologiques nécessitent la préparation d'une briquette pour chacun des quatre échantillons, et pour ce fait, une quantité de 100 grammes est préparée pour chaque argile (BR1 à BR4) à l'Institut Scientifique de Rabat. Chaque mélange est passé au broyeur planétaire (MP100 ; Fréquence : temps : 15 mn), ce qui permet d'obtenir une poudre très fine ($\text{\O} < 100 \mu\text{m}$) et parfaitement homogène. Les poudres sont ensuite humidifiées (10% d'H₂O) et soumises à une pression de 30 MPa dans des moules 99 de 100 x 50 mm. Les briquettes obtenues, d'une dimension de 100 x 50 x 20 mm, sont séchées à l'étuve (110°C / 24 h). Les briquettes séchées sont passées au four (Thermolyne 46200) pour cuisson à des températures évolutives entre 800 et 900°C. Les cycles de cuisson adoptent une augmentation modérée de la température (5°C/mn) avec un palier d'une heure à 600°C et un autre à la température maximale du cycle. La baisse de la température se fait à une vitesse plus rapide (10°C/mn) avec un ralentissement entre 600 et 500°C pour assurer un passage en douceur du

seuil de transformation du quartz β -quartz α . Les briquettes ainsi obtenues ont été soumises à des tests technologiques (Porosité, retrait à la cuisson, absorption en eau et résistance à la flexion) dont le mode opératoire est celui recommandé par la norme internationale ASTM, relative aux céramiques industrielles (ASTM, 1, 2, 3).

Résultats et discussions

Le tableau 1 résume la composition chimique en pourcentage massique des quatre échantillons analysés à l'ONHYM par fluorescence X :

Caractérisation de la matière première

➤ Analyse chimique (FX)

Tableau 1 : Composition chimique en éléments majeurs (poids d'oxydes) des argiles de 'Bled Rmel' (Région Souk El Arbaa, Bassin du Gharb)

Echts.	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	FeO	Ti ₂ O	CaO	MgO	Na ₂ O	K ₂ O	MnO	P ₂ O ₅	PF
BR1	41,49	4,64	1,35	0,78	0,26	20,43	8,08	0,36	0,77	0,02	0,61	21,59
BR2	43,97	3,90	1,35	0,57	0,23	19,05	7,48	0,19	0,69	0,02	0,61	21,02
BR3	56,36	10,95	3,01	1,03	0,48	7,70	5,21	1,16	0,88	0,04	0,37	12,36
BR4	54,39	14,07	2,94	3,22	0,74	5,97	3,18	1,44	1,85	0,05	0,28	11,18

Suivant les résultats, on peut déduire que les argiles étudiées sont grésantes (teneur en SiO₂ entre 41,5 % et 56,4 %), et non réfractaires, puisque les argiles réfractaires présentent un pourcentage en Al₂O₃ supérieur à 45 %. Elles ne cuisent pas blancs, car une argile qui cuit blanc se caractérise par un pourcentage en TiO₂, Fe₂O₃ et MnO toujours inférieur à 1,5% (IKAYA, 2004). Par ailleurs, si l'on compare les argiles BR1 et BR2 aux argiles BR3 et BR4, on en conclut que ces dernières (BR3 et BR4) sont de nature essentiellement silico-alumineuse avec des teneurs plus faibles en carbonates (Tabl. 1). Les échantillons BR1 et BR2 étant relativement plus riches en CaO et en pertes au feu (Tabl. 1).

➤ Analyse minéralogique (DRX)

La caractérisation minéralogique a été réalisée par diffraction aux rayons X à l'ONHM. Les résultats de l'analyse minéralogique se résument sur les figures 4, 5, 6 et 7.

L'échantillon BR1 correspondant aux marnes blanches, prélevées dans le secteur de Bled Rmel, est constitué de phases minérales argileuses ; les sépiolites (argiles fibreuses), auxquelles sont associées des phases minérales non argileuses à savoir la calcite, la dolomite et le quartz (fig. 4).

