



HAL
open science

Articles du Prix René Houpert RUGC 2024

A. Khelidj, Jean Michel Torrenti, Franck Taillandier

► **To cite this version:**

A. Khelidj, Jean Michel Torrenti, Franck Taillandier. Articles du Prix René Houpert RUGC 2024. Rencontres Universitaires de Génie Civil 2024, 2024. hal-04607966

HAL Id: hal-04607966

<https://hal.science/hal-04607966>

Submitted on 11 Jun 2024

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

RUGC2024

Le Havre-Normandie

Articles du Prix René Houpert

Sous la direction de A. Khelidj



Sommaire

GUENSER Colin	<i>Méthode d'évaluation structurale post-incendie des monuments en pierre : application à la cathédrale Notre-Dame de Paris</i>	p1
ALNEMER Rana	<i>Percolation de gaz à travers un milieu granulaire initialement saturé : suivi spatio-temporel de l'interface et de la réponse mécanique</i>	p13
EL MOUSTAPHA Bouha	<i>Mesure du coefficient de migration à l'état stationnaire de géopolymères contenant des matériaux à changement de phase microcapsulés</i>	p23
AFOUTOU Jérôme	<i>Contribution de la mécanique de la rupture et des techniques ultrasonores pour l'inspection et la surveillance des ouvrages en bois</i>	p33
MASTON Olivier	<i>Effet de la biocalcification par MICP sur les propriétés mécaniques des argiles</i>	p43
VIEVARD Juliette	<i>Adsorption compétitive et non compétitive de six métaux sur des fibres de lin locales</i>	p53
GOMEZ Lucie	<i>Modélisation en transport réactif de la dégradation des granulats lors d'une réaction alcali-silice.</i>	p63
AIT-HAMADOUCHE Sofiane	<i>Suivi diélectrique de l'hydratation d'une pâte de ciment : une approche multidisciplinaire</i>	p73
BEKRINE Imane	<i>Approche couplée nanoindentation-imagerie pour la quantification des phases et la prédiction du fluage des matériaux cimentaires</i>	p83
EL ZOHBI Abdel Razzak	<i>Vers un dimensionnement plus robuste des systèmes de maintenance électrochimique</i>	p93
HAMROUNI Ichrak	<i>Hyro-thermal properties of flax fibers-raw earth composite building materials</i>	p103
ALI AHMAD Mohamad	<i>Modeling and experimental investigations of hydration and physical properties of slag blended cement after long curing period</i>	p113
MAINGUENAUD Florence	<i>Évaluation probabiliste du risque d'inondation dans les zones urbaines protégées par des digues</i>	p124
MARTIN-CAVILLE Camille	<i>Etude expérimentale et numérique des propriétés mécaniques et thermiques de bétons de co-produits coquilliers</i>	p134
DUBUIT Julie	<i>Des bactéries au service de la durabilité des structures en béton armé en environnement marin</i>	p144
MARAIS Caroline	<i>Formation d'un agglomérat calcomagnésien en écoulement à base de granulats recyclés pour la protection côtière.</i>	p154
HOEUN Sela	<i>Influence of adhesion between the main cement phases on the mechanical behavior of hydrated cement paste</i>	p164
HAWI Hanan	<i>Transport of Particles in Fractured Chalk: Effect of Flow Velocity, Fracture Orientation and Fracture Aperture</i>	p174

IBRAHIMI Layla	<i>Modèle chemo-mécanique de carbonatation et de lixiviation du béton dans des conditions hydriques et thermiques variables</i>	p183
PIGEOT Lucile	<i>Etude de l'effet de la pression de cure sur la microstructure d'un limon stabilisé à la chaux et au liant hydraulique par tomographie in situ à rayons X.</i>	P194
FAREZ Younes	<i>Optimisation des propriétés mécaniques et de l'impact environnemental de matériaux à base de terre crue stabilisée par un liant géopolymère pour des applications en travaux publics</i>	p204
TABCHOURY Rita	<i>Nouveau dispositif de fluage pour l'évaluation de l'effet de la précontrainte biaxiale sur les déformations différées du béton</i>	p214
SHAMAS Youssef	<i>Experimental investigation on the threshold saturation degree for the liquefaction potential of unsaturated soil</i>	p224
NASSAR Sarah	<i>Conception et caractérisation de blocs de terre comprimée à base de sédiments de dragage</i>	p234
RIBEIRO NOGUEIRA Breno	<i>Mécanique de l'endommagement non-local avec interactions évolutives pour la modélisation des matériaux quasi-fragiles : endommagement anisotrope et approche Eikonale à gradient implicite</i>	p244
DAHER Mohamad	<i>Etude du rôle des déformations locales résultant de sollicitations hydriques dans l'altération des pierres de construction par desquamation en plaques</i>	p254
SAADE Chedid	<i>Modélisation physique et numérique du comportement d'un remblai construit sur un sol liquéfiable soumis à un séisme</i>	p264
GOUTIERE Myriam	<i>Optimisation des propriétés d'usage, de la durabilité et de la qualité environnementale d'un isolant biosourcé pour le bâtiment</i>	p274

Méthode d'évaluation structurale post-incendie des monuments en pierre : application à la cathédrale Notre-Dame de Paris

Colin GUENSER¹

¹LMDC, Université de Toulouse, INSA/UPS Génie Civil, 135 Avenue de Rangueil, 31077 Toulouse cedex 04 France.

RÉSUMÉ La maçonnerie constituait jusqu'au XIX^e siècle le moyen privilégié de bâtir durablement. Aujourd'hui, les questions relatives à l'aptitude au service en tant qu'Établissement Recevant du Public des bâtiments anciens après un incendie restent sans réponse. La rénovation de la cathédrale Notre-Dame de Paris suite à l'incendie de 2019 en fait un sujet d'actualité. Dans le cadre du projet ANR DEMMEFI, une nouvelle approche numérique pour l'analyse structurale de la maçonnerie est développée, combinant les approches éléments finis (code Cast3M) et éléments discrets (code LMGC90). Les travaux de cette thèse consistent en l'élaboration d'une méthode de diagnostic structurel des structures maçonnées ayant subi un incendie. Les différentes phases de cette méthode sont décrites : (i) phase de recueil des données historiques et techniques de l'ouvrage, (ii) phase comprenant des essais expérimentaux *in situ* et en laboratoire pour le calage numérique d'une loi de comportement thermomécanique homogène de la maçonnerie, et (iii) phase de construction d'un jumeau numérique de l'ouvrage pouvant être utilisé à des fins de diagnostic (évaluation des dommages et de la stabilité post-incendie de la cathédrale Notre-Dame de Paris) ou de pronostic (évaluation de la stabilité future et des renforcements).

Mots-clefs maçonnerie, incendie, caractérisation thermomécanique, homogénéisation, jumeau numérique

I. INTRODUCTION

La maçonnerie de pierre constituait le principal moyen durable de construire les édifices jusqu'au XIX^e siècle en Île-de-France, en témoignent les nombreux édifices historiques en pierre toujours existants et parfois accueillant encore du public. Ces ouvrages sont malheureusement parfois victimes de situations accidentelles comme les incendies du parlement de Bretagne en 1994 ou l'hôtel de ville de la Rochelle en 2013, ou plus récemment la cathédrale Notre-Dame de Paris la nuit du 15 avril 2019. Après de tels événements, la démolition-reconstruction d'ouvrages patrimoniaux en pierre, même partielle, n'est pas envisageable étant donné leur importance religieuse, culturelle ou historique, à moins d'apporter la preuve que l'ouvrage n'est plus exploitable ou présente un risque pour ses occupants. Après l'incendie, la réhabilitation est donc à privilégier, et la preuve de leur stabilité à justifier.

Dans le cas des édifices en pierre, le diagnostic post-incendie soulève de nombreux défis techniques et verrous scientifiques. En effet, le seul règlement encadrant la construction en maçonnerie se limite aux éléments verticaux (EC6 et DTU 20). Il n'existe pas d'équivalent concernant le diagnostic ni même la construction de voûtes maçonnées, élément pourtant central de l'architecture monumentale historique. Le manque de données couvrant à la fois la diversité des matériaux présents et l'effet de la température freine le développement d'une méthode consensuelle d'analyse structurale de la maçonnerie sous hautes températures. Peu d'études traitent ce sujet aujourd'hui. Nous pouvons citer par exemple Al Nahhas et al., 2007; Fantilli and Burello, 2022; Nguyen

et al., 2009, mais la variation de matériaux et de résultats pointe plusieurs éléments principaux faisant barrière à la mise en place d'une telle méthode (FIGURE 1). Tout d'abord, la maçonnerie est un composite constitué de matériaux adoucissants et aux comportements hautement non linéaires et parfois anisotropes, ce qui rend complexe le calcul prédictif de sa réponse mécanique sans informations préalables. La présence d'interfaces constituant des zones de faiblesse préférentielle complexifie de surcroît la modélisation et le calcul numérique des structures maçonnées. Enfin, le manque de connaissances sur le comportement mécanique des matériaux constitutifs de la maçonnerie (pierre aussi bien que mortier de chaux) suite à un cycle de chauffage-refroidissement à haute température est le point clé empêchant jusqu'à présent le calcul de la structure sous incendie, et par extension la réalisation d'un diagnostic post-incendie. La création d'un jumeau numérique de l'ouvrage permettrait à la fois de justifier sa stabilité post-incendie, mais pourrait également servir d'outil d'aide à la décision des maîtres d'œuvres et d'ouvrages en testant l'efficacité de différentes techniques de renforcement. À ce jour, réaliser le jumeau numérique d'un monument dans son entièreté en discrétisant les joints et rendant compte de phénomènes complexes 3D implique des temps de calculs incompatibles avec les besoins d'études classiques. Les calculs aux éléments finis non-linéaires permettent de faire des calculs homogénéisés plus rapides et sont les plus indiqués pour cette tâche.

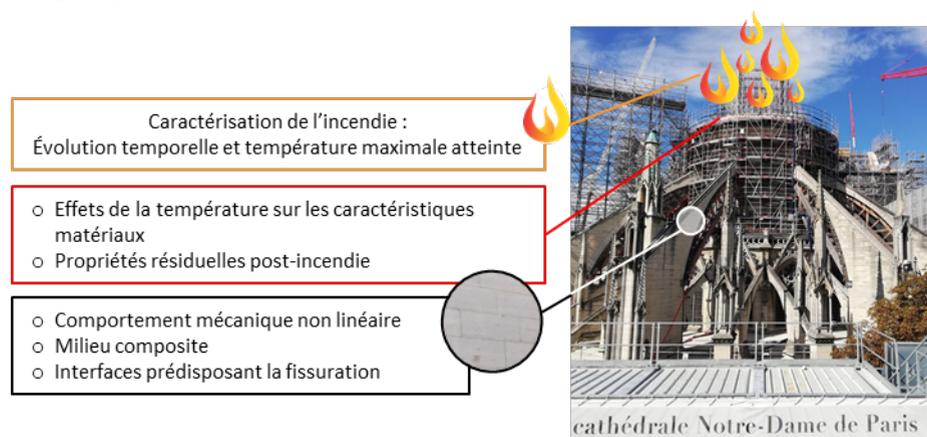


FIGURE 1 Obstacles limitant le diagnostic structurel post-incendie des structures maçonnées

Le chantier de reconstruction-réhabilitation en cours sur la cathédrale Notre-Dame de Paris suite à l'incendie du 15 avril 2019 place la question de l'évaluation structurelle post-incendie sur le devant de l'actualité. Les travaux de thèse présentés ici s'inscrivent dans le projet de recherche DEMMEFI financé par l'ANR, avec pour but de répondre à cette question.

La thèse dont l'ensemble de la méthodologie est présenté ici a pour objectif de développer une méthode de diagnostic structurel résiduel post-incendie des édifices en maçonnerie (FIGURE 2), et de la mettre en œuvre dans le cas de la cathédrale Notre-Dame de Paris. Cette méthodologie comprend trois phases : (i) Synthèse des informations historiques et techniques sur le monument et les matériaux qui le composent, (ii) Essais *in situ* et en laboratoire et calage numérique de la loi de comportement thermomécanique homogène de la maçonnerie, et enfin (iii) construction et exploitation d'un jumeau numérique 3D de l'ouvrage.

La 1^{ère} phase consiste à rassembler toutes les informations disponibles sur l'ouvrage réel en termes de géométrie, de matériaux, de détails constructifs et de phasage de construction à l'aide d'une démarche historique de recherche documentaire. Ces informations sont utiles pour identifier les matériaux présents et leur possible variabilité, pour cibler les éléments critiques de la structure et le gradient thermique subi, pour relever la géométrie de la structure en vue de sa modélisation, ou enfin pour identifier les problématiques concomitantes comme par exemple l'effet de l'eau d'extinction de l'incendie.

La 2^{ème} phase a pour but l'obtention d'une loi de comportement homogénéisée de la maçonnerie restituant les conséquences mécaniques de l'élévation progressive de la température pendant l'incendie et son refroidissement lors de l'extinction, jusqu'à retour à température ambiante. Tout d'abord, une campagne d'essais expérimentaux est menée à la fois *in situ* et en laboratoire, visant la caractérisation des propriétés thermiques et mécaniques de pierres et de mortiers équivalents à ceux observés *in situ*, à température ambiante et après chauffage-refroidissement jusqu'à 1000°C. Ces propriétés sont essentielles pour alimenter des modèles de comportement thermomécanique non linéaire des matériaux tels que ceux utilisés dans la présente recherche et précisés ultérieurement. Dans un second temps, lesdits modèles sont validés à l'échelle d'un mur avec une approche bloc-à-bloc à l'aide de données expérimentales issues de la littérature (Pham et al., 2022). Deux méthodes de calcul sont exploitées, l'une aux éléments finis (dite MEF), et l'autre hybride éléments finis / éléments discrets (MEF / MED) spécialement développée dans le cadre du projet DEMMEFI. Enfin, un processus d'homogénéisation numérique des propriétés du matériau maçonnerie est réalisé sur un Volume Élémentaire Représentatif (VER). La loi de comportement homogénéisée doit restituer les conséquences mécaniques de l'élévation progressive de la température pendant l'incendie et son refroidissement lors de l'extinction, jusqu'à retour à température ambiante.

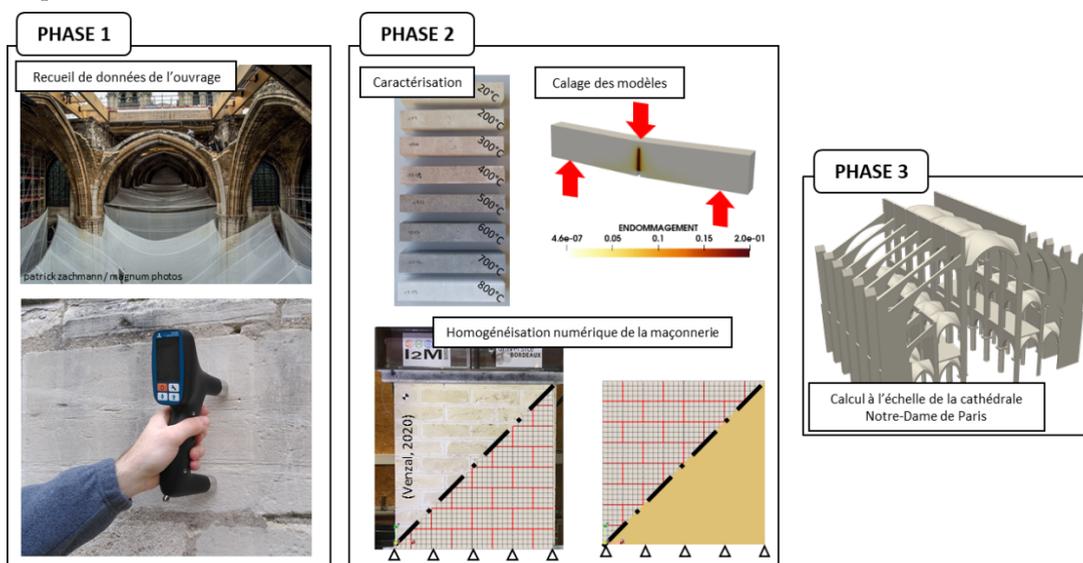


FIGURE 2 Méthodologie adoptée

Dans la 3^{ème} et dernière phase, un jumeau numérique de la cathédrale Notre-Dame de Paris est construit grâce à la loi de comportement homogénéisée, fidèle aux variations de températures, et à la géométrie 3D. Il s'agit alors d'exploiter ce jumeau numérique pour reproduire l'historique complet de l'incendie de la cathédrale jusqu'à obtenir une structure virtuelle endommagée comme la structure réelle. Ce jumeau peut être utilisé à des fins de diagnostic structurel post-incendie, mais permet aussi d'établir des pronostics face à de possibles modifications de la structure comme des renforcements, des tassements d'appui ou d'autres charges accidentelles.

