

# USO DE CELULOSA MICROFIBRILADA EN MEZCLAS CEMENTÍCEAS

## USE OF MICROFIBRILLATED CELLULOSE IN CEMENTITIOUS COMPOSITES

Leandro E. Carrizo<sup>1</sup>

<sup>1</sup> Profesional LEMIT - CICPBA, La Plata, Argentina, [hormigones@lemit.gov.ar](mailto:hormigones@lemit.gov.ar)

### RESUMEN

La implementación de nanomateriales generados a partir de celulosa resulta de interés en el campo de los materiales cementíceos, tanto por sus propiedades físicas como por ser un material abundante y renovable. Las microfibras de celulosa producidas mediante refinamiento mecánico poseen una alta relación de esbeltez, una resistencia mecánica considerable y una importante capacidad de retener agua. En este trabajo se evalúa la influencia de celulosa microfibrilada (CMF) en las propiedades de mezclas cementíceas. Se elaboraron pastas de cemento con contenidos variables de CMF (0,1; 0,2 y 0,3 % en peso del cemento) a fin de determinar su influencia sobre la demanda de agua y el tiempo de fraguado. Además, se elaboraron morteros con los mismos contenidos de CMF, evaluándose en este caso extendido y contenido de aire en estado fresco, y resistencia a compresión y a flexión en estado endurecido. El uso de CMF redujo la fluidez e incrementó el tiempo de fraguado. Las resistencias a compresión y flexión resultaron afectadas con el uso de la CMF, aunque si se conserva la relación agua-cemento original, la adición de celulosa microfibrilada podría mejorar las propiedades resistentes de las mezclas cementíceas

**Palabras clave:** *Nanomateriales; Nanocelulosa; fluidez; Resistencia.*

### ABSTRACT

The implementation of nanomaterials generated from cellulose is of interest in the cementitious composites field, because of its physical properties as well as to be an abundant and renewable material. Cellulose microfibrils produced by mechanical refinement have a high slenderness ratio, a substantial mechanical strength and an important ability to retain water. In this work, the influence of a microfibrillated cellulose (MFC) in the properties of cementitious composites is evaluated. Cement pastes with different MFC content (0.1%, 0.2%, and 0.3% by cement weight) were made in order to determine its influence on

water demand and setting time. Moreover, mortars with the same MFC content were made and extended ratio and air content in the fresh state, and compressive and flexural strengths in hardened state were assessed. Using MFC reduced the fluidity and increased the setting time. The compressive and flexural strengths were affected by the use of MFC, although maintaining the original water/cement ratio, the addition of MFC would improve strength properties of cementitious composites.

**Keywords:** *Nanomaterials; Nanocellulose; Fluidity; Strength.*

## INTRODUCCIÓN

La celulosa es el polímero más abundante en la tierra, producido mediante fotosíntesis a una tasa de más de mil toneladas por año [1]. A partir de este polímero puede generarse un nanomaterial llamado nanocelulosa. Las formas más comunes de nanocelulosa son las nanofibras de celulosa, microfibras de celulosa y los nanocristales de celulosa. Los términos nanofibras y microfibras suelen utilizarse de manera intercambiable en la literatura [1,2], y si bien ambas se producen por refinamiento mecánico, las primeras incluyen un pretratamiento adicional a la celulosa para facilitar la fibrilación y obtener dimensiones menores. Para las microfibras las dimensiones pueden variar entre 10-100nm de ancho y 0,5-10  $\mu\text{m}$  de largo, mientras que las nanofibras tienen entre 4-20 nm de ancho y 0,5-2  $\mu\text{m}$  de largo. Ambas contienen regiones amorfas y regiones cristalinas (grado de cristalinidad de 51-69%). Los nanocristales se producen mediante tratamiento de hidrólisis ácida, sus dimensiones rondan los 3-5 nm de ancho por 50-500 nm de largo, y son altamente cristalinos (54-88%) [3,4].