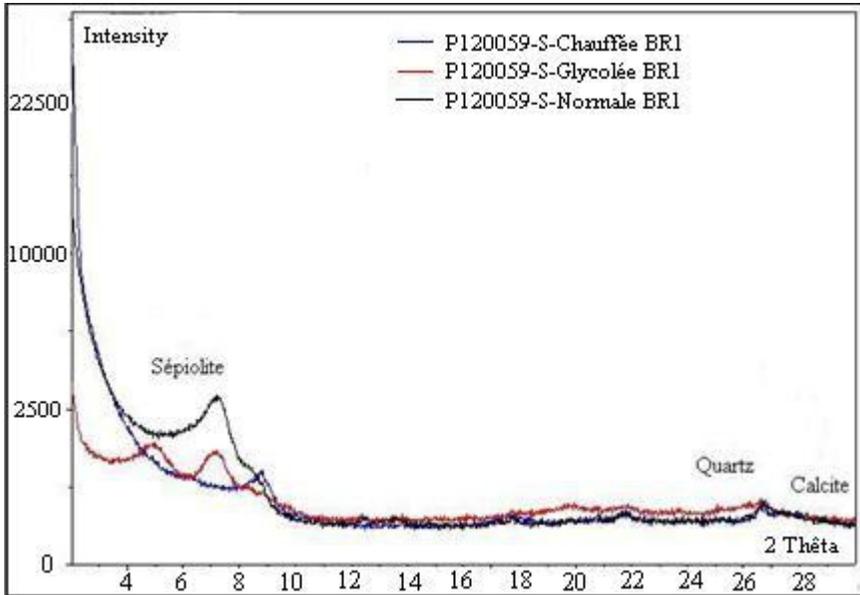


Figure 4 : Diffractogramme des phases minérales composant l'échantillon BR1

L'échantillon BR2 correspondant aux marnes blanches, prélevées dans le secteur de Bled Rmel, est constitué également de sépiolites, auxquelles sont associés des phases minérales non argileuses à savoir la calcite, la dolomite et le quartz (Fig. 5).

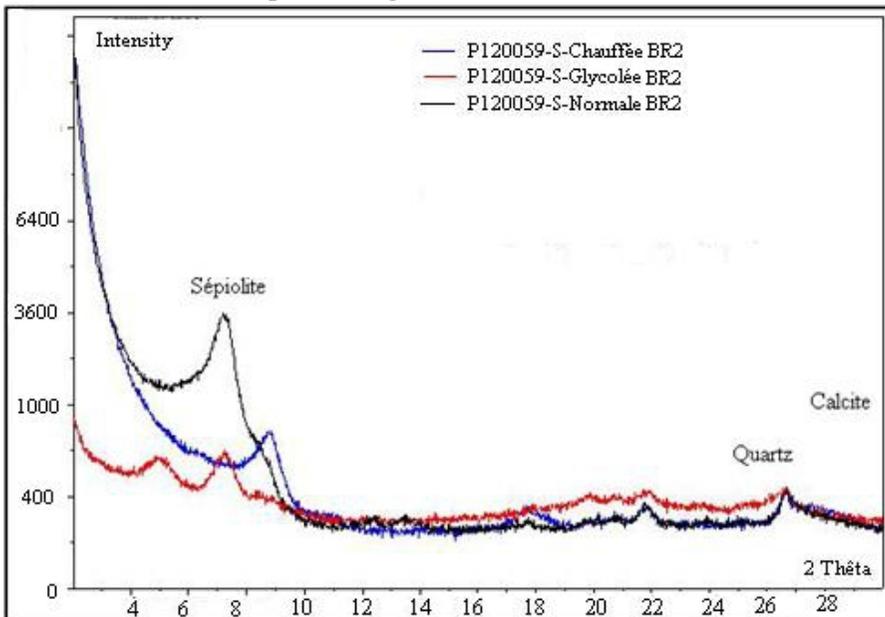


Figure 5 : Diffractogramme des phases minérales composant l'échantillon BR2

L'échantillon BR3 correspondant aux marnes blanches, prélevées dans le secteur de Bled Rmel, contient deux phases d'argiles fibreuses, les sépiolites et palygorskites (Attapulgites), auxquelles sont associées des phases minérales non argileuses à savoir : quartz, calcite, dolomite et hématite (Fig. 6).