II. CHOIX DES MATERIAUX

Dans un souci de conservation maximale de la structure dans son état original, le prélèvement d'échantillons *in situ* est fortement limité. Les méthodes de caractérisation des matériaux en laboratoire nécessitent cependant une grande quantité de matériau, une autre source d'approvisionnement est donc nécessaire. Dans la phase 1 de la méthode, l'étude bibliographique de précédentes analyses réalisées dans le cadre du chantier de la cathédrale Notre-Dame de Paris nous permet d'argumenter le choix des matériaux équivalents, en confirmant leur proche similitude avec les matériaux observés *in situ*.

Les voutains, qui composent la majeure partie des voûtes sexpartites, sont les éléments les plus critiques de la structure du fait de leur élancement, leur géométrie complexe et leur exposition directe à l'incendie. C'est donc cette partie de l'ouvrage qui a été sélectionnée pour faire le choix des matériaux représentatifs. Les autres parties de l'ouvrage seront donc considérées dans un premier temps comme constituées des mêmes matériaux, et pourront faire l'objet d'analyses de sensibilité ultérieures en se basant sur (Domede et al., 2024). Le rapport d'identification des faciès pétrographiques (Dabat et al., 2021a) donne des informations sur l'origine des roches : les voutains sont constitués de calcaires tendres de différentes provenances, parmi lesquelles la carrière de Saint-Maximin, toujours en activité. Le rapport de caractérisation (Dabat et al., 2021b) précise quant à lui les principales caractéristiques à l'état sain (masse volumique, vitesses des ondes ultrasonores, résistance en compression, module d'élasticité statique), ce qui oriente le choix de la nuance « Ferme Fine ».

Dans la même démarche, une formulation de mortier est choisie sur la base d'une étude de caractérisation physicochimique des mortiers de la cathédrale Notre-Dame de Paris (Mechling and Baquet, 2022). Ainsi, une chaux faiblement hydraulique (NHL2) est mélangée à du sable roulé alluvionnaire 0/3,15 dans un rapport S/C=5,09. L'apport en eau est ajusté pour la maniabilité après concertation avec un compagnon tailleur de pierre (E/C = 1.19), et une période de cure de 90 jours est observée pour obtenir un degré d'hydratation avancé.

Ces matériaux sont conditionnés sous les différents formats requis par les protocoles expérimentaux (FIGURE 3). Des cylindres sont utilisés pour la réalisation d'essais de compression, et des prismes pour des essais de flexion trois points. Enfin, des éprouvettes composites constituées de deux cubes de pierre liés par un joint de mortier (duo) sont également utilisées pour des essais de compression pour mesurer l'effet de confinement du mortier. Des éprouvettes de pierre de mêmes dimensions que les duos ont également été menées à rupture en compression ce qui a permis de quantifier l'effet d'échelle de la pierre de Saint-Maximin et de compléter les informations bibliographiques relativement peu fournies concernant ce type de calcaire.

III. MODELISATION NUMERIQUE DU MATERIAU MAÇONNERIE

Plusieurs étapes intermédiaires sont nécessaires avant de calibrer un modèle numérique homogénéisé reproduisant la structure dans son état thermomécanique post-incendie. Dans la phase 2, des mesures *in situ* de vitesses des ultrasons réalisées dans le cadre du projet DEMMEFI (Domede et al., 2024) ont permis de comparer les matériaux choisis avec ceux de la cathédrale, ce qui confirme les choix de matériaux notamment en distinguant les différentes parties structurelles de l'ouvrage. Puis, une étude expérimentale en laboratoire a permis d'alimenter les modèles numériques. Ces modèles sont utilisés successivement à l'échelle du matériau, puis de l'élément structurel (mur), et enfin à l'échelle de la structure.

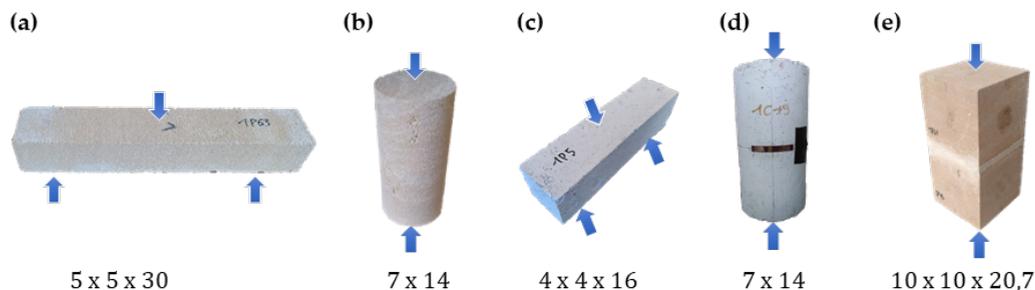


FIGURE 3 Format (cm) des échantillons de pierre (a, b), de mortier (c, d) et des composites (e)

A. Caractérisation mécanique et thermique des matériaux

Les protocoles expérimentaux mis en œuvre servent deux objectifs principaux. En premier lieu, ils permettent d'établir un modèle mécanique pré-pic et post-pic des matériaux étudiés sans phase de chauffage. En second lieu, l'évolution des caractéristiques mécaniques est établie en fonction de la température. Les mêmes protocoles de mesures sont donc répétés sur des éprouvettes endommagées thermiquement, après un cycle de chauffage-refroidissement.

Le protocole d'endommagement thermique des éprouvettes est constitué (i) d'une phase de chauffage à la vitesse de 5°C/min jusqu'à la température recherchée, (ii) d'un palier de 5 heures maintenu à cette température, puis (iii) d'un refroidissement naturel et lent. Ces dispositions permettent, sinon de les supprimer, au moins de réduire au maximum les effets indésirables de dilatations thermiques différentielles en assurant une montée en température la plus homogène possible au sein de l'échantillon. Les éprouvettes sont testées après retour à température ambiante.

En plus des mesures non destructives de vitesses des ultrasons déjà citées, des méthodes destructives sont utilisées pour caractériser, jusqu'à rupture, les propriétés quasi-statiques des matériaux. Le comportement en compression est obtenu par des essais de compression uniaxiale sur les éprouvettes cylindriques. Les éprouvettes sont équipées de jauges de déformation de manière à renseigner le module d'élasticité, le coefficient de Poisson et la dilatance, caractéristique clé du comportement non linéaire des géomatériaux. Cet essai, inspiré de la norme en vigueur pour les pierres naturelles (NF EN 14580), est asservi en déplacement plutôt qu'en contrainte pour permettre une acquisition des données post-pic. Le phénomène de rupture fragile est évité dans la mesure du possible grâce à une vitesse de chargement suffisamment lente (0.1 mm/min). Le comportement en traction est obtenu par des essais de flexion trois points asservis en déplacement également à la vitesse de 0.1 mm/min. Cela permet notamment d'obtenir l'énergie de fissuration en traction. Enfin, des mesures des caractéristiques thermiques (conductivité thermique, capacité thermique massique) sont menées sur les matériaux à différentes températures afin de pouvoir reproduire la propagation non linéaire de la chaleur au cours de l'incendie.

B. Méthodes de modélisation numérique

La méthode proposée d'évaluation post-incendie des monuments en pierre repose entre autres sur des outils numériques. Dans un premier temps, la phase expérimentale décrite précédemment permet de renseigner les paramètres matériaux des blocs et du mortier utiles à l'alimentation des modèles numériques (échelle du matériau pierre et du matériau mortier). Puis une validation du modèle est effectuée à l'échelle d'un mur soumis à un feu réglementaire. La phase 3 de modélisation à l'échelle de la cathédrale Notre-Dame de Paris n'est pas achevée à l'heure de la rédaction ; Les résultats ne seront pas présentés dans cet article.

i. À l'échelle du matériau

Dans la présente étude, une évolution du modèle ENDO3D (Sellier, 2018) est réalisée pour modéliser les comportements thermomécaniques de la pierre et du mortier. Ce modèle développé dans le code éléments finis Cast3M (CEA) est un modèle mécanique élasto-plastique anisotrope avec endommagements sur des éléments volumiques. Il restitue incrémentalement l'endommagement thermique du matériau à l'aide d'une fonction de réduction des caractéristiques mécaniques $r(X)$ appliquée sur les caractéristiques mécaniques X (module d'élasticité et résistances), dépendant de la température maximale atteinte θ_{max} (voir équation 1). L'évolution de certains paramètres du modèle, tels que les résistances, le module d'élasticité et le coefficient de Poisson, est calée à partir des mesures expérimentales réalisées. D'autres paramètres du modèle non mesurables expérimentalement sont calés numériquement par analyse inverse des mesures contraintes-déformations expérimentales. Une optimisation de ces paramètres est réalisée par la méthode des moindres carrés.

$$r(X) = p + (1 - p) \exp\left(\frac{\theta_{max} - \theta_{th}}{\theta_k - \theta_{th}}\right)^m \quad \text{si } \theta > \theta_{th} \quad (1)$$

$p \in [0; 1]$: part de la résistance résiduelle suite à un endommagement thermique

θ_{th} : température de début d'endommagement thermique

θ_k : température caractéristique d'endommagement thermique

m : coefficient de non linéarité pour l'endommagement thermique

ii. À l'échelle d'un élément de structure

À l'échelle du matériau, les modèles ainsi définis permettent de reproduire les caractéristiques mécaniques intrinsèques de la pierre et du mortier en fonction de la température. Or, les désordres observés sur les structures après un incendie sont en grande partie d'ordre structurel (macro-fissuration, délamination, déplacements). Une phase de modélisation à l'échelle d'un élément de structure soumise à un gradient de température est donc nécessaire pour valider les modèles matériaux établis précédemment. Il est nécessaire pour cela de simuler des données expérimentales concernant un élément de structure maçonné soumis à des sollicitations thermiques et mécaniques. Celles-ci sont issues d'essais réalisés au CSTB et publiés (Pham et al., 2022) dans lesquels les matériaux sont de caractéristiques similaires et de provenance très proche de ceux étudiés ici. Dans ces essais, deux murs de maçonnerie en pierre (3 m x 3 m) sont soumis à un incendie normalisé (EN ISO 834-1) (voir FIGURE 4a). Un des deux murs est chargé verticalement dans le plan du mur à 1.25 MPa.

Ils sont simulés au moyen de deux approches de calcul, l'une utilisant la méthode des éléments finis (MEF - code Cast3M) l'autre la méthode hybride (MEF/MED - LMGC90 hybride, couplage développé pour l'ANR DEMMEFI). Dans les deux cas, la comparaison des résultats expérimentaux (profils de température, relevés de fissuration et déplacements) et des résultats du calcul pas-à-pas servent d'éléments de validation du modèle.

Avec la MEF, la modélisation est bloc-à-bloc micro-détaillée. Les blocs de pierres et les joints de mortiers sont intégralement maillés par des éléments volumiques (voir FIGURE 4b). Le maillage utilisé pour le modèle ENDO3D est constitué de 4182 hexahédres, et le modèle hybride 1800 points de contact.

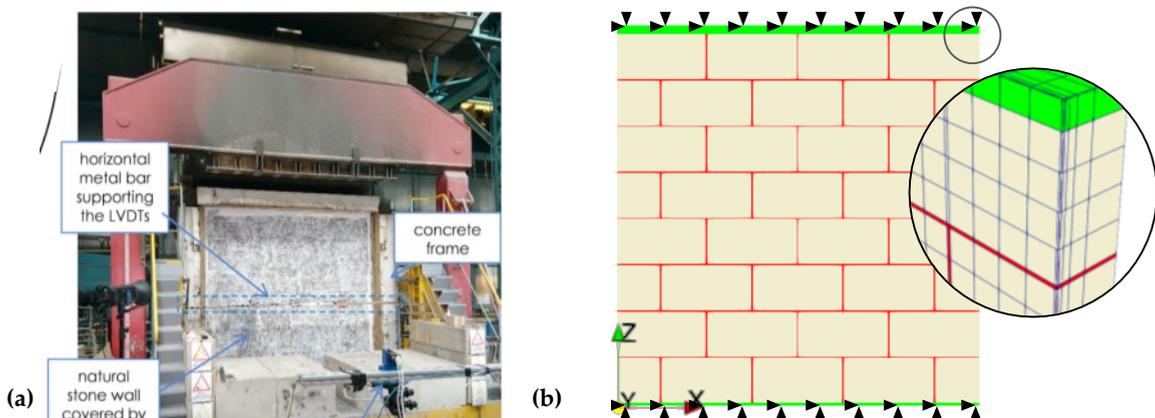


FIGURE 4 (a) installation expérimentale du mur (Pham et al., 2022), et (b) maillage utilisé pour la modélisation ENDO3D du mur

iii. Homogénéisation et passage à l'échelle de la structure

La cathédrale Notre-Dame de Paris est une structure complexe et de grande envergure. En considérant la puissance de calcul nécessaire aux modèles hétérogènes EF et hybrides sur des petites structures, il n'est pas raisonnable de réaliser un tel calcul de la structure de la cathédrale entière. La méthodologie proposée est d'homogénéiser le matériau maçonnerie en utilisant les modèles EF et hybride, pour permettre une simulation plus rapide de la structure entière avec un modèle continu homogène ENDO3D.

À cette fin, un Volume Élémentaire Représentatif (VER) de la maçonnerie, inspiré de la norme (NF EN 1052-1), est proposé (FIGURE 5a). Le VER est simulé sous des sollicitations dans le plan (traction, compression et cisaillement) et des courbes de comportement pré-pic et post-pic en force-déplacement en sont tirées. Les sollicitations hors-plan ne sont pas considérées dans le processus d'homogénéisation. Une étude paramétrique est ensuite réalisée sur un modèle continu homogène avec ENDO3D, dont les paramètres sont calés par analyse inverse et optimisés par la méthode des moindres carrés. L'étude est répétée aux températures de 20°C, 300°C et 600°C afin de déterminer les paramètres homogènes de dilatation thermique et d'endommagement thermique.

Le modèle homogène ainsi constitué, sa validation thermomécanique est nécessaire avant son déploiement sur la structure de la cathédrale Notre-Dame de Paris. Pour ce faire, un calcul homogénéisé des murs soumis à l'incendie est réalisé. Enfin, le jumeau numérique peut être construit en associant les paramètres matériaux homogènes à la géométrie de la cathédrale.