Los materiales de nanocelulosa pueden ser sintetizados a partir de diversas materias primas: polímeros naturales, polímeros sintéticos, nanomateriales basados en carbono, nanomateriales semiconductores y nanomateriales compuestos. Algunas de las aplicaciones de la nanocelulosa incluyen generación y almacenamiento de energía, tratamiento de aguas y medioambiente, cuidado de la salud e ingeniería biomédica [5]. Las regiones cristalinas y su alta relación de esbeltez le confieren al material su resistencia, mientras que los abundantes grupos OH- en la cadena y su gran

área superficial le otorgan una gran capacidad de retener agua.

Cuando este tipo de productos es empleado en mezclas de base cementícea, los resultados hallados resultan con cierta variabilidad. De este modo, pueden encontrarse autores que informan aumentos en la resistencia a flexión que van desde el 20% hasta más del 100% [6-8], mientras que otros concluyen que la resistencia no se ve afectada por el uso de la CMF [9].

En este trabajo se evalúa de qué manera las principales propiedades de pastas de cemento y morteros resultan afectadas por la incorporación de una CMF, empleándola en cantidades que van desde 0,1 a 0,3% en peso del cemento. El material utilizado en este trabajo es presentado por su fabricante como celulosa microfibrilada (CMF). El producto está identificado como una suspensión acuosa al 2%, y se presenta en forma de gel, el cual fue incorporado a las mezclas sin ningún tratamiento previo.

## EXPERIENCIAS

### Materiales y metodología

Para la elaboración de las mezclas cementíceas se seleccionaron un cemento CPN40 de uso comercial y una arena silíceo natural de río, cuyas propiedades se presentan en la Tabla 1.

Tabla 1: Propiedades de la arena silícea natural.

Módulo de finura	1,92
Densidad (g/cm <sup>3</sup> )	2,64
Absorción (%)	0,13
Pasa tamiz 75µm (%)	0,2

Además, se empleó un aditivo comercial compuesto por una suspensión acuosa (con aspecto de gel, como puede apreciarse en la Figura 1, de microfibras de celulosa al 2%, que a los fines de este trabajo denominaremos celulosa microfibrilada (CMF). En la Figura 2 se muestran imágenes de microscopio del producto, donde puede verse que la longitud de las fibras varía en un rango de 50 a 200 µm, un ancho de 5 a 20 µm y una morfología variada.

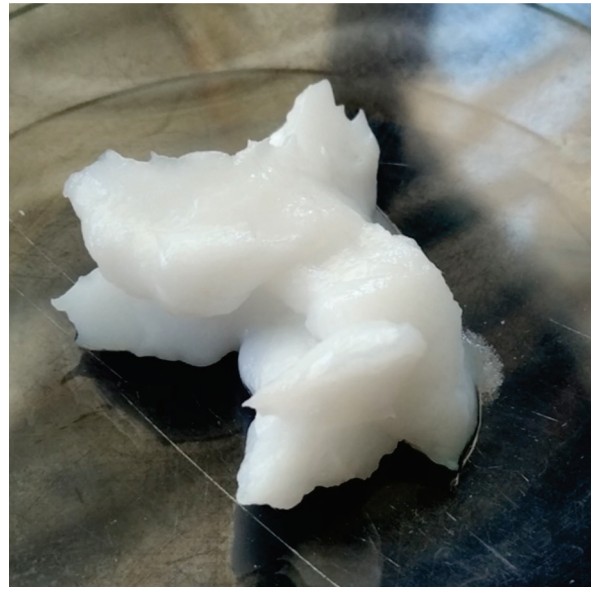


Figura 1: Suspensión acuosa de celulosa microfibrilada.