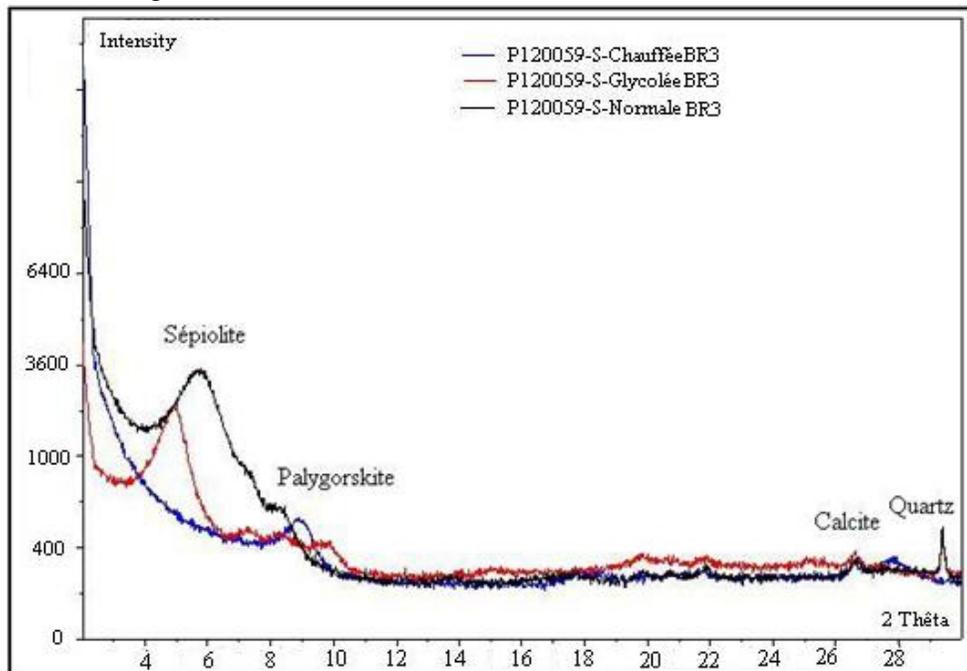


Figure 6 : Diffractogramme des phases minérales composant l'échantillon BR3

L'échantillon BR4 correspondant aux argiles grises, prélevées dans le secteur de Bled Rmel, comprend des phases minérales non argileuses à savoir : Quartz, hématite, calcite, et dolomite et des phases minérales argileuses à savoir : Sépiolite, illite et kaolinite (Fig. 7).