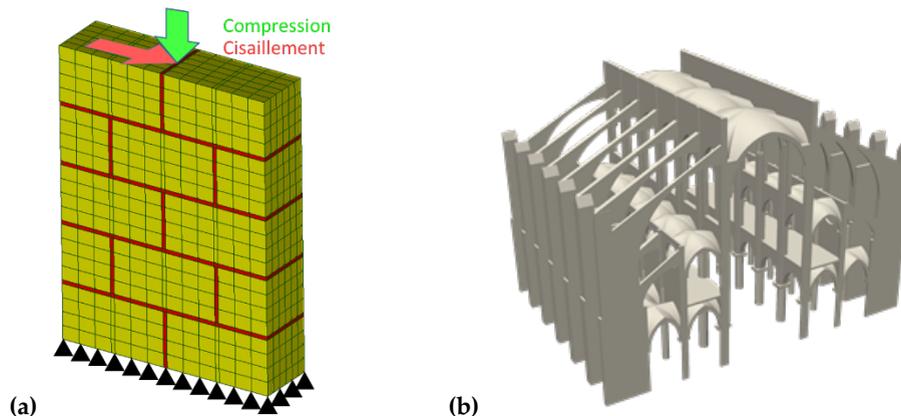


FIGURE 5 (a) Maillage du VER utilisé pour le processus d'homogénéisation, avec les sollicitations appliquées, et (b) géométrie de la Cathédrale Notre-Dame de Paris (Stono)

IV. RESULTATS ET DISCUSSION

Les résultats décrits ci-après, obtenus au moyen de campagnes successivement expérimentales et numériques, ont comme objectif de combler le manque de connaissances concernant notamment le comportement mécanique des matériaux soumis à une élévation et une baisse de température. Les deux modèles mécaniques décrits précédemment sont ensuite mis en œuvre afin de reproduire numériquement la maçonnerie, à l'échelle du matériau comme à l'échelle de la structure.

A. Caractérisation des matériaux

Le premier obstacle à la réalisation d'un diagnostic post-incendie réside dans la connaissance des caractéristiques mécaniques des matériaux dans leur état sain ainsi que dans leur état endommagé post-incendie.

Les mesures réalisées et présentées succinctement dans la

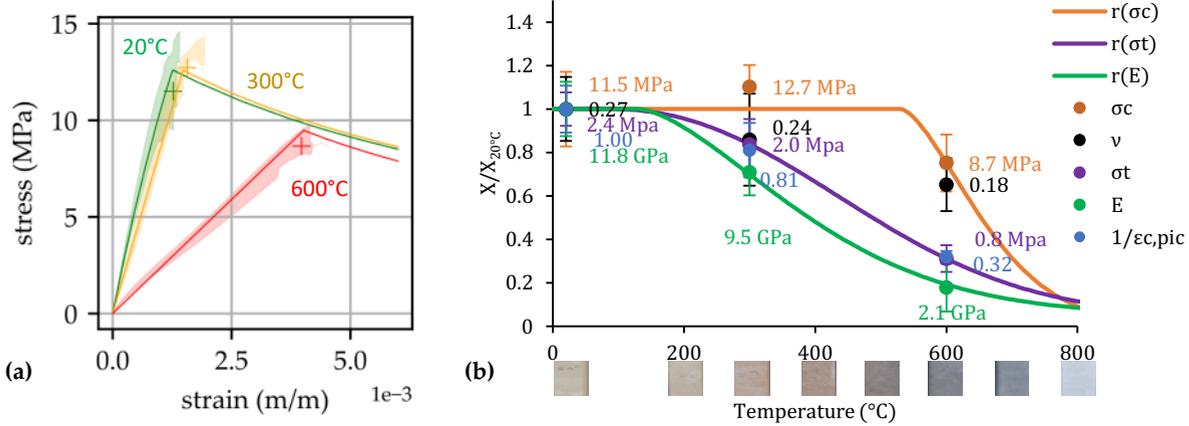


FIGURE 6 répondent à ce besoin. Les mesures, réalisées aux températures de 20°C, 300°C et 600°C, montrent la diminution de la rigidité E et des résistances σ_c et σ_t de la pierre, tandis que la déformation au pic de résistance $\epsilon_{c,pic}$ augmente fortement. Les caractéristiques thermiques (conductivité thermique λ , capacité thermique massique c_p) sont mesurées à 20°C et à chaud jusqu'à la température de 500°C. Le paramètre λ diminue de manière quasi linéaire de 0.77 W/m.K à 0.56 W/m.K, tandis que c_p augmente de 0.78 à 1.73 J/g.K. Enfin, les paramètres de dilatation thermique sont tirés de mesures sur une roche de même type et de même provenance (Montier, 2021).

B. Résultats numériques

i. Calage du modèle ENDO3D

Le modèle ENDO3D permet de décrire le comportement du matériau en tenant compte des phénomènes complexes tels que la dilatance et les endommagements pré-pic et post-pic avec de l'anisotropie induite. Les mesures présentées précédemment permettent de renseigner certains paramètres de manière explicite, particulièrement les paramètres d'élasticité et de rupture : module d'élasticité $YOUN$, coefficient de Poisson NU , résistances RC et RT , déformations aux pics de résistances EPC et EPT .

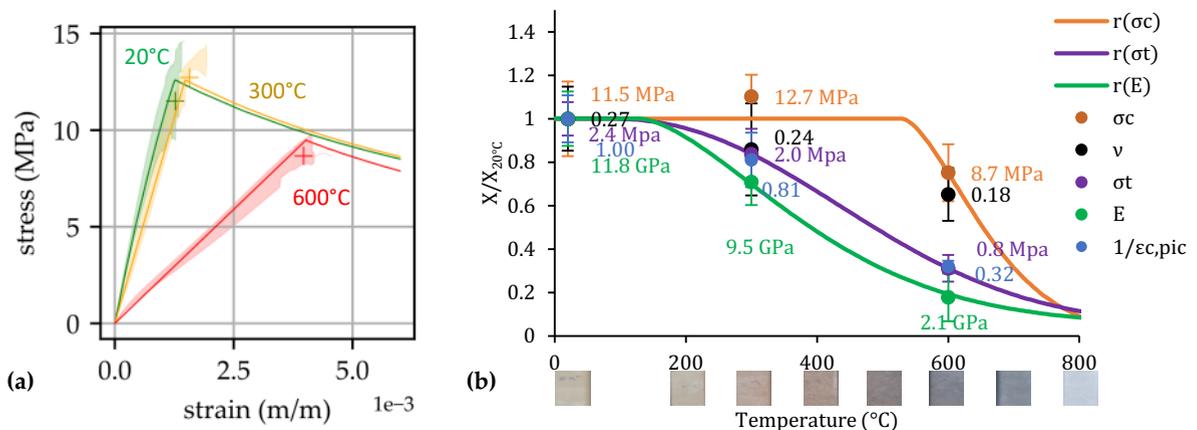


FIGURE 6 (a) Comportements de la pierre en compression (incertitude expérimentale en hachure pleine, modèle en trait continu) et (b) Évolutions en fonction de la température des principales caractéristiques mécaniques mesurées sur la pierre et des réducteurs des caractéristiques dans le modèle ENDO3D.

En revanche, d'autres paramètres ne sont pas explicites, tels que le coefficient de confinement $DELTA$, la dilatance $BETA$, l'énergie de fissuration en traction GFT , le paramètre d'endommagement pré-pic $DCPK$ et le paramètre $EKDC$ caractérisant le profil post-pic en compression. À l'issue d'une étude paramétrique, ces paramètres ont été obtenus par analyse inverse et les modèles mécaniques de la pierre et du mortier ont été complétés. Le **TABLEAU 1** présente les paramètres finalement renseignés dans le modèle ENDO3D pour la pierre de Saint-Maximin. Les paramètres sont décrits exhaustivement dans (Sellier, 2018).

TABLEAU 1 Paramètres du modèle ENDO3D pour la pierre de Saint-Maximin. *Italique : paramètres obtenus par analyse inverse*

RHO	NU	YOUN	RC	EPC	RT	EPT	<i>DELTA</i>	<i>BETA</i>	<i>DCPK</i>	<i>EKDC</i>	<i>GFT</i>
kg/m ³	.	Mpa	Mpa	m/m	MPa	m/m	J/m ²
1740	0.26	1220	12.6	1.27‰	1.75	0.2‰	0.7	0.7	0.135	2.0E-02	9.50

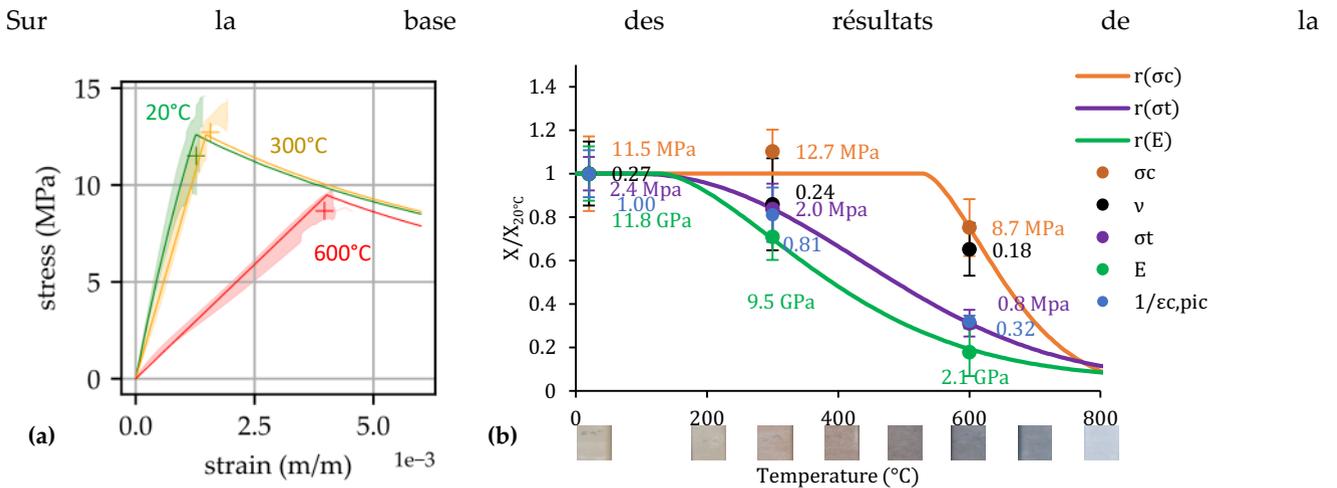


FIGURE 6, les fonctions réductrices de caractéristiques $r(E)$, $r(\sigma_c)$ et $r(\sigma_t)$, implémentées dans le modèle ENDO3D selon l'équation (1), ont été calées (

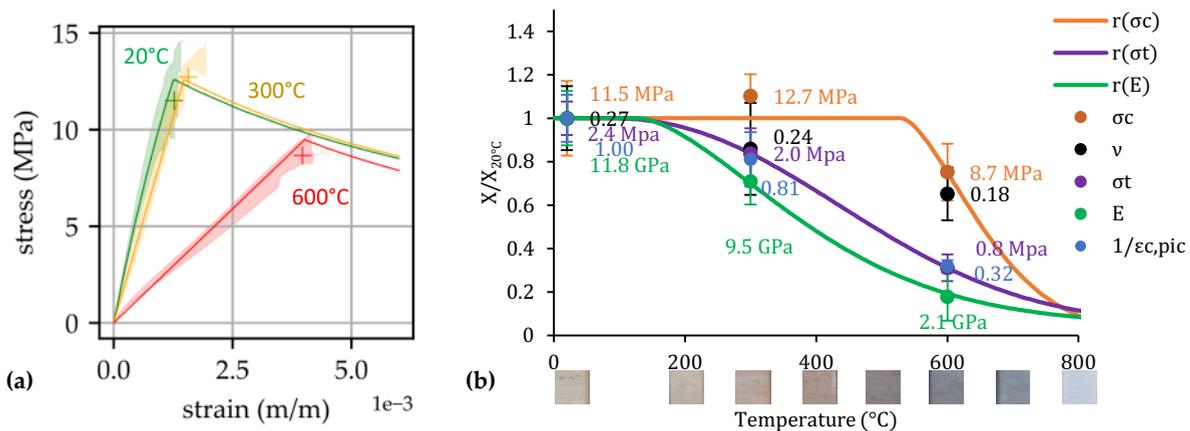


FIGURE 6b). Les mesures de déformation au pic de compression $\epsilon_{c,pic}$ indiquent une forte augmentation à haute température avec un effet considérable sur les courbes de comportement contrainte-déformation. Une quatrième fonction $r(\epsilon_{c,pic})$ est donc proposée, égale à l'inverse de $r(E)$.

ii. Validation du modèle à l'échelle d'une structure

Les simulations des murs soumis expérimentalement à un feu normalisé (Pham et al., 2022) ont pour but de valider les modèles paramétrés établis dans la partie précédente. Un premier calcul thermique, réalisé à l'aide de valeurs mesurées de C_p et de λ , permet de reproduire fidèlement l'évolution du champ de température dans le mur en fonction du temps rapportée par les auteurs (Pham et al., 2022), pendant les phases de chauffage et de refroidissement. Puis, des calculs mécaniques fournissent des éléments de résultats qu'il est possible de comparer aux images expérimentales de vidéo-corrélation présentées par les auteurs (Pham et al., 2022). La faible résistance en traction de l'interface bloc-mortier est quant à elle intégrée dans le mortier, en lui donnant 0.1 MPa de résistance en traction. Le paramètre GFT a été artificiellement relevé de 8 ordres de grandeur, assurant un post-pic quasi-plastique. Cette dernière modification s'est révélée nécessaire pour reproduire le comportement frottant des fissures ouvertes. Les cartographies obtenues avec le modèle EF en déplacements hors-plan et en fissuration sont présentées dans la [FIGURE 7](#) et la [FIGURE 8](#), accompagnés des résultats expérimentaux correspondants.

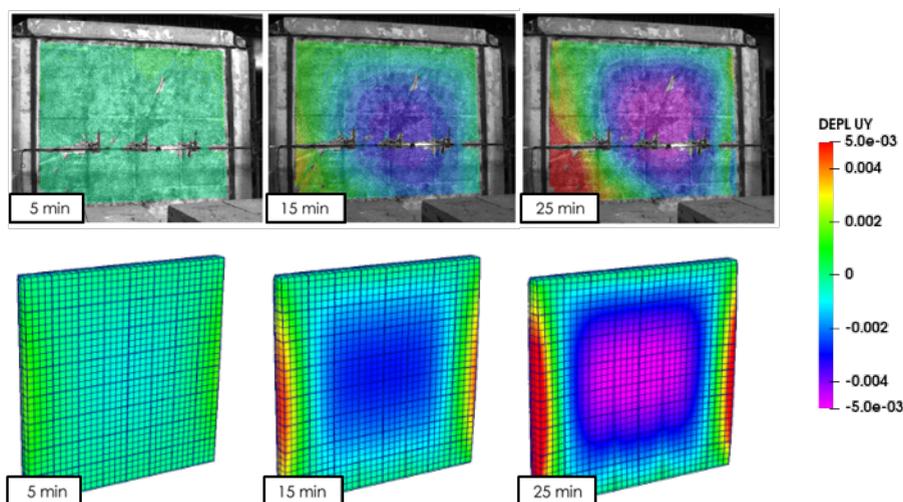


FIGURE 7 Comparaison expérimentale et numérique des déplacements hors-plan à 5 minutes, 15 minutes et 25 minutes de chauffage

Les expérimentateurs ont observé un schéma de déplacement hors plan matérialisé par un bombement en direction de la face chauffée, dont la forme est correctement reproduite par le calcul. En revanche, il est apparu que l'amplitude du déplacement est très sensible aux conditions limites mécaniques du problème, qui demeurent mal connues dans l'expérimentation. Le schéma de fissuration déterminé par ENDO3D reproduit le déclenchement de la fissuration observée dans les joints de mortier verticaux, puis très fidèlement l'ouverture des fissures verticales majeures traversant les blocs, aux extrémités droite et gauche du mur. Les macro-fissurations visibles en haut et en bas du mur, quoique non visibles sur les cartographies, ont été relevées visuellement. La capacité du modèle à simuler cette macro-fissuration, due à l'effet combiné des dilatations thermiques différentielles et à la pression de confinement appliquée verticalement sur le mur, est un indicateur fort de sa validité à l'échelle d'un élément de structure. Les déplacements avant/après incendie et les fissurations sont parfois disponibles dans le diagnostic des ouvrages, comme c'est le cas pour la cathédrale Notre-Dame de Paris. Leurs bonnes reproductions sont essentielles à la validation du calcul d'ouvrage.