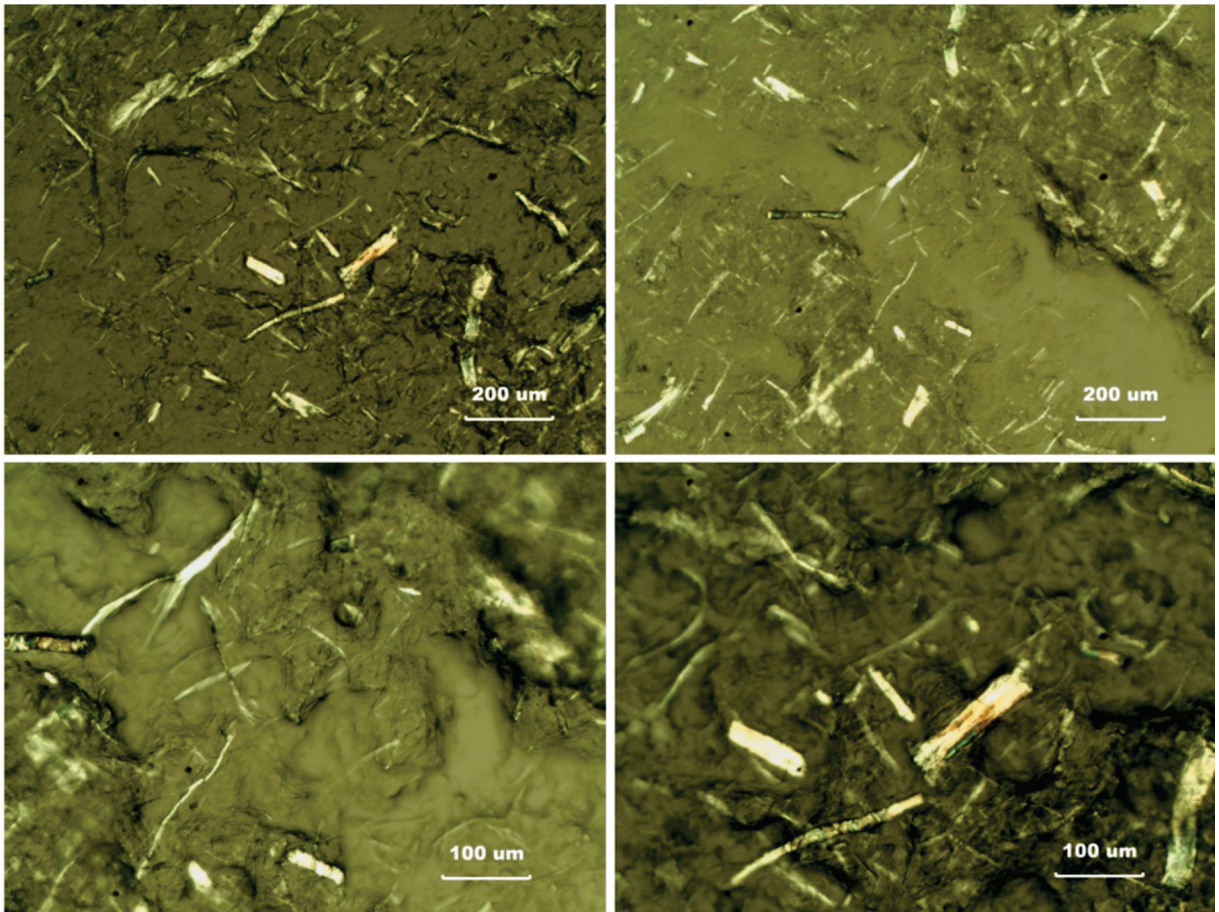


Figura 2: Imágenes de microscopio de celulosa microfibrilada.

En primer término se elaboraron pastas de consistencia normal para distintos contenidos (0,1; 0,2 y 0,3% en peso del cemento) del aditivo (P01, P02 y P03) y se determinó la demanda de agua (IRAM 1612) y el tiempo de fraguado (IRAM 1619). La demanda de agua es la cantidad de agua necesaria para elaborar una pasta de consistencia normal, la cual está definida como aquella que, sometida a la penetración de una sonda en el aparato de Vicat, arrojan un valor de  $6 \pm 1$  mm respecto a la placa base. El ensayo de tiempo de fraguado consiste en la determinación de los tiempos de fraguado inicial y final a partir de la distancia que penetra la sonda en la mezcla. El tiempo de fraguado inicial es el tiempo transcurrido entre el momento en que el cemento toma contacto con el agua y el momento en que la aguja de Vicat queda retenida a 5 mm del fondo del molde. Se considera que el fraguado finalizó cuando la aguja no produce impresión apreciable en la superficie de la probeta. Los resultados son comparados con una pasta patrón (PP) elaborada sin el uso del aditivo.