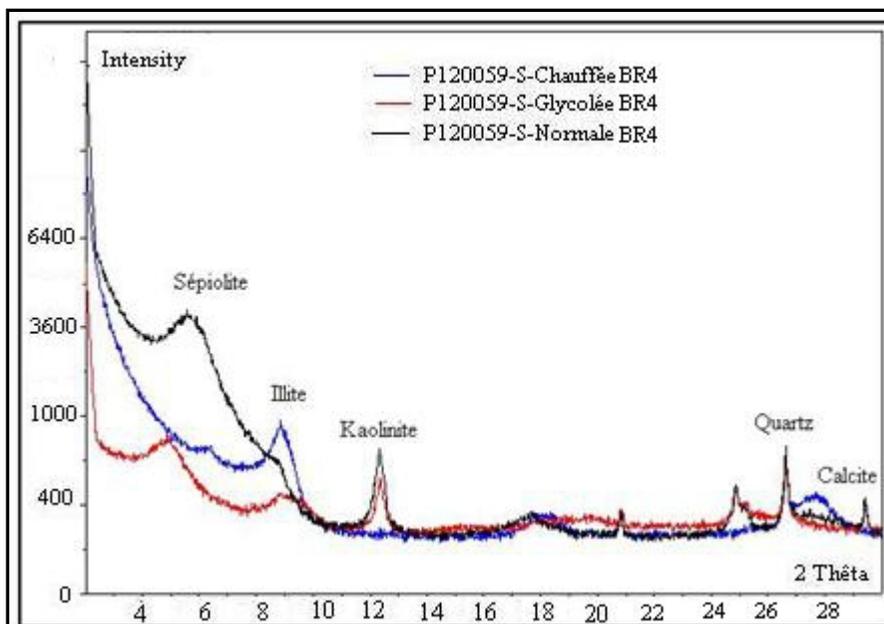


Figure 7 : Diffractogramme des phases minérales composant l'échantillon BR4

Les diffractogrammes révèlent des compositions minéralogiques très voisines. Les principales phases minérales bien exprimées dans ces argiles sont : Sépiolites, Quartz, Calcite, Palygorskite, Illite, Smectite et Dolomite. Par ailleurs, l'échantillon BR4, prélevé dans les argiles grisâtres, correspond à un mélange naturel (Illite, kaolinite, Quartz et Hématite) semblable aux mélanges rencontrés en céramique traditionnelle et moderne où le quartz est souvent ajouté aux minéraux argileux (ZGHAL, 2011).

➤ **Analyse thermogravimétrique (ATG)**

Nous avons détecté deux pics exothermiques dans l'échantillon BR1, le premier pic à 60 °C correspondant au départ de l'eau de l'humidité et interfoliaire avec une perte de poids de 0,4% pds. Le second pic exothermique à 750 °C correspondant à la décomposition de la dolomite avec une perte de poids de 2,5 % pds (Fig. 8). La série 1 représente la perte du poids en fonction de la température et la série 2 reflète la présence des pics endothermique ou exothermique (selon le graphe).

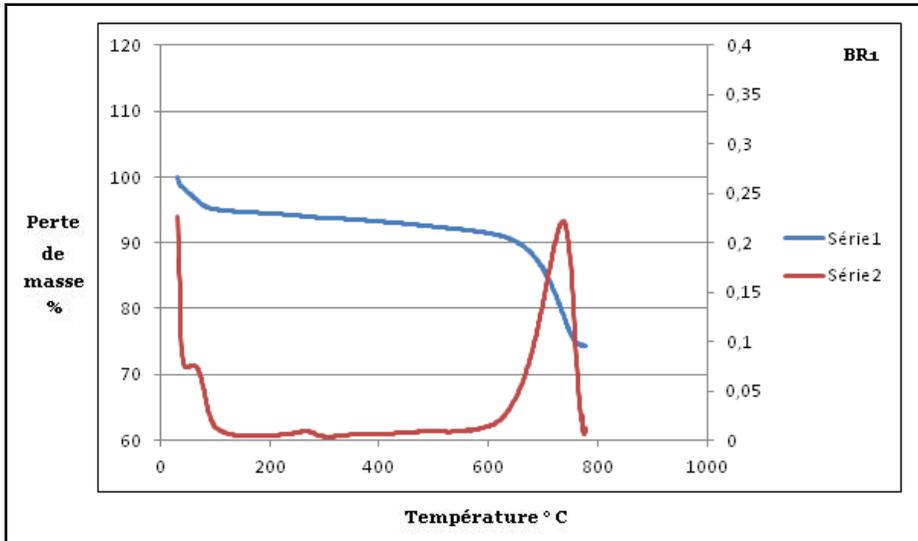


Figure 8: Thermogramme d'analyse thermogravimétrique (ATG) de l'échantillon BR1

Nous avons détecté deux pics exothermiques dans l'échantillon BR2, le premier à 490 °C correspondant à la déshydroxilation de l'illite et le second à 750 °C correspondant à la décomposition de la dolomite avec une perte de masse notée (Fig. 9).