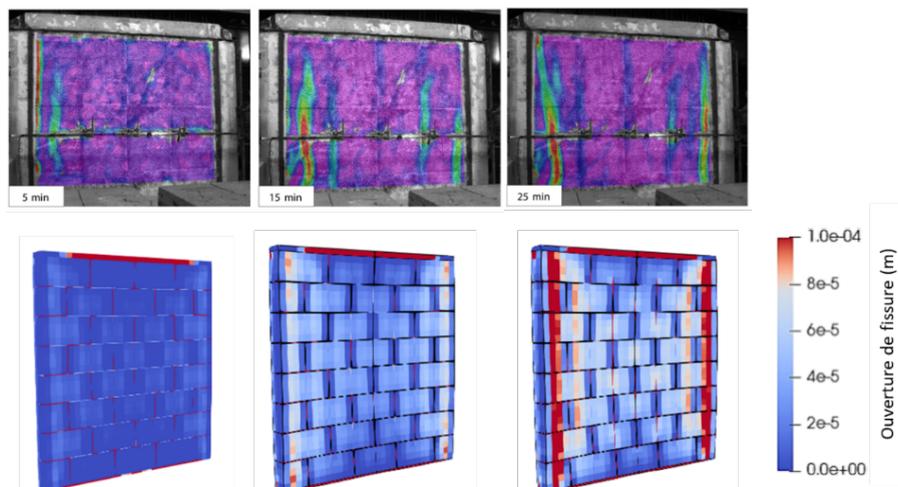


FIGURE 8 Comparaison expérimentale et numérique de l'ouverture de fissure à 5 minutes, 15 minutes et 25 minutes de chauffage

V. CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Le but de l'article est de présenter la méthodologie globale d'analyse structurale d'un édifice en pierre ayant subi un incendie, et sa mise en œuvre sur le cas de la cathédrale Notre-Dame de Paris. Le premier obstacle à la mise en place d'une telle méthode réside dans le manque de connaissance concernant le comportement des matériaux constitutifs de la maçonnerie après une élévation puis une baisse de température. Le second est l'absence de modèle de comportement thermomécanique homogénéisé de la maçonnerie, évolutif avec les hautes températures. À l'échelle d'un monument tel que la cathédrale Notre-Dame de Paris, seule la méthode MEF permet de modéliser les comportements non-linéaires complexes de la maçonnerie en conservant un temps de calcul raisonnable. Cet article a décrit les avancées sur ces deux premiers points.

Une campagne de caractérisation expérimentale spécifique a été mise en œuvre sur des matériaux similaires aux voûtains de la cathédrale Notre-Dame de Paris. Les résultats obtenus à différentes températures allant jusqu'à 800°C et après un refroidissement à 20°C ont donné les informations nécessaires au calage d'un modèle non linéaire (ENDO3D) des matériaux constitutifs (pierre et mortier). Ce modèle EF ainsi qu'un modèle hybride EF/ED développé dans le cadre du projet DEMMEFI ont été validés à l'échelle d'un mur en reproduisant des essais de murs en pierre exposés au feu (gradient de température). Les phénomènes observés expérimentalement, tels que les déplacements hors-plan et le schéma de fissuration, ont été reproduits par le modèle numérique, confirmant sa capacité à simuler le comportement complexe d'un milieu hétérogène divisé et au comportement non-linéaire soumis à un incendie puis refroidissement.

Les travaux présentés ici ouvrent la voie à la suite du projet, menant *in fine* à la réalisation d'une analyse structurale de la cathédrale Notre-Dame de Paris. Face aux dimensions et à la complexité géométrique de cette structure, la stratégie adoptée inclut une phase d'homogénéisation du matériau maçonnerie à l'aide des modèles dorénavant validés, et en particulier du modèle hybride EF/ED. Le matériau homogénéisé est utilisé dans le cadre d'une approche éléments finis sur la totalité de la structure, permettant de réduire le temps de calcul nécessaire par rapport à un modèle micro-détaillé bloc-à-bloc. Ainsi se construit un jumeau numérique fidèle au vécu de l'ouvrage pendant l'incendie et son refroidissement, et à même de simuler son avenir. Le jumeau numérique pourra être utilisé pour justifier la stabilité de l'ouvrage endommagé, mais aussi optimiser des solutions de renforcement, ou étudier d'autres cas de charges accidentels.

VI. REMERCIEMENTS

L'auteurs exprime sa gratitude à l'Agence nationale de la recherche (projet de recherche ANR-20-CE22-0004) pour le soutien apporté à ses recherches et à Rocamat pour la fourniture des échantillons de pierre. Ce travail a bénéficié d'un accès aux ressources CHP du centre de calcul CALMIP sous l'allocation P22062.

VII. REFERENCES

- AFNOR, 2005. NF EN 14580 Méthodes d'essai pour pierres naturelles — Détermination du module d'élasticité statique (No. NF EN 14580).
- AFNOR, 1999a. EN ISO 834-1 - Fire-resistance tests — Elements of building construction — Part 1: General requirements (No. EN ISO 834-1).
- AFNOR, 1999b. NF EN 1052-1 Détermination de la résistance à la compression (No. NF EN 1052-1).
- Al Nahhas, F., Ami Saada, R., Bonnet, G., Delmotte, P., 2007. Resistance to fire of walls constituted by hollow blocks: Experiments and thermal modeling. *Applied Thermal Engineering* 27, 258–267. <https://doi.org/10.1016/j.applthermaleng.2006.04.017>
- Cast3M, <https://www-cast3m.cea.fr>, 2023.
- Dabat, T., Mertz, J.-D., Leroux, L., Melinge, Y., 2021a. Cathédrale Notre-Dame de Paris : Murs bahuts et pignons - Caractérisation des carottes de pierre prélevées après l'incendie du 15 avril 2019 (No. 1O). Laboratoire de recherche des monuments historiques.
- Dabat, T., Mertz, J.-D., Leroux, L., Melinge, Y., 2021b. Cathédrale Notre-Dame de Paris : Voûtes effondrées, murs bahuts et pignons, Caractérisation des carottes de pierre prélevées après l'incendie du 15 avril 2019 (No. 1R). Laboratoire de recherche des monuments historiques.
- Domeded, N., Parent, T., Guenser, C., Boukham, A., Morenon, P., Issa Ibrahim, A.S., 2024. Mechanical characterization of the stones of Notre-Dame de Paris by in situ sonic auscultation. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences* 175. <https://doi.org/10.1016/j.ijrmms.2024.105671>
- Fantilli, A.P., Burello, N.S., 2022. Masonry arches and vaults under fire. *Journal of Building Engineering* 56, 104740. <https://doi.org/10.1016/j.jobe.2022.104740>
- Mechling, J.-M., Baquet, M., 2022. Physicochemical characterisation of the mortars from Notre-Dame de Paris cathedral – Preliminary findings and reconstitution of the fresh mix. *Journal of Cultural Heritage* S1296207422001807. <https://doi.org/10.1016/j.culher.2022.10.006>
- Montier, A., 2021. Incendie de la Cathédrale Notre-Dame de Paris – étude des actions thermiques (Rapport de stage).
- Nguyen, T.-D., Meftah, F., Chammas, R., Mebarki, A., 2009. The behaviour of masonry walls subjected to fire: Modelling and parametrical studies in the case of hollow burnt-clay bricks. *Fire Safety Journal* 44, 629–641. <https://doi.org/10.1016/j.firesaf.2008.12.006>
- Pham, D.T., Donval, E., Pinoteau, N., Pimienta, P., Pallix, D., 2022. Test of loaded and unloaded natural stone masonry walls exposed to fire. *Mater Struct* 55, 229. <https://doi.org/10.1617/s11527-022-02058-9>
- Sellier, A., 2018. Anisotropic Damage and Visco-Elasto-Plasticity Applied to Multiphasic Materials (research report). LMDC - Laboratoire Matériaux et Durabilité des Constructions de Toulouse ; Université de Toulouse III - Paul Sabatier ; INSA de Toulouse, Toulouse.

Percolation de gaz à travers un milieu granulaire initialement saturé : suivi spatio-temporel de l'interface et de la réponse mécanique

Rana AL NEMER

Nantes Université, Ecole Centrale Nantes, CNRS, GeM, UMR 6183, F-44000 Nantes, France

RESUME L'accélération de la transition énergétique s'appuie largement sur les sources d'énergie renouvelables et sur le stockage de l'excès de cette énergie en sous sol. Cependant, lors des opérations d'injection ou de soutirage, les écoulements biphasiques qui se manifestent peuvent devenir instables et menacer l'intégrité du réservoir. Ces phénomènes impliquent différents couplages (thermo-chemo-hydro-mécanique) et sont complexes à traiter. Cette étude examine, à l'échelle du laboratoire, l'écoulement instable d'un gaz à travers un matériau granulaire initialement saturé, en se concentrant sur le couplage hydro-mécanique. L'impact de cette instabilité hydraulique sur une squelette solide qui subit un chargement mécanique est une nouveauté dans le domaine. Une nouvelle et unique machine biaxiale a été conçue afin de générer cet écoulement instable et en parallèle filmer cette infiltration grâce à la conception originale du dispositif ainsi qu'au système optique de haute résolution mis en place. Le recours à la méthode de corrélation d'images numériques et le développement d'une nouvelle approche pour la détection de l'interface sont les clés pour extraire les données pertinentes. Ainsi, les résultats obtenus révèlent une corrélation entre la propagation de la digitation et les déformations générées. La déformation volumétrique moyenne calculée à l'intérieur du doigt indique une dilatation du milieu lors du drainage.

Mots-clefs drainage, chargement hydro-mécanique, digitation, déformations localisées, corrélation d'images numériques

I. INTRODUCTION

Les écoulements biphasiques immiscibles dans les géo-matériaux sont au cœur de plusieurs applications allant de la stabilité des sols dunaires au stockage géologique de fluides; ce dernier est sans doute l'une des solutions primordiales pour accélérer la transition énergétique, que ce soit grâce à la séquestration du CO_2 ou au stockage du CH_4 , H_2 produits à partir des sources d'énergie renouvelables (Raad et al. 2022). Lors des opérations d'injection ou de soutirage des fluides à partir de leurs réservoirs souterrains ou même lors des cycles naturels des marées, les écoulements biphasiques (infiltration de gaz dans un milieu initialement saturé ou imbibition d'un milieu initialement partiellement saturé) qui s'installent peuvent être de nature instable et causer des dégâts importants (érosion côtière (Sassa & Watabe 2007), perte d'étanchéité des réservoirs souterrains et déclenchement d'une activité sismique due à la réactivation des failles (Mazzoldi et al. 2012)...).

Depuis les années 80, la communauté scientifique s'est surtout intéressée à comprendre l'écoulement relatif entre deux fluides non-miscibles à travers des milieux poreux rigides. Leur investigation concerne principalement les motifs de déplacements à l'échelle centimétrique, leurs paramètres de pilotages et les mécanismes sous-jacents se produisant à l'échelle des pores. A partir des expérimentations sur des cellules Hele-Shaw qui consistent à injecter et filmer l'infiltration d'un fluide

dans une monocouche de grains saturée par un autre fluide et confinée entre deux plaques transparentes, trois régimes (stable, digitation visqueuse, digitation capillaire) ont été identifiés et représentés sur un diagramme de phase, connu sous le nom de diagramme de Lenormand (Lenormand & Zarcone 1989), en fonction de deux paramètres non dimensionnels : le nombre de capillarité Ca qui prend en compte le rapport entre les forces visqueuses et capillaires et le rapport de viscosité M entre les deux fluides en place. Les conditions qui déclenchent la naissance des digitations décrits par des chemins préférentiels très localisés, varient selon qu'il s'agisse de processus de drainage ou d'imbibition. Dans cet article, on s'intéresse au processus de drainage qui consiste à injecter un fluide non-mouillant (par exemple l'air) dans un milieu poreux saturé par un fluide mouillant (par exemple l'eau) (Zhao et al. 2016). Les régimes instables du drainage sont obtenus soit lorsque le taux d'injection est très élevé, soit lorsque le rapport de viscosité entre le fluide en défense et le fluide injecté est trop faible (voir (Guo & Aryana 2019)). Ces parcours de digitation sont pilotés par des événements locaux qui se manifestent à l'échelle des pores. Le milieu poreux constitué d'un réseau de pores et de constriction, est souvent drainé par des séquences d'invasion de type piston au niveau des constriction et de sauts de Haines au passage des constriction vers les pores (pour plus de détails, voir (Al Nemer 2023)).

Pourtant, l'écoulement de gaz dans un processus de drainage implique divers types de couplages, notamment le couplage hydro-mécanique qui suscite notre intérêt. L'interaction entre cet écoulement instable et le milieu poreux percolé reste mal expliquée en termes de déformation d'un squelette solide chargée mécaniquement. (Campbell et al. 2017) ont quantifié le réarrangement granulaire provoqué par l'injection ponctuelle de l'air à débit contrôlé dans une cellule Hele-Shaw remplie d'une couche fine de billes de verre initialement saturée d'eau, en utilisant l'approche de la vélocimétrie par image de particules. Également, Eriksen et al. (2015) ont fourni, en utilisant la méthode de corrélation d'images numériques (CIN), des cartes de déformations volumétriques des billes de verre dues à l'injection ponctuelle de l'air par pression capillaire contrôlée. Cependant dans ces travaux précédents, le couplage hydro-mécanique est absent; les essais de drainage ont été conduits sans prendre en compte le chargement mécanique. De plus, la digitation observée est influencée par l'injection ponctuelle plutôt que d'être uniquement obtenue par la déstabilisation d'un front homogène. Dans notre étude, une nouvelle machine biaxiale adaptée au milieu partiellement saturée a été conçue afin (i) d'investiguer les percolations hétérogènes d'un écoulement de gaz issu d'une injection uniforme, à travers un échantillon de sable 2D sous un chargement mécanique donné et (ii) d'assurer, grâce à un système optique de haute résolution, un suivi spatio-temporel de la propagation de l'interface et de son effet sur la réponse mécanique du milieu granulaire. Vu l'originalité du dispositif expérimental, la complexité du phénomène en lui-même et les larges bases de données générées, le fait d'établir une corrélation entre l'écoulement de gaz et la déformation du milieu granulaire reste difficile.

II. MATERIAUX ET METHODES

A. Machine biaxiale et système optique

L'idée de suivre l'écoulement de gaz dans un milieu granulaire sous un couplage hydro-mécanique est une première. Pour cela, une nouvelle machine biaxiale équipée d'un système optique de haute résolution, comme présenté dans la [FIGURE 1a](#), a été conçue. La machine biaxiale,

dérivée du dispositif de Bishop-Wisley, a été modifiée afin de permettre un contrôle simultanée de la pression de 3 fluides différents et du chargement mécanique. Ce dernier, étant biaxial, agit sur l'axe vertical et horizontal. La pression maximale de service est de 1600 kPa. L'une des caractéristiques de ce dispositif est la présence d'un double couple de fenêtres avec leurs hublots transparents fournissant un accès direct aux surfaces de l'échantillon : le premier couple est situé sur les murs de la chambre de confinement et le deuxième se trouve en contact avec l'échantillon. Pour le système optique présenté dans la [FIGURE 1a](#), il s'agit d'une caméra de haute résolution (50 MPx) avec un objectif télécentrique ayant un grossissement de 0.75, apportant une résolution spatiale de 6.1 $\mu\text{m}/\text{pixel}$. Pour plus de détails sur le dispositif expérimental, voir (Al Nemer et al. 2022).