Posteriormente se elaboraron morteros a partir de utilizar el aditivo en estudio en los mismos tres porcentajes utilizados para las pastas: 0,1% (M01), 0,2% (M02) y 0,3% (M03) en peso del cemento. Además, se elaboró un mortero patrón (MP) sin aditivo. Las proporciones de los materiales se mantuvieron constantes en todos los casos, conservando una relación cemento:arena de 1:3 en peso y una relación agua/cemento de 0,50. Para la preparación de los morteros, el aditivo se dispersó en el agua de mezclado antes de agregar el resto de los materiales.

A cada uno de los morteros en estado fresco se les determinó el extendido y el contenido de aire naturalmente incorporado. El extendido estuvo dado por el incremento en el diámetro (2 mediciones ortogonales) de una muestra de mortero al ser moldeada en un molde troncocónico y luego sometida a 10 golpes en la mesa de caída

libre. El contenido de aire fue medido por el método de presión empleando un aerímetro para pastas y morteros.

Con cada mortero en estudio se moldearon 6 prismas de 4 cm x 4 cm x 16 cm, los cuales fueron desmoldados a las 24 horas y mantenidos en solución saturada con cal ( $T: 23 \pm 2^\circ\text{C}$ ) hasta la edad de ensayo. Se realizaron ensayos a las edades de 7 y 28 días después del moldeo, empleando 3 prismas a cada edad. Los prismas fueron ensayados a flexión simple y las mitades resultantes de dicho ensayo fueron utilizadas para evaluar la resistencia a compresión de acuerdo a la norma IRAM 1622. Cada valor informado de resistencia a la flexión es el promedio de 3 determinaciones, mientras que los valores informados de resistencia a compresión son el promedio de 6 determinaciones. Estos ensayos se realizaron en una prensa Instrom con una capacidad máxima de carga de 15 toneladas.

## RESULTADOS

En la Tabla 2 se presentan los resultados de la demanda de agua de las pastas de consistencia normal. Se observa una disminución en la demanda de agua con relación a la de la pasta de referencia (PP) conforme aumenta el contenido de CMF empleado, siendo aproximadamente del 3, 6 y 13% para las mezclas P01, P02 y P03, respectivamente. Este comportamiento debe ser atribuido a la forma en que se comercializa la CMF utilizada, es decir, constituyendo un gel de base acuosa.

Tabla 2: Demanda de agua para pastas de consistencia normal.

Pasta	Demanda de agua (%)
PP	25,4
P01	24,6
P02	24,0
P03	22,0

Los resultados del ensayo de tiempo de fraguado, expresados como la profundidad de penetración de la sonda de Vicat en función del tiempo, se presentan en la Figura 3, y los tiempos de inicio y fin de fraguado obtenidos a partir de los mismos se muestra en la Tabla 3.

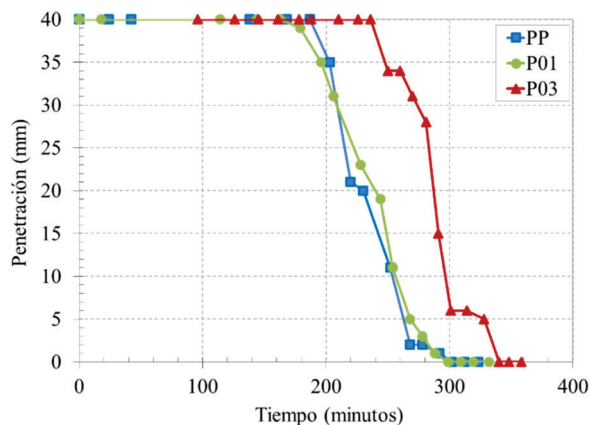


Figura 3: Profundidad de penetración con aguja de Vicat vs tiempo.