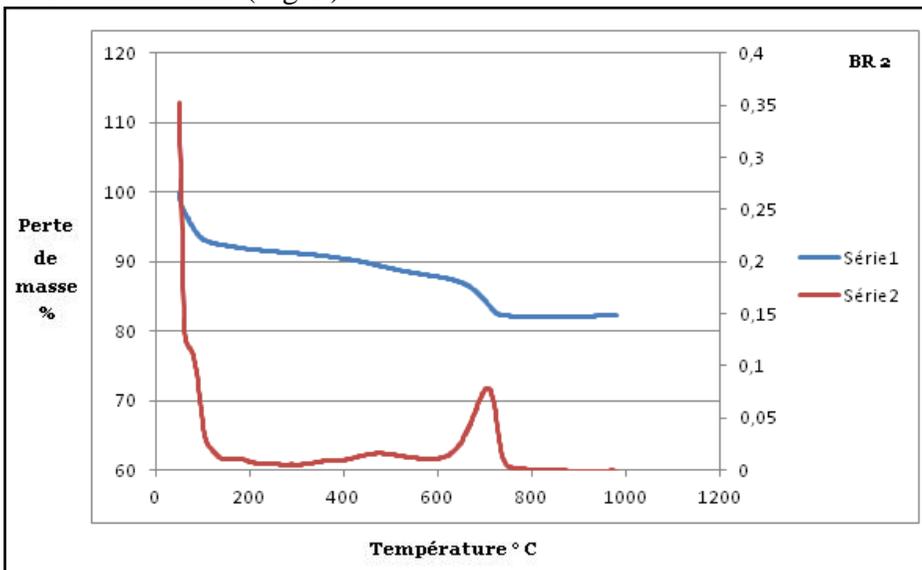


Figure 9 : Thermogramme d'analyse thermogravimétrique (ATG) de l'échantillon BR2

Concernant l'échantillon BR3, nous avons détecté un pic exothermique à 750 °C avec une perte de masse considérable, correspondant à la décomposition de la dolomite ferreuse (Fig. 10).

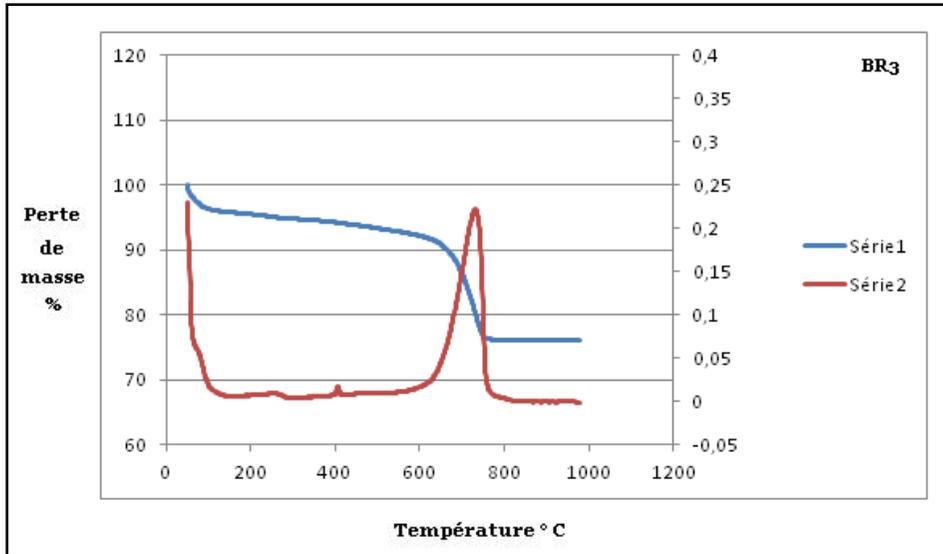


Figure 10: Thermogramme d'analyse thermogravimétrie (ATG) de l'échantillon BR3

Nous avons détecté quatre pics exothermiques dans l'échantillon BR4, un faible crochet à 115 °C associé à l'élimination de l'eau physisorbée sur la surface des particules et/ou la déshydratation des cations interfoliaires, avec une perte de masse, le second pic à 480°C correspondant à la déshydroxylation de l'Illite et le troisième à 570 °C à la déshydroxylation de la Kaolinite et enfin le quatrième pic avec un crochet plus fort à 700 °C correspondant à la décomposition de la dolomite ferreuse avec une perte de masse notée (Fig. 11).