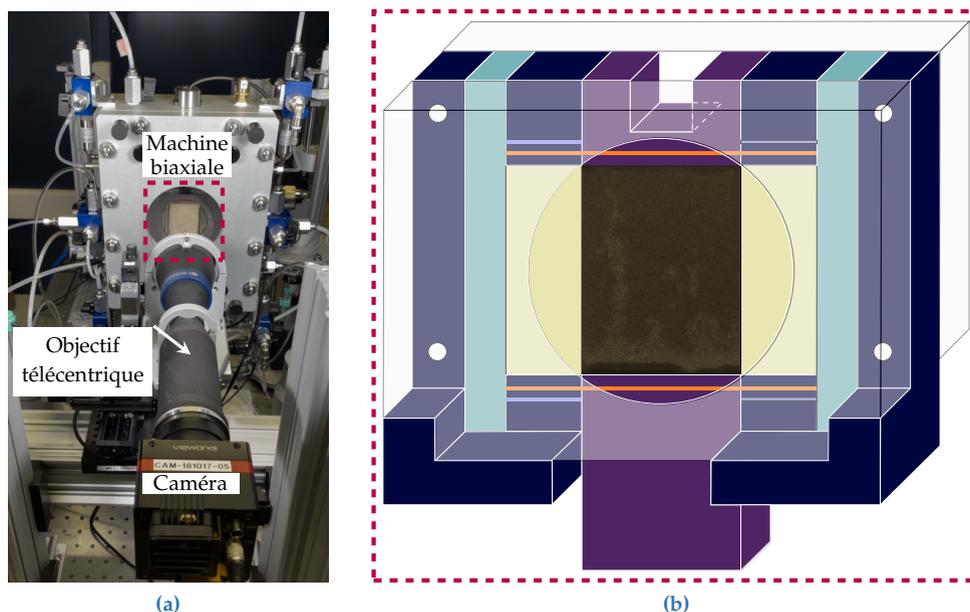


FIGURE 1. Dispositif expérimental. (a) Machine biaxiale équipée de son système optique à haute résolution et (b) schéma en 3D représentant la cellule de l'échantillon fixée à l'intérieur de la chambre de confinement comme précisé par le rectangle en pointillé ; au centre de la cellule, se trouve l'échantillon de sable, à droite et à gauche -en *jaune clair*- sont les membranes de confinement, en haut et en bas -en *aubergine*- sont les pierres poreuses et en face et au dos -en *gris clair*- les fenêtres avec un hublot en saphir chacune.

La cellule de l'échantillon, schématisée sur la [FIGURE 1b](#), est formée par l'assemblage de 6 pièces : deux blocs en *bleu marine* dont chacun tient une membrane en latex de confinement de couleur *jaune clair*, sont vissés aux deux pierres poreuses situées en haut et en bas et représentées par la couleur *aubergine*. Le rôle de ces pierres poreuses est d'assurer une distribution uniforme de fluides à l'entrée et la sortie de l'échantillon. Puis deux fenêtres en saphir représentées par la couleur *gris clair*, situées de part et d'autre de l'échantillon, sont fixées successivement : après avoir vissé la première fenêtre, le matériau qui constitue l'échantillon est versé par pluviation¹ grâce à un dispositif conçu spécifiquement pour s'adapter aux contraintes géométriques de l'échantillon, ensuite la deuxième fenêtre est fermée. La taille de l'échantillon est de 5 cm de haut, 4 cm de large

1. Pluviation est une méthode de préparation des échantillons à base de matériaux granulaires qui permet d'assurer une distribution homogène et un contrôle de la densité, grâce à la chute des grains à travers une grille perforée à partir d'une certaine hauteur.

et 1.1 cm d'épaisseur. Le matériau utilisé est le sable de Fontainebleau NE 34 ayant un diamètre moyen de 210 μm . La densité des échantillons préparés et utilisés dans la suite est gardée constante autour de 1.7 g/cm^3 .

B. Procédure de drainage

L'un des objectifs de cette étude est de réussir à reproduire, à l'échelle du laboratoire et de manière simplifiée, les percolations hétérogènes ayant lieu au cours de l'écoulement de gaz à travers le milieu granulaire initialement saturé en eau. Comme décrit précédemment, un chargement hydro-mécanique sera pris en compte. Tout d'abord, après avoir fixé l'échantillon à l'intérieur de la chambre de confinement et saturé les membranes latérales par de l'huile de silicone, une première charge de confinement de 45 kPa est appliquée à l'échantillon en conditions drainées. Ce chargement mécanique, agit sur la verticale de l'échantillon et se transmet simultanément à un système particulier qui l'applique latéralement à travers les membranes de confinement. Ensuite, le premier fluide « eau désaérée » est injecté du bas vers le haut de l'échantillon afin de saturer ce dernier. Pour atteindre une saturation complète, l'approche de Skempton détaillée dans (Head et al. 1998) est suivie : elle consiste à appliquer une séquence d'incrément de charge de confinement $\Delta\sigma$ de 50 kPa en conditions non drainées et à mesurer en parallèle l'évolution de la pression interstitielle ΔP_w ; à la fin de chaque incrément, la contrainte effective σ' agissant sur les grains solides et définie par la différence entre la charge de confinement et la pression interstitielle est ajustée pour être de l'ordre de 10 kPa, suite à un contrôle de la contre-pression. L'échantillon est considéré en état de saturation complète si le coefficient de Skempton B défini par le rapport entre ΔP_w et $\Delta\sigma$ s'approche de 1. Finalement, le deuxième fluide « air » placé sous une certaine pression P_g est mis en contact avec la base de l'échantillon, une fois que le robinet est ouvert. Alors, le chargement hydraulique mis en place, décrit par la pression capillaire P_{cap} qui est définie par la différence de pressions entre l'air injecté et l'eau en défense, déclenche l'écoulement de drainage. En parallèle, la percolation de l'air dans le sable « saturé » est filmée à une fréquence de 30 Hz par le système optique. Les images acquises lors d'un drainage sous une pression capillaire de 30 kPa et une contrainte effective initiale de 120 kPa sont montrées dans la [FIGURE 2](#) où la couleur sombre représente le sable qui reste saturé par l'eau et la couleur claire représente le sable désaturé par l'air injecté. Un chemin préférentiel a été généré à partir d'une couche d'air étalée sur la base de l'échantillon comme le montre le premier panel de la [FIGURE 2](#) soulignant la nucléation d'une instabilité hydraulique. Le rectangle rouge indique la région d'intérêt autour du doigt formé qui va être utilisée plus tard dans les post-traitements.

C. Analyse d'images par corrélation d'images numériques

Après avoir réussi à reproduire les instabilités hydrauliques dans un milieu granulaire qui subit un chargement mécanique, l'objectif complémentaire est de quantifier le réarrangement des grains induit par cet écoulement instable. Néanmoins, l'extraction de données quantitatives à partir de ce type d'essai, qui repose principalement sur des images acquises, n'est évidemment pas directe et nécessite le recours à des méthodes d'analyse d'images telles que la CIN. Cette approche a été utilisée comme mentionné précédemment par (Eriksen et al. 2015), sauf que l'artefact produit par l'écoulement en terme de changement de contraste, reste non traité. La CIN est basée sur l'hypo-

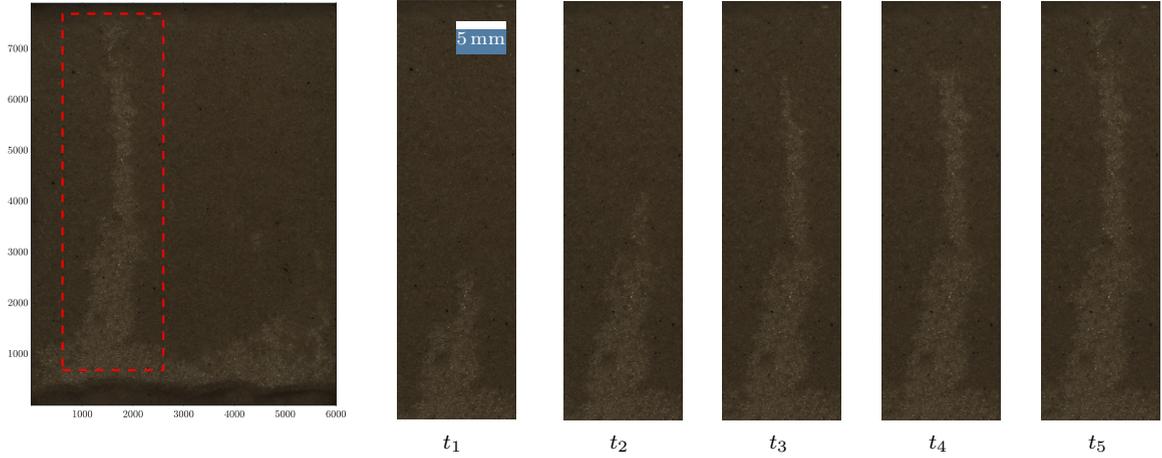


FIGURE 2. A gauche, le champ de vision filmé par le système optique est 6004×7904 pixels, et la zone délimitée par le rectangle rouge est la région d'intérêt autour du doigt formé sous une pression capillaire de 30 kPa et une contrainte effective initiale de 120 kPa. A droite, une partie de la séquence des images acquises lors de ce drainage est montrée où la couleur sombre représente le sable saturé et la couleur claire représente le sable désaturé par l'air injecté. Le pas de temps entre ces images est de 0.2s.

thèse de conservation de niveaux de gris entre l'image de référence f et l'image déformée g , traduite par l'Equation (1), afin de mesurer le champ de déplacement u .

$$f(x) = g(x + u) \quad (1)$$

D'une autre manière, un pixel ayant les coordonnées x dans l'image de référence f sera trouvé à la position $x + u$ dans l'image déformée g . Dans cette étude, un état de référence correspond à un sable totalement saturé ayant une distribution étroite de niveau de gris alors qu'un état déformé correspond à un sable partiellement saturé ayant une distribution plus étalée et modifiée par rapport à son état de référence. Le changement de niveau de gris entre l'état de référence et déformé est alors non seulement provoqué par le réarrangement granulaire mais aussi par l'infiltration de l'air. Pour cela, afin de réduire significativement l'artefact induit par la présence de l'air, une correction locale de niveaux de gris, appliquée éléments par éléments, est introduite au sein du processus itératif de l'algorithme de corrélation qui utilise l'approche globale basée sur un maillage d'éléments finis (Réthoré 2018). Le problème est alors résolu en suivant l'Equation (2) au lieu de l'Equation (1),

$$f(x) = \tilde{g}(x + \tilde{u}) \quad \text{avec} \quad \tilde{g}(x + \tilde{u}) = \mathcal{C}(g(x + \tilde{u}) - \mu_{def}) + \mathcal{B} \quad (2)$$

où \tilde{g} est le niveau de gris corrigé de l'image déformée, calculé à partir du paramètre \mathcal{C} corrigeant le contraste et du paramètre \mathcal{B} corrigeant la brillance et μ_{def} est la valeur moyenne de niveau de gris dans chaque élément de l'image déformée g . L'idée de cette correction est de ramener la distribution de niveau de gris de l'image déformée g à celle de son état de référence (pour plus de détails voir (Al Nemer 2023)). La sortie de cet algorithme est le déplacement \tilde{u} où (\sim) indique la prise en compte de la correction locale de niveau de gris lors du calcul. Le champ de déformation qui va traduire la réponse mécanique, est déduit à partir du champ de déplacement obtenu et de la dérivation des fonctions de forme utilisées dans l'esprit de la méthode des éléments finis. Particulièrement,

exprimant ici les réarrangements planaires, la déformation volumétrique ϵ_{vol} est calculée comme la trace du tenseur de déformation 2D, exprimée par l'Equation (3),

$$\epsilon_{vol} = \epsilon_{xx} + \epsilon_{yy} \quad (3)$$

où ϵ_{xx} est la déformation horizontale et ϵ_{yy} est la déformation verticale.

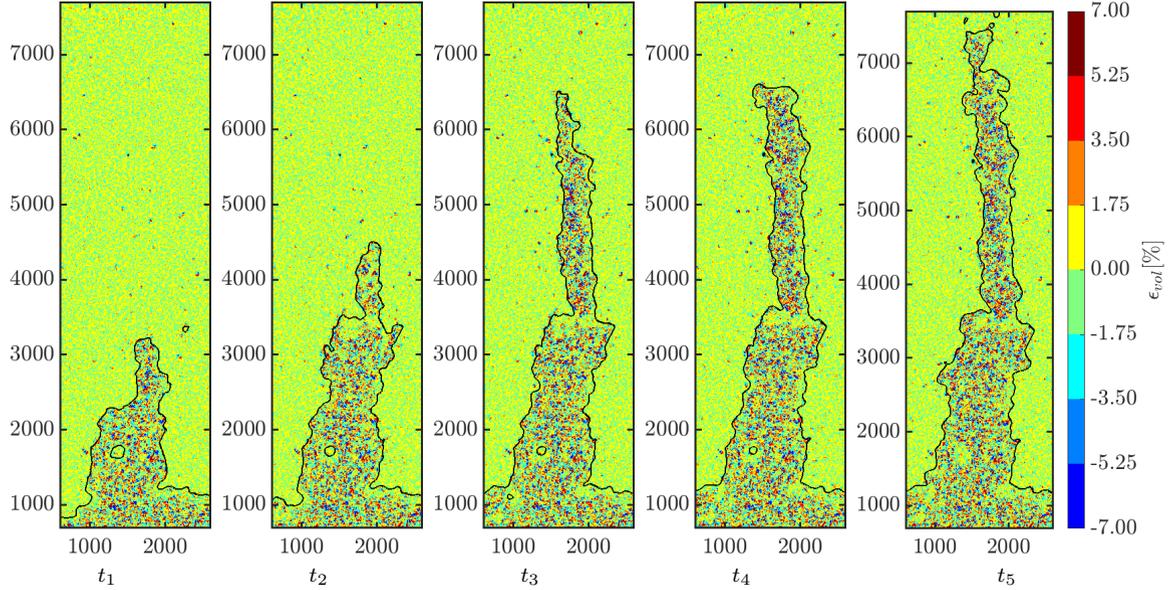


FIGURE 3. Suivi spatio-temporel de la déformation volumétrique induite par le doigt développé. La valeur négative de ϵ_{vol} correspond à une compaction alors que la valeur positive correspond à une dilatation. L'interface noire séparant la zone envahie de la zone intacte est obtenue suivant une approche détaillée dans la Section II.D.

Un suivi spatio-temporel de la réponse mécanique est fourni par les cartographies de la FIGURE 3 qui illustrent pour différents instants, l'impact du doigt formé sur la structure de la squelette solide en termes de déformations volumétriques. Les valeurs positives de ϵ_{vol} indiquent une dilatation du milieu donc un écartement des grains les uns des autres tandis que les valeurs négatives de ϵ_{vol} indiquent une compaction donc un resserrement des grains. Ces cartes montrent que la déstabilisation d'un écoulement vers un chemin préférentiel génère des déformations localisées à l'intérieur du doigt formé qui consistent en des clusters de déformations alternant entre des valeurs positives et négatives. Il convient de souligner que l'ordre de grandeur de ces déformations dépasse largement les incertitudes de mesure dues à la stabilité du système optique et à la variation du contraste, qui sont estimées à 0.31 % (Al Nemer et al. Accepted in 2024a).