Tabla 3: Tiempos de fraguado.

Pastas	Fraguado inicial	Fraguado final
	(minutos)	
PP	203	323
P01	196	332
P03	244	358

El tiempo de fraguado inicial disminuyó un 4% y el tiempo de fraguado final aumentó alrededor del 3% para la P01, los cuales pueden ser considerados del mismo orden de magnitud para ambas pastas. En el caso de la P03 el tiempo de fraguado inicial aumentó un 26%, mientras que el tiempo de fraguado final se incrementó alrededor del 14% respecto a la pasta patrón. Si bien la demanda de agua de las pastas disminuyó con el incremento de CMF utilizada, el agua aportada por el gel de suspensión hizo que el contenido total de agua se incrementara en el mismo sentido. Por lo tanto, las diferencias en los tiempos de fraguado de la P03 deben ser vinculadas al incremento en la relación a/c con respecto a la PP. Al incrementarse

la relación a/c de las mezclas se generan mayores espacios entre los productos de hidratación del cemento que se van formando, requiriendo mayor tiempo para que se produzca la vinculación entre los mismos [10], modificándose los tiempos de fraguado.

En la Figura 4 se presentan los contenidos de aire determinados a cada uno de los morteros en evaluación. Los morteros M01 y M02 no presentaron cambios respecto al mortero patrón (MP), conteniendo alrededor del 5%, mientras que el mortero M03 presentó un 1% menos de aire incorporado, lo cual equivale a una disminución del orden del 20%.

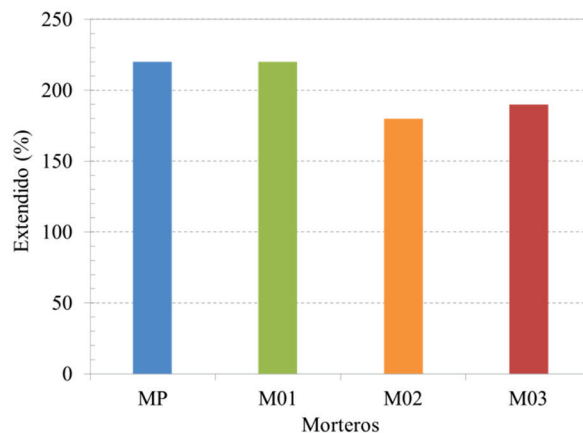


Figura 4: Contenido de aire en morteros.

La Figura 5 muestra los resultados del ensayo de extendido para cada mortero. Se observa que la fluidez del mortero M01 no presentó cambios significativos con respecto al mortero patrón (MP), mientras que los morteros M02 y M03 presentaron una disminución de dicha propiedad del orden del 20 y 15% respectivamente. Dicha disminución del extendido está directamente asociada al mayor contenido de CMF, siendo que las proporciones de los demás materiales permanecieron constantes. El empleo adicional de aditivos reductores del agua de mezclado (plastificantes o superfluidificantes) permitiría salvar el inconveniente de la pérdida de trabajabilidad de las mezclas.

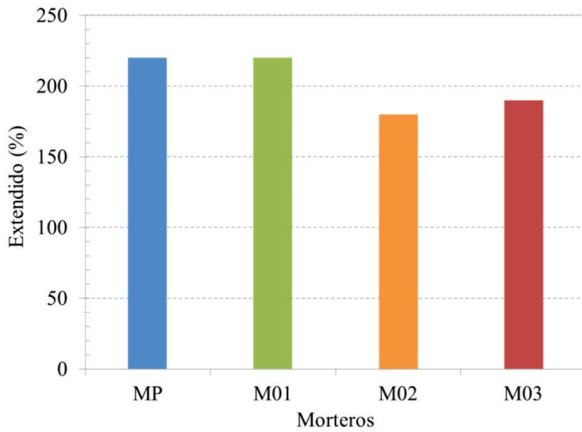


Figura 5: Extendido en morteros.