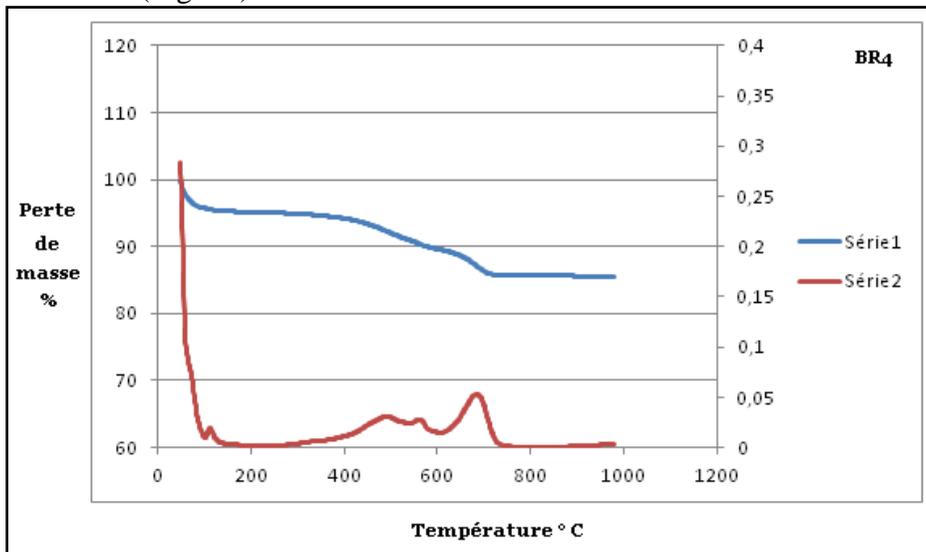


Figure 11: Thermogramme d'analyse thermogravimétrie (ATG) de l'échantillon BR4

Caractérisation des céramiques

Les résultats des principaux tests réalisés sont présentés dans le Tableau 2.

Tableau 2: Résultats des tests technologiques réalisés sur les quatre échantillons

	BR1	BR2	BR3	BR4
Retrait à cuisson (%)	6.65	7.14	5.76	4.76
Porosité (%)	21.32	19.53	14.56	13.41
Absorption en eau (%)	17.54	15.39	11.09	8.45
Résit. flexion (MPa)	7.56	7.08	14.87	16.65

Les résultats montrent des fluctuations significatives confirmant la relation étroite entre la composition des argiles et la qualité des céramiques obtenues. La briquette obtenue à partir de l'argile BR4 frittée à 900 °C affiche un retrait à la cuisson plus faible (4,76%), une porosité modérée (13,41%) et une grande résistance à la flexion (16,65) par rapport aux briquettes des argiles BR1, BR2 et BR3.

- Les argiles grises de Bled Rmel (BR4) présentent un retrait à la cuisson plus faible que celui des argilites ordoviciennes de Jbel Kharrou qui est un peu élevé (12%) (EL YAKOUBI, 2006) mais se caractérisent par une très forte résistance mécanique à la flexion.
- Les argiles grises de Bled Rmel (BR4) présentent un retrait à la cuisson plus faible que celui des argiles rouges triasiques de Benhmed qui est de 11% (EL YAKOUBI, 2006) et une grande résistance mécanique à la flexion par rapport à celle des argiles de Benhmed qui est plus faible.
- Les argiles tunisiennes présentent une porosité de 12, 31%, un retrait à la cuisson de 1,15% et une résistance à la flexion de 11,25 % (BACCOUR, 2011) par rapport àaux argiles grises de Bled Rmel (BR4).
- Les argiles rouges triasiques au Maroc destinées à la fabrication des carreaux céramiques présentent un retrait à la cuisson de 5,93%, une résistance à la flexion de 14,1 MPa (SADIK, 2012) par rapport aux argiles grises de Bled Rmel (BR4)

Conclusion

L'analyse minéralogique des quatre échantillons d'argile prélevés dans la formation de Bled Rmel indique la présence de Sépiolite, Quartz, Calcite, Palygorskite, Illite, Smectite, et Dolomite, comme minéraux essentiels. L'argile BR4 se caractérise par une composition minéralogique assez semblable aux mélanges rencontrés en céramique traditionnelle. L'analyse chimique montre une teneur en SiO₂ entre 41,5 % et 56,4 % ce qui atteste que les argiles étudiées sont grésantes, un pourcentage du TiO₂, FeO₃ et MnO supérieur à 1,5% indiquant que ces argiles ne cuisent pas blancs (IKAYA, 2004) et une teneur en Al₂O₃ inférieur à 45 % attestant qu'elles sont non réfractaires.