D. Nouvelle approche pour la détection automatique de l'interface

Afin de compléter cette analyse et apporter davantage d'investigation inédite, la détection de l'interface séparant la zone saturée de la zone non-saturée est incontournable, bien que cela soit un véritable défi. Les approches courantes pour la détection de l'interface se basent soit sur la segmentation d'images à partir d'un certain seuil (Méheust et al. 2002), soit sur la soustraction des niveaux de gris entre une image déformée et une image de référence (Ozturk & Sandnes 2019). La première

approche nécessite la présence d'un fort contraste entre les deux zones à segmenter pour aboutir, cependant les images acquises montrées dans la [FIGURE 2](#) se caractérisent par un faible contraste entre la zone envahie et la zone intacte. D'autre part, la deuxième approche néglige le fait que le passage du front engendre des réarrangements granulaires et donc, la détection de l'interface à partir de la soustraction des niveaux de gris n'est pas une approche fiable. De plus, à l'issue de ces deux processus, l'interface détectée est représentée dans l'état déformée ce qui impose un travail additionnel pour la représenter dans la configuration de référence. Pour s'affranchir de ces points de faiblesse cités ci-dessus, une nouvelle approche qui permet non seulement une détection automatique de l'interface mais aussi sa représentation dans la configuration de référence est développée. A titre d'illustration, un exemple correspondant à un instant de temps t montre les différentes étapes suivies pour la détection de l'interface dans la [FIGURE 4](#); ceci est valable pour tous les instants vu que ce processus est automatisé. Tout d'abord, les images déformées brutes ([FIGURE 4a](#)) à faible

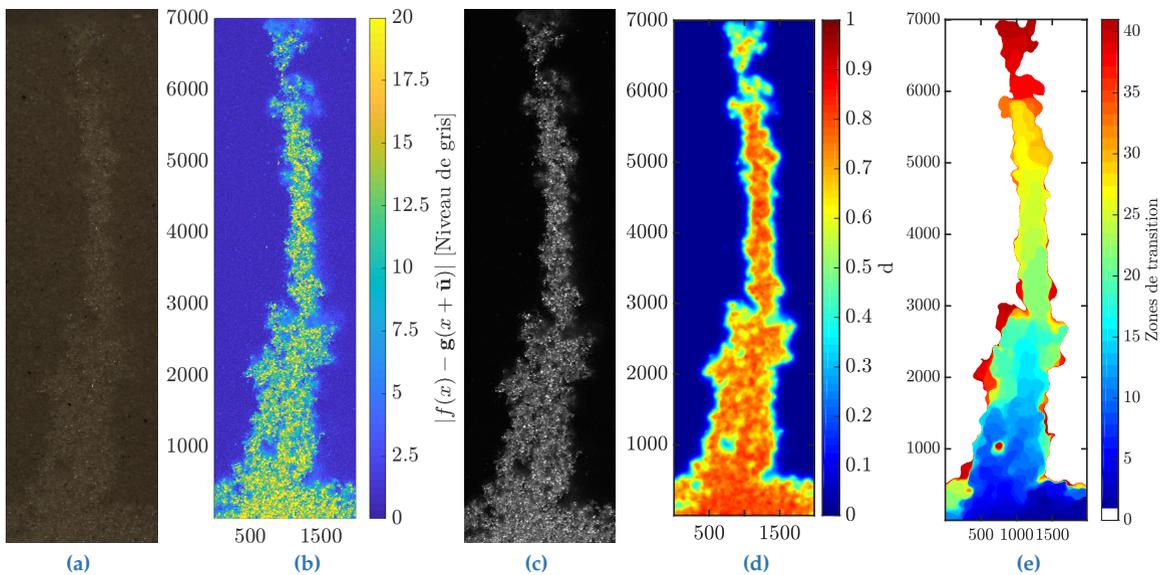


FIGURE 4. Séquence d'étapes à suivre pour extraire l'historique des interfaces au cours du drainage : (a) l'image brute, (b) la carte de résidu de corrélation, (c) l'image contrastée, (d) la carte de sortie de l'algorithme de détection de l'interface où une valeur de $d=0.25$ est sélectionnée afin de définir l'interface pour chaque instant et (e) la carte montrant le suivi temporel des zones de transition déduite à partir des interfaces qui sortent de l'étape (d).

contraste sont remplacées par des cartes de résidu de corrélation ϵ_{corr} ([FIGURE 4b](#)) calculées par l'équation suivante :

$$\epsilon_{corr} = |f(x) - g(x + \tilde{u})| \quad (4)$$

Il s'agit de faire la différence de niveaux de gris bruts entre l'image de référence f et celle déformée g , tout en prenant en compte le réarrangement granulaire décrit par le déplacement \tilde{u} calculé précédemment dans la [Section II.C](#). Avec cette astuce, la nouvelle image obtenue est représentée dans la configuration de référence et avec quelques exécutions basées sur l'algorithme K-means, elle devient contrastée davantage ([FIGURE 4c](#)). Ensuite, la séquence d'images contrastées alimente un algorithme robuste à base d'éléments finis qui a été développé en se basant sur les travaux de (Mumford & Shah 1989) portés sur la segmentation d'images et de (Ambrosio & Tortorelli 1992)

portés sur la détection des discontinuités en considérant une certaine régularisation. En résumé, un paramètre d'ordre d est introduit pour détecter la zone de discontinuité qui dans notre cas est la zone de saturation partielle. Plus de détails dans (Al Nemer et al. Submitted in 2024b). La sortie de cet algorithme est une carte de d représentant les iso-contours pour chaque instant t ; une valeur de $d = 0.25$ est choisie pour définir l'interface. Finalement, l'ensemble des interfaces détectées au cours du phénomène de drainage permet de générer une nouvelle carte qui résume l'ensemble des zones de transition définies entre deux interfaces consécutives (FIGURE 4e).

III. DISCUSSIONS

Après avoir adapté la méthode de corrélation d'images numériques pour quantifier la déformation du milieu granulaire et après avoir développé une nouvelle approche pour la détection automatique de l'interface, la combinaison de ces deux développements donne naissance à une investigation très fine et inédite sur l'interprétation du phénomène de percolation instable et de son impact sur la déformabilité de la squelette solide. Par exemple, en regardant l'effet de cette infiltration sur la déformation volumétrique moyenne à l'intérieur de chaque zone envahie, comme illustré dans la FIGURE 5, on remarque que la digitation induit une déformation volumétrique positive en moyenne, indiquant une dilatation du milieu qui est plus importante au début du processus qu'à la fin, c'est-à-dire à la base du doigt qu'à sa pointe.

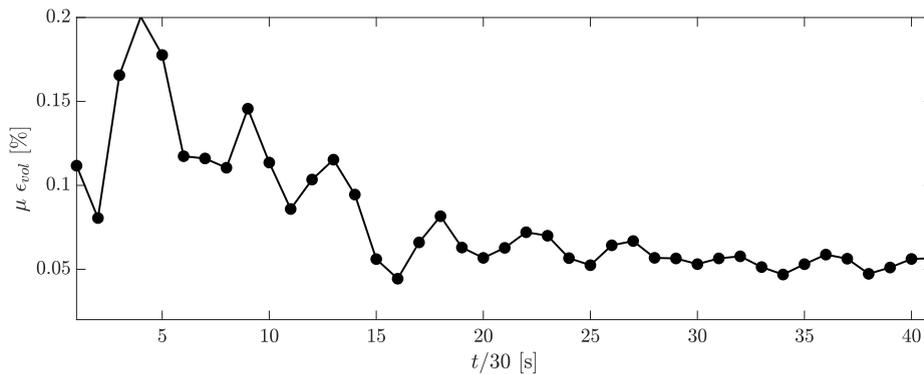


FIGURE 5. Évolution de la moyenne de la déformation volumétrique calculée à l'intérieur de la zone envahie au cours du processus d'invasion.

D'autre part, si on considère les zones de transition présentées dans la FIGURE 4e et on calcule pour un instant t , par exemple le temps de percée², la moyenne de la déformation volumétrique dans chaque zone de transition, on arrive à déterminer le comportement des différentes zones qui constituent le doigt et à vérifier si une corrélation existe. La FIGURE 6 représente l'évolution de cette moyenne sur les 41 zones de transitions. On remarque que les zones de transitions à la base du doigt sont caractérisées par une valeur positive de la déformation volumétrique, confirmant l'ouverture du milieu à cet endroit, suivie d'une alternance entre valeurs positives et négatives décrivant une succession de zones ou de bandes compactées et dilatées.

2. Le temps de percée (*breakthrough time*) est l'instant auquel le fluide injecté touche la borne supérieure de l'échantillon.

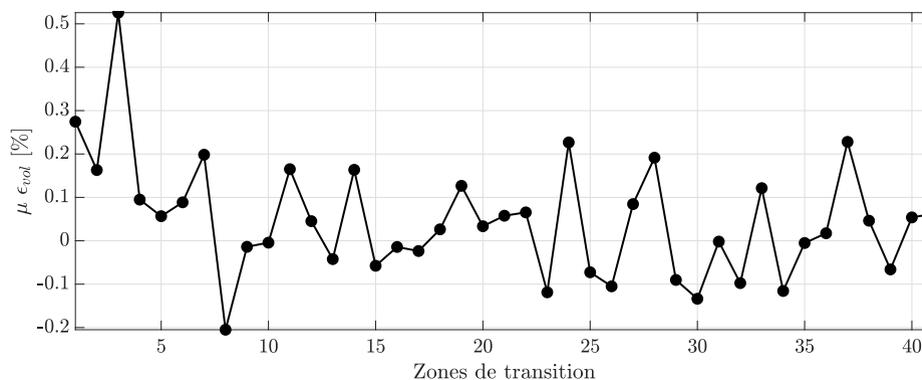


FIGURE 6. Évolution de la moyenne de la déformation volumétrique calculée à l'intérieur de chaque zone de transition, correspondant au temps de percée.

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

La génération d'un écoulement instable à travers un échantillon à base de matériaux granulaires a été obtenue grâce à deux éléments primordiaux : (i) le système de pluviation développé qui a reçu l'accord pour une étude de brevetabilité et (ii) la machine biaxiale conçue spécifiquement pour les milieux partiellement saturés soumis à des chargements mécaniques. Dans cette étude, l'accent a été particulièrement mis sur un essai de drainage sous un chargement mécanique donné, afin de mettre en lumière les post-traitements requis pour l'extraction et l'interprétation des données implicites à partir des images acquises. L'investigation sur l'écoulement instable de gaz et son effet sur le remodelage de la squelette solide a nécessité l'attribution d'une attention particulière à la méthode de corrélation d'images numériques et le développement d'une approche adaptée pour le suivi de l'interface. Ainsi, le suivi spatio-temporel de l'interface et de la réponse mécanique a abouti à des résultats originaux :

- La localisation de l'écoulement génère des déformations localisées qui peuvent être précurseurs d'instabilités macroscopiques au niveau d'un réservoir de stockage telles que la compaction/gonflement de la surface, réactivation de failles, etc.
- Dans le cas de drainage, phénomène qui se manifeste lors d'injection de fluide (CO_2 , CH_4) en sous-sol, une dilatation du milieu est attendue.
- À l'échelle de la digitation formée, une formation de zones compactées et dilatées successives le long de doigt caractérise ce type d'infiltration.

Il est important de souligner que ces analyses ont été effectuées sur plusieurs couples de chargements hydro-mécaniques. En perspective, une étude de drainage sur un matériau plus fins que le sable pourra mettre en lumière d'autre réponse mécanique telle que la fissuration.

Références

Al Nemer, R. (2023), Effect of two-phase fluid percolation on remodeling of geo-materials, Theses, École centrale de Nantes.

URL: <https://theses.hal.science/tel-04353684>

- Al Nemer, R., Réthoré, J. & Sciarra, G. (Accepted in 2024a), 'Quantification of localized strains induced within a granular medium by a bi-phasic flow via digital image correlation', *Strain* .
- Al Nemer, R., Réthoré, J. & Sciarra, G. (Submitted in 2024b), 'Robust detection of a bifurcated bi-phasic interface propagating through a granular medium & characterization of the interface : physically and morphologically', *Experiments in Fluids* .
- Al Nemer, R., Sciarra, G. & Réthoré, J. (2022), 'Drainage instabilities in granular materials : a new biaxial apparatus for fluid fingering and solid remodeling detection', *Frontiers in Physics* p. 202.
- Ambrosio, L. & Tortorelli, V. M. (1992), 'On the approximation of free discontinuity problems', *Bollettino dell'Unione Matematica Italiana* 7 pp. 105–123.
- Campbell, J. M., Ozturk, D. & Sandnes, B. (2017), 'Gas-driven fracturing of saturated granular media', *Physical Review Applied* 8(6), 064029.
- Eriksen, F. K., Toussaint, R., Måløy, K. J. & Flekkøy, E. G. (2015), 'Invasion patterns during two-phase flow in deformable porous media', *Frontiers in Physics* 3, 81.
- Guo, F. & Aryana, S. A. (2019), 'An experimental investigation of flow regimes in imbibition and drainage using a microfluidic platform', *Energies* 12(7), 1390.
- Head, K. H. et al. (1998), *Manual of soil laboratory testing. Volume 3 : effective stress tests.*, number Ed. 2, John Wiley & Sons, Chichester, UK.
- Lenormand, R. & Zarcone, C. (1989), 'Capillary fingering : percolation and fractal dimension', *Transport in porous media* 4(6), 599–612.
- Mazzoldi, A., Rinaldi, A. P., Borgia, A. & Rutqvist, J. (2012), 'Induced seismicity within geological carbon sequestration projects : Maximum earthquake magnitude and leakage potential from undetected faults', *International journal of greenhouse gas control* 10, 434–442.
- Méheust, Y., Løvoll, G., Måløy, K. J. & Schmittbuhl, J. (2002), 'Interface scaling in a two-dimensional porous medium under combined viscous, gravity, and capillary effects', *Physical Review E* 66(5), 051603.
- Mumford, D. B. & Shah, J. (1989), 'Optimal approximations by piecewise smooth functions and associated variational problems', *Communications on pure and applied mathematics* .
- Ozturk, D. & Sandnes, B. (2019), 'A study of three-phase fracturing in granular media using high-speed imaging', *Journal of Porous Media* 22(8).
- Raad, S. M. J., Leonenko, Y. & Hassanzadeh, H. (2022), 'Hydrogen storage in saline aquifers : Opportunities and challenges', *Renewable and Sustainable Energy Reviews* 168, 112846.
- Réthoré, J. (2018), 'Ufreckles', URL <https://doi.org/10.5281/zenodo.1433776>.
- Sassa, S. & Watabe, Y. (2007), 'Role of suction dynamics in evolution of intertidal sandy flats : Field evidence, experiments, and theoretical model', *Journal of Geophysical Research : Earth Surface* 112(F1).
- Zhao, B., MacMinn, C. W. & Juanes, R. (2016), 'Wettability control on multiphase flow in patterned microfluidics', *Proceedings of the National Academy of Sciences* 113(37), 10251–10256.

Mesure du coefficient de migration à l'état stationnaire de géopolymères contenant des matériaux à changement de phase microcapsulés

Bouha EL MOUSTAPHA^{1,2}

¹BUILDERS Ecole d'ingénieurs, 1 Rue Pierre et Marie Curie, Epron, France

²Arts & Métiers sciences and technologies – Innovation and Product Design Laboratory, 151 Boulevard de l'Hôpital, F-75013 Paris, France.

RESUME : L'objectif de cette recherche est d'évaluer les propriétés de migration du chlorure à l'état stationnaire des mortiers géopolymères à base de laitier de haut fourneau (MGPs) et des mortiers de ciment (MCs). Trois taux de matériaux à changement de phase microencapsulés (MCPM) : 0 %, 5 % et 10 % ont été incorporés dans les deux types de mortiers. En outre, trois taux de métakaolin (MK) : 0 %, 10 % et 20 %, ont été ajoutés pour étudier leur effet sur la performance des MGPs après l'ajout de MCPM. Les résultats ont montré que l'ajout de MK a augmenté la résistance en compression des MGPs-MCPM d'environ 10 MPa. Ces effets sont dus à la grande réactivité du MK, qui a favorisé une bonne dissolution de la silice et de l'aluminium dans le MK, qui a bien participé avec le calcium dans le laitier de haut fourneau pour créer les gels NASH et CASH. Ces gels ont amélioré les performances mécaniques des MGPs. D'autre part, l'ajout de MK a montré une réduction du coefficient de migration des ions chlorure (Dss). Cette diminution est due à une liaison physique et chimique sur les gels CASH et NASH du géopolymère après l'ajout de MK. Enfin, tous les MGPs-MCPM ont montré des performances mécaniques et une durabilité améliorée par rapport aux MCs.

Mots-clefs : Géopolymère, matériaux à changement de phase microencapsulés, résistance mécanique, durabilité, diffusion des chlorures.