Los resultados de resistencia a la compresión se presentan en la Figura 6. A la edad de 7 días la resistencia disminuyó conforme aumentó el contenido de CMF, siendo dicha disminución del 37% para el M03. A la edad de 28 días, la resistencia del M01 resultó igual a la del MP, con un incremento relativo del 27% con respecto a la edad de 7 días, siendo del 12% en el caso del MP. Al aumentar el contenido de CMF se produjo una disminución de la resistencia, siendo del 14% para el M02 y del 26% para el M03. Esta disminución de resistencia puede explicarse en el aumento de la relación agua-cemento resultante de añadir la CMF en suspensión acuosa. Las variaciones relativas de resistencia respecto a las de 7 días resultaron mayores en todos los morteros con CMF, de alrededor del 28%.

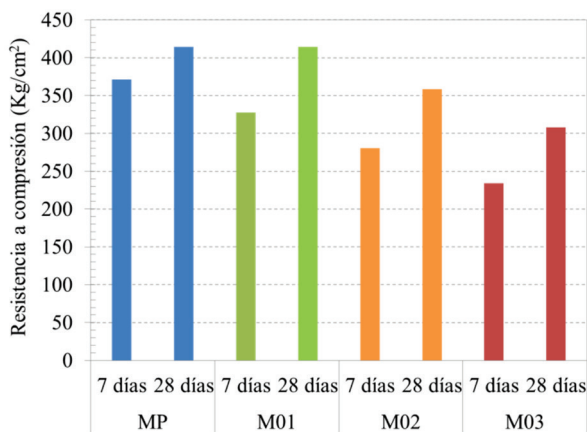


Figura 6: Resistencia a compresión.

En la Figura 7 se presentan los resultados de resistencia a la flexión. A la edad de 7 días el comportamiento en flexión es similar al observado en la resistencia a compresión. La resistencia a flexión disminuyó conforme aumentó el contenido de CMF utilizada, resultando 7, 15 y 18% menores a la del MP para los M01, M02 y M03 respectivamente. A la edad de 28 días, todos los morteros mostraron una evolución de la resistencia, de similar magnitud para los MP (27%) y M01 (28%), seguida del M02 (23%), y alcanzando el M03 un incremento relativo del 14%. Con relación al mortero patrón, las resistencias de los morteros M01, M02 y M03 estuvieron siempre por debajo de la misma en 6, 18 y 26% respectivamente. Nuevamente, esta disminución en la resistencia tendría su origen en el aumento de la relación agua-cemento generado por el agua que contiene el gel en el cual se encuentran suspendidas las microfibras.

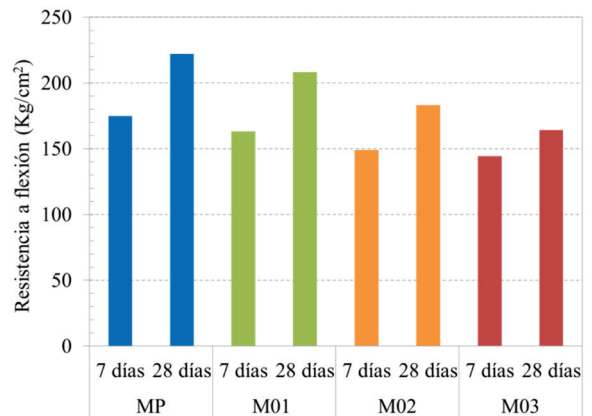


Figura 7: Resistencia a flexión.

## CONCLUSIONES

A partir de los estudios realizados sobre pastas y morteros elaborados con 0,1; 0,2 y 0,3%, en peso del cemento, de un aditivo a base de celulosa microfibrilada (CMF) al 2%, en los cuales se evaluaron propiedades en estado fresco y resistencia en estado endurecido, surge que:

La demanda de agua de las pastas de consistencia normal disminuyó al incrementarse el contenido de CMF utilizada, mientras que el tiempo de fraguado aumentó en el mismo sentido.