Les essais technologiques ont démontré des propriétés industrielles convenables pour ces argiles. L'argile BR4 est de nature essentiellement silico-alumineuse avec des teneurs plus faibles en carbonates. La brique, obtenue à partir de cette argile, frittée à 900 °C est de bonne qualité, reste plate, sans aucune déformation ou défaut et présente des propriétés techniques requises dans la fabrication des produits céramiques. On conclut donc que les argiles grises (BR4) sont plus intéressantes à exploiter dans l'industrie céramique (carreaux sols et murs, poterie de service, etc.), à l'exception des réfractaires.

Remerciements

Les auteurs sont très reconnaissants à l'ONHYM et à l'ENSET qui ont assuré les analyses et les tests technologiques et aux experts qui ont évalué ce travail.

Références bibliographiques:

ASTM C 326-03, Standard test method for drying and firing shrinkages of ceramic whiteware clays, 15–02, Verre et céramique.

ASTM C373-88, Standard test method for water absorption, bulk density, apparent porosity, and apparent specific gravity of fired whiteware products, 15–02, Verre et céramique.

ASTM C674-88, Standard test methods for flexural properties of ceramic whiteware materials, 15–02, Verre et céramique.

ASTM (DIN 51006), Standard test method for thermogravimetric analysis (TGA).

BACCOUR ZGHAL. H, MEDHIOUB. M & MHIRI. T (2011), Caractérisation physicochimique et mécanique de matériaux céramiques obtenus à partir des argiles Tunisiennes. Verres, Céramiques & Composites, Vol.1, Vol. 2, pp 25-33.

CIRAC, P. (1987), Le bassin sud- rifain occidental au Néogène supérieur. Evolution de la dynamique sédimentaire et de la Paléogéographie au cours d'une phase de comblement. Thèse de Doctorat d'Etat, n° 837. Univ Bordeaux I. 285 p.

CLAISSE, F. (1955), Mise au point de la méthode moderne dite de « la perle fondue ».

EL YAKOUBI. N (2006) Potentialités d'utilisation des argiles marocaines dans l'industrie céramique. Cas des gisements de Jbel Kharrou et de Benhmed (Meseta marocaine occidentale). Thèse ès-Sciences. Univ Mohammed V, Agdal. 212 p.

ERICO, F. (1991). Etude de synthèse géologique et géophysique du bassin du Gharb. Rapport inédit de l'Office National de la Recherche Pétrolière. Rabat. Maroc.

- FEINBERG H. (1986), les séries tertiaires des zones externes du Rif (Maroc) biostratigraphie, paléogéographie et aperçu tectonique ; Notes et mémoires du service géologique du Maroc ; N° 315.
- FLINCH, J. (1993), Tectonic evolution of the Gibraltar arc. PH. D. Thesis, Rice University, Houston, 381 p.
- IKAYA, (2004), Fiche technique. Centre de traitement et usine, Salé, Maroc. pp. 1-4.
- Litto, W. (2001). Apport de la sismique réflexion et des diagraphies à l'étude de l'évolution géodynamique d'un bassin Néogène à potentiel pétrolier. Exemple de la marge Nord du Bassin du Gharb (avant-pays du Rif, Maroc). Thèse, Université Mohammed V, Rabat, Maroc, 212p.
- MAYCHOU. S (2009) Étude morphostructurale et cartographie SIG du Rharb Septentrional et du Prérif (Maroc). Analyse sismotectonique et modélisation de la déformation de la région de Moulay Bousselham. Thèse ès- Sciences. Univ Chouaib Doukkali, El Jadida et Univ Bordeaux 1, Bordeaux. 197 p.
- SADIK. C , EL IMRANI. I & ALBIZANE. A (2012), Influence of chemical and mineralogical nature of clay and manufacturing process on the quality of ceramic tiles. MATEC Web of Conferences 2, Vol. 01016.
- WERNLI, R. (1987). Micropaléontologie du Néogène Post-Nappes du Maroc septentrional et description systématique des foraminifères planctoniques. Notes et Mém. Serv. Géol. Maroc, 331, 270 p.