I. INTRODUCTION

Le développement de bâtiments offrant une bonne efficacité énergétique fait l'objet d'une grande attention de la part des chercheurs en raison de leur impact considérable sur la consommation mondiale d'énergie (36 %) et les émissions de gaz à effet de serre (40 %) ("Energy efficiency – Topics," n.d.). Ces émissions de gaz à effet de serre sont principalement dues aux émissions de CO₂. En particulier, les émissions globales de CO₂ du secteur du bâtiment sont principalement dues à la production de matériaux de construction et à l'énergie nécessaire pour maintenir le confort thermique dans les bâtiments (Llantoy et al., 2020).

Dans ce contexte, l'incorporation de matériaux à changement de phase microencapsulés (MCPM) dans une matrice géopolymère pour concevoir un béton géopolymère-MCPM avec des performances environnementales améliorées pourrait être une solution prometteuse au problème de la réduction des émissions de CO₂ associées à l'utilisation de l'énergie dans les bâtiments et à la

production de matériaux de construction tels que le ciment Portland (El Moustapha et al., 2022; Shadnia et al., 2015). Selon Shadnia et al. (Shadnia et al., 2015), le MCPM a la capacité de réduire la température interne des cellules géopolymères d'environ 4,5 à 5,5°C. Dans une étude antérieure, El Moustapha et al. (El Moustapha et al., 2022) ont étudié les effets de la coexistence des gels CASH et NASH sur les performances thermiques d'un géopolymère-MCPM à base de laitier de haut fourneau et de métakaolin. Selon leurs résultats, la capacité thermique de géopolymère-MCPM était égale à 1280 J/Kg.K. Cette capacité est supérieure à la capacité thermique d'un mortier normalisé à base de ciment Portland.

Cependant, les études ci-dessus se limitent à l'étude des propriétés thermiques et mécaniques de ce nouveau matériau. Bien que la technologie se développe rapidement et attire l'attention des universitaires, la littérature révèle que peu de recherches ont été effectuées sur l'effet de l'ajout de MCPM sur la durabilité des géopolymères et aucune étude antérieure n'a été menée pour étudier la pénétration des ions chlorure. Il est donc essentiel d'évaluer la durabilité de ce nouveau matériau contre la pénétration des ions chlorure. En effet Il est également important de noter que, selon l'UICN (Union internationale pour la conservation de la nature), plus de 60 % de la population mondiale vit actuellement dans des zones côtières étendues. Les projections démographiques pour 2035 prévoient que ce chiffre dépassera 75 % ("Climat: vers un dérèglement géopolitique ?," n.d.). Cette perspective suggère que de nombreux futurs bâtiments dans ces zones risqueront d'être détruits au fil du temps en raison de la pénétration de chlorures.

La corrosion du béton armé causée par la pénétration des ions chlorure est un indicateur de la durabilité du béton qui a fait l'objet de recherches approfondies. Les chlorures peuvent pénétrer par diffusion ionique, absorption capillaire et convection en réponse aux gradients de pression des liquides. En dépassant l'armature incorporée, ils déclenchent la corrosion des barres d'armature, ce qui réduit la capacité du béton à supporter le poids et peut affaiblir le béton de la structure (Neville, 1995).

Cependant, de nombreuses études publiées sur les géopolymères sans l'ajout de MCPM montrent que les géopolymères ont une résistance à la pénétration des chlorures supérieure ou équivalente à celle des matériaux cimentaires (Ravikumar and Neithalath, 2013). Cependant, ces études se concentrent sur la mesure de la pénétration des chlorures à l'aide du RCPT (Rapid Chloride Permeation Test) ou de l'ASTM C1202/AASHTO T277. Cette technique est fréquemment utilisée pour évaluer la résistance des matériaux cimentaires à la pénétration des chlorures (Huang and Yang, 2018). Cette approche est basée sur la mesure de la conductivité électrique du béton, qui est influencée par la composition de la solution interstitielle, qui à son tour a un impact significatif sur les résultats des mesures des matériaux activés par les alcalins. Cependant, le géopolymère présente des valeurs de conductivité électrique élevées qui sont dues à une forte concentration d'alcalins dans sa solution interstitielle. Cela est dû à la forte concentration de Na⁺ et d'autres cations. Ces charges de cations alcalins enregistrées sont également prises en compte pendant le processus d'essai et peuvent interférer avec les résultats finaux (Lloyd et al., 2010). Bernal et al. (Bernal and Provis, 2014) indiquent que cette méthode ne doit pas être considérée comme un indicateur fiable pour évaluer la résistance des géopolymères à la pénétration des chlorures.

Il est donc plus fiable de mesurer directement le flux de chlorure à travers le matériau, plutôt que d'utiliser la charge transmise comme indicateur de diffusion. Les méthodes de migration accélérée ("état stationnaire ") développées par Andrade et al. (Andrade, 1993) et Tang et al. (Luping and Nilsson, 1992) se sont avérées fiables pour calculer le coefficient de migration des chlorures. Contrairement à la méthode RCPT qui prend en compte les mesures de conductivité électrique du

béton, ces essais mesurent la concentration des ions chlorure qui ont migré dans le béton en accélérant le transport des chlorures à l'aide d'un champ électrique appliqué à l'échantillon testé, ce qui permet de calculer directement le coefficient de migration des ions chlorure à l'état d'équilibre (Dss).

Le but de cette recherche est d'évaluer les propriétés de pénétration des ions chlorure en utilisant la méthode de l'état stationnaire des mortiers géopolymères à base de laitier de haut fourneau (MGPs) et des mortiers à base de ciment Portland (MCs) avec l'ajout de 3 taux de MCPM tels que 0, 5 et 10% dans les deux types de mortiers étudiés. D'autre part, cette étude vise à étudier l'effet de l'inclusion de 0, 10 et 20% de métakaolin dans les MGPs afin d'évaluer l'effet de la coexistence des gels CASH et NASH sur la résistance en compression et la pénétration des ions chlorure sur ces mortiers.

II. PROCÉDURE EXPÉRIMENTALE

A. Matériaux

Le MCPM considéré dans cette étude se présente sous la forme d'une micro-encapsule sphérique blanche. Ils ont une température de fusion de 28°C et une densité de 0,84 g/cm³.

Le tableau 1 présente la composition chimique et les caractéristiques physiques du ciment (CEM II 32.5), du laitier de haut fourneau et du métakaolin.

TABLEAU 1. Composition chimique et caractéristiques physiques du ciment, du laitier de haut fourneau et du métakaolin.

Composition chimique (%)	CEM II	Laitier	MK
SiO ₂	7.47	37.3	55
Al ₂ O ₃	2.18	10.7	41
Fe ₂ O ₃	2.84	0.2	1.2
CaO	69.02	43.0	0.1
MgO	-	6.5	0.2
TiO ₂	-	0.7	0.4
(Na ₂ O + K ₂ O) _{eq}	-	0.8	1.8
Specific gravity	3.03	2.9	2.4
Blaine specific surface area (m ² /g)	0.37	0.44	17
verage grain size (µm)	8.47	13.25	7.13

La solution d'activation est une combinaison d'hydroxyde de sodium et de silicate de sodium. La composition du silicate de sodium est la suivante : 27,53 % de SiO₂, 11,47 % de Na₂O et 61 % de H₂O. L'hydroxyde de sodium est constitué à 98 % de soude caustique pure. Le sable utilisé est un sable normalisé (CEN NF 196-1) qui a une densité de 2,6 g/cm³.

B. Procédure de malaxage et conditions de durcissement

Cette étude a examiné douze formulations, trois à base de mortier normalisé et neuf à base de mortier géopolymère. Le rapport eau/liant de 0,5 et le rapport sable/liant de 3 étaient constants pour les deux types de mortier. Le liant géopolymère, équivalent au ciment, est défini comme la somme du laitier de haut fourneau, du MK et des constituants solides de la solution alcaline. Nous avons maintenu un rapport massique de 3 pour (laitier+MK)/SA, où SA représente les constituants solides de la solution alcaline. Ces choix sont en accord avec les recommandations présentées dans l'étude de Hasnaoui et al. (Hasnaoui et al., 2019). Les taux de MK ajoutés aux formulations MGP sont de 0 %, 10 % et 20 %. Dans toutes les formulations des MGPs, le rapport entre le silicate de sodium (SS) et l'hydroxyde de sodium (SS/NaOH) est systématiquement fixé à 2,5. Cette teneur élevée en silicate de sodium est destinée à garantir des niveaux de silice optimaux après l'incorporation de notre pourcentage accru de métakaolin (20 % MK) (Bernal et al., 2012a).

Trois concentrations ont été choisies pour le MCPM dans les deux types de mortier (à base de ciment et géopolymère), 0, 5 et 10% respectivement. La méthode choisie pour l'incorporation de MCPM est la méthode de remplacement du sable par le MCPM (remplacement volumique en pourcentage du sable).

Le tableau 2 présente les proportions de mélange en kg/m³.

TABLEAU 2. Formulations de MCs et MGPs (kg/m³) (El Moustapha et al., 2022).

Sample	Proportions des mélanges (kg/m ³)								
	Ciment	Laitier	MK	Sable	MCPM	Na ₂ SiO ₃	NaOH	Eau MGPs	Eau MCs
MC _{0/0/0}	585.9	-	-	1757.8	-	-	-	-	293.0
MC _{0/0/5}	585.9	-	-	1673.8	28.4	-	-	-	293.0
MC _{0/0/10}	585.9	-	-	1582.0	56.8	-	-	-	293.0
MGP _{100/0/0}	-	439.5	-	1757.8	-	267.9	127.7	42.6	-
MGP _{100/0/5}	-	439.5	-	1673.8	28.4	267.9	127.7	42.6	-
MGP _{100/0/10}	-	439.5	-	1582.0	56.8	267.9	127.7	42.6	-
MGP _{90/10/0}	-	395.5	43.9	1757.8	-	267.9	127.7	42.6	-
MGP _{90/10/5}	-	395.5	43.9	1673.8	28.4	267.9	127.7	42.6	-
MGP _{90/10/10}	-	395.5	43.9	1582.0	56.8	267.9	127.7	42.6	-
MGP _{80/20/0}	-	351.6	87.9	1757.8	-	267.9	127.7	42.6	-
MGP _{80/20/5}	-	351.6	87.9	1673.8	28.4	267.9	127.7	42.6	-
MGP _{80/20/10}	-	351.6	87.9	1582.0	56.8	267.9	127.7	42.6	-

Les MCs ont été fabriqués conformément à la norme NF 196-1 (EN 196-1, 2016.). Ces mortiers ont été choisis comme références pour la comparaison avec les mortiers à base de géopolymère.

Néanmoins, dans le cas du géopolymère, le laitier et le MK ont été mélangés avec la solution alcaline et l'eau pendant une durée de 90 secondes pour obtenir une pâte homogène (Pilehvar et al., 2017). Le sable a ensuite été introduit et mélangé pendant 5 minutes, puis le MCPM a été introduit et mélangé pendant 2 minutes. Après cette étape, le moulage a été effectué dans des

éprouvettes de $40 \times 40 \times 160 \text{ mm}^3$ pour l'essai de résistance en compression, et dans des moules cylindriques de dimensions ($D = 63 \text{ mm}$; $H = 130 \text{ mm}$) pour l'essai de migration des ions chlorure à l'état stable. Les échantillons ont été stockés dans une pièce climatisée (température 20°C et humidité relative 50%) pendant 48 heures avant d'être démoulés.

C. Méthodes de caractérisation

La résistance en compression des mortiers a été mesurée à l'aide d'une presse hydraulique (figure 1) conformément à la norme NF EN 196-1 ("EN 196-1, 2016). Pour chaque formulation, six échantillons ont été testés après 28 et 90 jours de cure. Les essais de migration des chlorures sont réalisés conformément à la norme XP-P18-461 ("NF XP P18-461, 2012). Le coefficient de migration des chlorures dans un état stationnaire " D_{ss} " (m^2/s) peut être calculé à partir de l'équation (1) sous la forme suivante :

$$D_{ss} = \frac{RTL}{ZFEC_0} J \quad (1)$$

Où J est le flux des ions chlorure ($\text{mol}/\text{m}^2.\text{s}$), z est la valence de l'ion égale à 1, F est la constante de Faraday ($96480 \text{ J}/(\text{V}.\text{mol})$), E est le champ électrique mesuré (V/m), L est l'épaisseur de l'échantillon ($0,04 \text{ m}$), R est la constante des gaz parfaits ($8,314 \text{ J}/(\text{mol}.\text{K})$), T est la température absolue ($293,15 \pm 2 \text{ K}$), C_0 est la concentration en chlorure dans le compartiment amont ($0,5 \text{ mol}/\text{m}^3$).

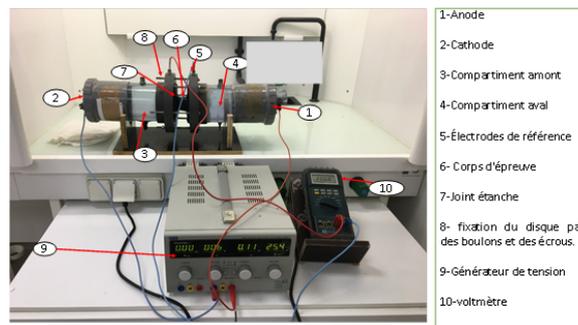


FIGURE 1. Dispositif illustrant l'essai de migration des ions chlorure de sodium sous champ électrique en régime stationnaire et non stationnaire.

III. RÉSULTATS ET DISCUSSION

A. Résistance en compression

Les résultats de la résistance en compression après 28 et 90 jours de durcissement sont présentés dans la figure 2. Aucune différence significative n'apparaît entre les résistances en compression entre 28 et 90 jours pour les MGPs, contrairement au MCs qui montrent une augmentation de sa résistance à la compression entre 28 et 90 jours. En effet, le géopolymère peut atteindre la majeure partie de sa résistance mécanique dans les premiers jours de son durcissement en raison de sa forte liaison chimique (Bernal et al., 2012a). Cependant, les résistances en compression des MCs et des MGPs diminuent avec l'augmentation de la teneur en MCPM. Après 28 jours de durcissement, l'ajout de 10 % de MCPM a entraîné une réduction de la résistance en compression allant jusqu'à 7 MPa pour les MCs et 30 MPa pour les MGPs sans MK respectivement. En fait, l'augmentation de la teneur en MCPM entraîne une augmentation des vides dans les deux types

de matrice. Ces vides peuvent s'expliquer par l'agglomération du MPCM au cours du processus de mélange. Les images MEB et les mesures de la porosité à l'eau et du module d'Young dans notre étude précédente (EL Moustapha et al., 2022, EL Moustapha et al., 2023) montrent que le MPCM affecte davantage la matrice géopolymère que la matrice cimentaire. Cela indique que la connexion entre le MPCM et la matrice géopolymère est faible et que le MPCM peut induire plus de vides d'air dans la matrice géopolymère que dans la matrice cimentaire, ce qui affaiblit la résistance à la compression.

D'autre part, la diminution de la résistance à la compression de deux types de mortier est due à la faible rigidité et résistance mécanique de MCPM par rapport au sable, ce qui leur permet de se briser facilement sous l'effet de la force de compression (Shadnia et al., 2015).

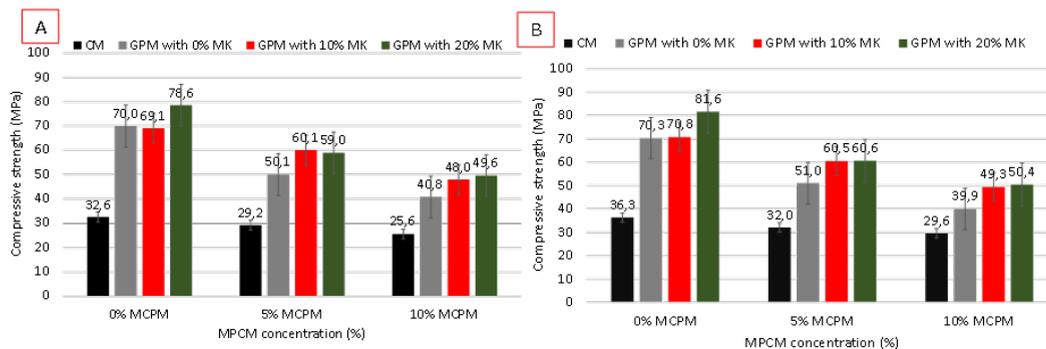


FIGURE 2. Résistance en compression A : 28 jours ; B : 90 jours.