La fluidez de los morteros disminuyó para contenidos de CMF iguales o superiores al 0,2%, en tanto que el contenido de aire en estado fresco no resultó afectado de manera significativa por el uso del aditivo.

Las resistencias a compresión y a flexión se vieron afectadas negativamente con el incremento en el uso del aditivo, tanto a 7 como a 28 días, principalmente para contenidos de CMF iguales o superiores al 0,2%. Este efecto negativo puede atribuirse a un aumento de la relación agua-cemento de las mezclas, debido al aporte de agua por parte del producto que es comercializado como una suspensión de base acuosa, presentando un aspecto de gel.

Los resultados obtenidos sugieren que el uso de CMF puede mejorar las propiedades resistentes de las mezclas cementíceas si se corrige la relación agua-cemento a partir de considerar el agua que incorpora la suspensión acuosa de CMF. En este sentido, estudios adicionales son necesarios para verificar esta hipótesis y poder realizar una valoración más adecuada sobre el efecto del aditivo de CMF en las propiedades de las mezclas cementíceas, como así también en la interacción con otros tipos de aditivos habitualmente empleado en la elaboración de mezclas de base cementícea.

### AGRADECIMIENTOS

Al Ing. Gustavo Veloso, Profesional Asistente LEMIT-CIC, por la realización de los ensayos de resistencia, y a la Dra. Gabriela Coelho dos Santos por la obtención de las imágenes de microscopía.

### BIBLIOGRAFÍA

- 1.- Rol, F., Belgacem, M.N., Gandini, A., Bras, J., Recent advances in Surface-modified cellulose nanofibrils. *Progress in polymer science* 88, 2019, pp. 241-264
- 2.- FU, T., Moon, R. J., Zavattieri, P., Younblood, J., Weiss, W. J., Cellulose nanomaterials as additives for cementitious materials. *Cellulose-Reinforced nanofibre composites: production, properties and application*, 2017, pp. 455-483
- 3.- Brinchi, L., Cortana, F., Fortunati, E., Kenny, J.M., Production of nanocrystalline cellulose from lignocellulosic biomass: Technology and applications. *Carbohydrate Polymers* 94, 2013, pp. 154-169
- 4.- Moon, R.J., Martini, A., Nairn, J., Simonsen, J., Younblood, J., Cellulose nanomaterials review: structure, properties and nanocomposites. *Chemical Society Reviews* 40, 2011, pp. 3941-3994
- 5.- Kenry, Chwee Teck Lim, Nanofiber technology: current status and emerging developments. *Progress in polymer science* 70, 2017, pp. 1-17
- 6.- Ardanuy, M., Claramunt, J., Arevalo, R., Pares, F., Aracri, E., Vidal, T., Nanofibrillated cellulose (NFC) as potential reinforcement for high performance cement mortar composites. *BioResources* 7, 2012, pp. 3883-94.

- 7.- Onuaguluchi, O., Panesar, D.K., Sain, M., Properties of nanofibre reinforced cement composites. *Construction and Building Materials* 63, 2014, pp. 119–24.
- 8.- Mejdoub, R., Hammi, H., Suñol, J.J., Khitouni, M., M'nif, A., Boufi, S., Nanofibrillated cellulose as nanoreinforcement in portland cement: thermal, mechanical and microstructural properties. *Journal of Composite Materials* 51, 2016, pp. 2491-2503
- 9.- Nilsson, J., Sargenius, P., Effect of microfibrillar cellulose on concrete equivalent mortar fresh and hardened properties. Swedish Cement and Concrete Research Institute, Department of Civil and Architectural Engineering, 2011.
- 10.- Mehta, P.K., Monteiro, P.J.M., *Concrete. Microstructure, Properties, and Materials*. Third Edition, McGraw-Hill, 2006, 660p.