La résistance mécanique du mortier géopolymère avec 0% MK était assez élevée. Selon NAZARI et al. (Nazari and Sanjayan, 2015), l'augmentation de la teneur en activateur est à l'origine de cette augmentation. En effet, le pH élevé de la solution favorise une bonne dissolution des ions de silice et d'alumine du laitier, créant ainsi un gel mécaniquement résistant. Selon Bernal et al. (Bernal et al., 2012a), contrairement au gel CSH observé dans un béton classique, le calcium créé lors de l'interaction entre les ions Na, les ions Si et les ions Al a conduit à la création du gel CASH, qui est riche en Al.

En outre, la résistance en compression à 28 jours de tous les échantillons a augmenté avec l'ajout de 10 % et 20 % de MK aux mortiers géopolymères avec les deux concentrations de MCPM (5 et 10 %). La résistance en compression est passée de 40,8 à 49,6 MPa pour une concentration de 10 % de MCPM. À 90 jours, l'ajout de MK a eu le même effet sur l'augmentation de la résistance en compression. Cependant, contrairement à l'ajout de 20% de MK, l'ajout de 10% de MK n'a pas augmenté la résistance en compression du MGP sans MCPM (0% MCPM), contrairement aux MGPs avec 5% et 10% de MCPM. Ce résultat peut être dû à l'effet de remplissage provoqué par l'activation du MK, qui a comblé les vides causés par le MCPM, améliorant ainsi les performances mécaniques du géopolymère (Ibrahim et al., 2018). La plus petite taille des particules de MK et sa surface spécifique plus élevée par rapport au laitier, qui lui permettent de réagir plus rapidement, expliquent cette amélioration de la résistance mécanique. La seconde explication est due à la forte concentration d'activateur et aux quantités élevées d' Al_2O_3 et de SiO_2 dans le MK (Huseien et al., 2018). La forte teneur en activateur facilite la géopolymérisation en favorisant la dissolution de la silice et de l'aluminium dans la MK et en produisant du gel NASH et du gel CASH en plus du CASH généré par l'activation du laitier (Bernal et al., 2012a; Ibrahim et al., 2018; Sabir et al., 2001).

B. Migration des ions de chlorure à l'état stationnaire

La figure 3 présente les mesures de migration des chlorures à l'état stationnaire des échantillons après 28 jours de durcissement. La figure 3 (A) présente les résultats de la concentration cumulative de chlorure mesurée dans le compartiment aval en fonction du temps. La figure 3 (B) montre le coefficient de migration du chlorure à l'état stationnaire D_{ss} . Le MC avec 0 % de MCPM présente une concentration cumulée de chlorure significativement plus faible que le MGP avec 100 % de laitier et 0 % de MCPM. Dans ce type d'essai, les matériaux à base de ciment sont généralement affectés par l'adsorption des chlorures sur les parois des pores capillaires. Cette adsorption est le résultat de réactions entre les chlorures et les aluminates présents dans la matrice du ciment. Ces réactions conduisent à l'hydratation du C_3A et du C_4AF et à la formation du sel de Friedel, ce qui réduit le taux de concentration des chlorures (Luping and Nilsson, 1993).

D'autre part, la fixation physique, dans laquelle l'adsorption des chlorures se produit sur les produits du gel d'hydratation des CSH, retarde la pénétration des chlorures (Zibara, 2001). Notre étude précédente (El Moustapha et al., 2023) montre que les MGPs présentent une fixation physique et chimique assez élevée. La figure 3 (A) montre que les MGPs avec 10 et 20% de MK ont une concentration cumulée de chlorure plus faible que les MGPs avec 100% du laitier, et donc un coefficient de migration plus faible.

Une explication est que le gel NASH formé après l'ajout de MK est plus résistant à la température de séchage que le gel CASH formé par l'activation du laitier (Neville, 1995). Cela peut également réduire davantage l'interconnexion des pores par rapport aux mortiers contenant 100 % du laitier. En outre, il a été prouvé que l'ajout de MK réduit le diamètre critique "dcr" des MGPs et la porosité totale mesurée par la porosimétrie par intrusion au mercure, réduisant ainsi l'interconnexion des pores (El Moustapha et al., 2023). L'ajout de MK augmente en outre la résistivité électrique (El Moustapha et al., 2023). En effet, un matériau contenant un plus petit nombre de pores interconnectés avec un chemin plus tortueux bloquera le passage des ions à travers la structure poreuse. Polder et al. (Polder et al., 2000) signalent qu'une faible résistivité du béton est corrélée à une pénétration rapide des chlorures et à un taux de corrosion élevé. En outre, Bernal et al. (Bernal et al., 2012b) et Mehta et al. (Mehta et al., 2020) ont souligné que la coexistence des gels CASH et NASH pour former le gel CNASH est efficace pour empêcher la pénétration des chlorures dans les matériaux à base de géopolymères. Toutes ces raisons peuvent expliquer la réduction de la pénétration des ions chlorure dans les MGPs après l'ajout de MK.

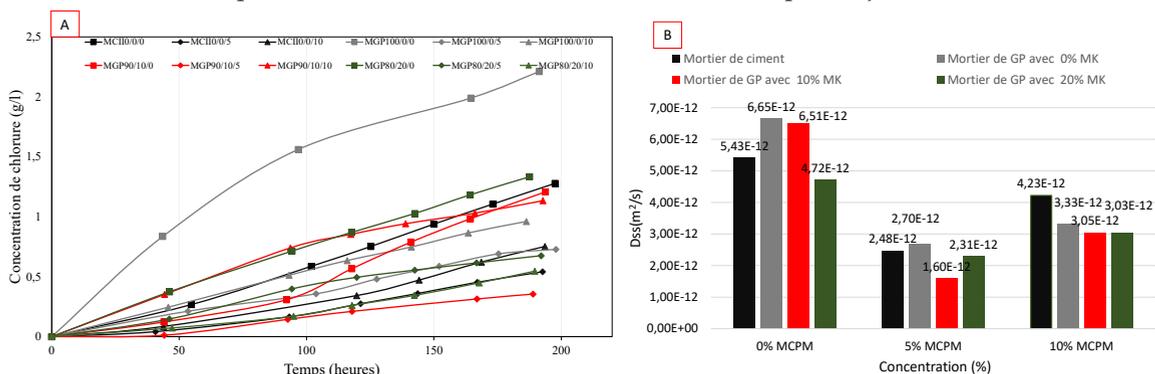


FIGURE 3. Mesure de la migration des chlorures à l'état stationnaire : (A) Concentration cumulative de chlorures en fonction du temps, (B) Coefficient de migration à l'état stationnaire "D_{ss}".

L'ajout de MCPM conduit également à une diminution de la pénétration des ions chlorure dans tous les mortiers étudiés. Ceci peut être dû à l'augmentation de la tortuosité causée par l'agglomération de MCPM (El Moustapha et al., 2023). En effet, l'augmentation de la tortuosité joue un rôle très important dans les propriétés de transport des matériaux de construction, en particulier le coefficient de diffusion des chlorures.

CONCLUSION

Cette recherche visait à évaluer les propriétés de pénétration des ions chlorure à l'état stationnaire des MGPs et des MCs contenant 3 taux de MCPM tels que 0, 5 et 10%. D'autre part, le but de cette étude était d'examiner l'effet de l'inclusion de 0, 10 et 20% de métakaolin dans les MGPs afin d'évaluer l'effet de la coexistence des gels CASH et NASH sur la résistance en compression et la pénétration des ions chlorure dans ces derniers. Les résultats montrent que l'inclusion du métakaolin a provoqué:

- Une augmentation de la résistance en compression du mortier géopolymère-MCPM, attribuée à la taille plus petite des particules de MK et à sa surface spécifique plus élevée par rapport au laitier, qui lui permettent de réagir plus rapidement, et à la concentration élevée d'activateur, qui a favorisé la dissolution de grandes quantités de silice et d'aluminium dans le MK, produisant plus de gel NASH et de gel CASH.
- Une diminution du coefficient de migration des ions chlorure à l'état stationnaire, qui est généralement attribuée à une fixation physique et chimique sur les parois des gels CASH et NASH causée par l'ajout de MK.

Enfin, l'ajout de MCPM a conduit à une réduction de la résistance en compression, mais a également diminué le coefficient de migration à l'état stationnaire en raison de son influence sur la tortuosité des mortiers étudiés (effet de l'agglomération lors du mélange) d'une part et/ou en raison de la nature non poreuse de MCPM (non perméable) comparée à la nature poreuse du sable, qui peut bloquer la pénétration des ions chlorure d'autre part.

REMERCIEMENTS

L'étude expérimentale a été réalisée à l'Institut de Recherche en Génie Civil et Mécanique (laboratoire Gem) - CNRS UMR 6183, Saint Nazaire. Nous tenons à remercier l'équipe de l'Institut de Recherche en Génie Civil et Mécanique.

REFERENCES

- Andrade, C., 1993. Calculation of chloride diffusion coefficients in concrete from ionic migration measurements. *Cem. Concr. Res.* 23, 724–742. [https://doi.org/10.1016/0008-8846\(93\)90023-3](https://doi.org/10.1016/0008-8846(93)90023-3)
- Bernal, S.A., Mejía de Gutiérrez, R., Provis, J.L., 2012a. Engineering and durability properties of concretes based on alkali-activated granulated blast furnace slag/metakaolin blends. *Constr. Build. Mater.* 33, 99–108. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2012.01.017>
- Bernal, S.A., Mejía de Gutiérrez, R., Provis, J.L., 2012b. Engineering and durability properties of concretes based on alkali-activated granulated blast furnace slag/metakaolin blends. *Constr. Build. Mater.* 33, 99–108. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2012.01.017>

- Bernal, S.A., Provis, J.L., 2014. Durability of Alkali-Activated Materials: Progress and Perspectives. *J. Am. Ceram. Soc.* 97, 997–1008. <https://doi.org/10.1111/jace.12831>
- Bi, L., Long, G., Ma, C., Xie, Y., 2020. Mechanical properties and water absorption of steam-cured mortar containing phase change composites. *Constr. Build. Mater.* 248, 118707. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2020.118707>
- Cao, V.D., Pilehvar, S., Salas-Bringas, C., Szczotok, A.M., Bui, T.Q., Carmona, M., Rodriguez, J.F., Kjøniksen, A.-L., 2019. Thermal analysis of geopolymer concrete walls containing microencapsulated phase change materials for building applications. *Sol. Energy* 178, 295–307. <https://doi.org/10.1016/j.solener.2018.12.039>
- Cao, V.D., Pilehvar, S., Salas-Bringas, C., Szczotok, A.M., Rodriguez, J.F., Carmona, M., Al-Manasir, N., Kjøniksen, A.-L., 2017. Microencapsulated phase change materials for enhancing the thermal performance of Portland cement concrete and geopolymer concrete for passive building applications. *Energy Convers. Manag.* 133, 56–66. <https://doi.org/10.1016/j.enconman.2016.11.061>
- Caré, S., 2003. Influence of aggregates on chloride diffusion coefficient into mortar. *Cem. Concr. Res.* 33, 1021–1028. [https://doi.org/10.1016/S0008-8846\(03\)00009-7](https://doi.org/10.1016/S0008-8846(03)00009-7)
- Climat: vers un dérèglement géopolitique? [WWW Document], n.d. URL <https://www.senat.fr/rap/r15-014/r15-0143.html> (accessed 3.22.22).
- El Moustapha, B., Bonnet, S., Khelidj, A., Leklou, N., Froelich, D., Babah, I.A., Charbuillet, C., Khalifa, A., 2022. Compensation of the negative effects of micro-encapsulated phase change materials by incorporating metakaolin in geopolymers based on blast furnace slag. *Constr. Build. Mater.* 314, 125556. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2021.125556>
- El Moustapha, B., Bonnet, S., Khelidj, A., Maranzana, N., Froelich, D., Khalifa, A., Ahmedou Babah, I., 2023. Effects of microencapsulated phase change materials on chloride ion transport properties of geopolymers incorporating slag and, metakaolin, and cement-based mortars. *J. Build. Eng.* 74, 106887. <https://doi.org/10.1016/j.jobe.2023.106887>
- EN 196-1. Methods of testing cement- Part 1: Determination of strength. European committee for standardization, 2016, n.d.
- Energy efficiency – Topics [WWW Document], n.d. . IEA. URL <https://www.iea.org/topics/energy-efficiency> (accessed 3.22.22).
- Hasnaoui, A., Ghorbel, E., Wardeh, G., 2019. Optimization approach of granulated blast furnace slag and metakaolin based geopolymer mortars. *Constr. Build. Mater.* 198, 10–26. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2018.11.251>
- Huang, K.-S., Yang, C.-C., 2018. Using RCPT determine the migration coefficient to assess the durability of concrete. *Constr. Build. Mater.* 167, 822–830. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2018.02.109>
- Huseien, G.F., Mirza, J., Ismail, M., Ghoshal, S.K., Ariffin, M.A.M., 2018. Effect of metakaolin replaced granulated blast furnace slag on fresh and early strength properties of geopolymer mortar. *Ain Shams Eng. J.* 9, 1557–1566. <https://doi.org/10.1016/j.asej.2016.11.011>
- Ibrahim, M., Johari, M.A.M., Maslehuddin, M., Rahman, M.K., 2018. Influence of nano-SiO₂ on the strength and microstructure of natural pozzolan based alkali activated concrete. *Constr. Build. Mater.* 173, 573–585. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2018.04.051>
- Llantoy, N., Chàfer, M., Cabeza, L.F., 2020. A comparative life cycle assessment (LCA) of different insulation materials for buildings in the continental Mediterranean climate. *Energy Build.* 225, 110323. <https://doi.org/10.1016/j.enbuild.2020.110323>

- Luping, T., Nilsson, L.-O., 1993. Chloride binding capacity and binding isotherms of OPC pastes and mortars. *Cem. Concr. Res.* 23, 247–253. [https://doi.org/10.1016/0008-8846\(93\)90089-R](https://doi.org/10.1016/0008-8846(93)90089-R)
- Luping, T., Nilsson, L.-O., 1992. CHLORIDE DIFFUSIVITY IN HIGH STRENGTH CONCRETE AT DIFFERENT AGES. *Nord. Concr. Res. Publ. NO 11*.
- Mehta, A., Siddique, R., Ozbakkaloglu, T., Uddin Ahmed Shaikh, F., Belarbi, R., 2020. Fly ash and ground granulated blast furnace slag-based alkali-activated concrete: Mechanical, transport and microstructural properties. *Constr. Build. Mater.* 257, 119548. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2020.119548>
- Nazari, A., Sanjayan, J.G., 2015. Synthesis of geopolymer from industrial wastes. *J. Clean. Prod.* 99, 297–304. <https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2015.03.003>
- Neville, A., 1995. Chloride attack of reinforced concrete: an overview. *Mater. Struct.* 28, 63–70. <https://doi.org/10.1007/BF02473172>
- NF XP P18-461, “Test on hardened concrete: Accelerated test of chloride ions in steady state, determination of the effective diffusion coefficient of chloride ions,” French Standard, France, 2012.(in French)., n.d.
- Pilehvar, S., Cao, V.D., Szczotok, A.M., Valentini, L., Salvioni, D., Magistri, M., Pamies, R., Kjøniksen, A.-L., 2017. Mechanical properties and microscale changes of geopolymer concrete and Portland cement concrete containing micro-encapsulated phase change materials. *Cem. Concr. Res.* 100, 341–349. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2017.07.012>
- Polder, R., Andrade, C., Elsener, B., Vennesland, Ø., Gulikers, J., Weidert, R., Raupach, M., 2000. Test methods for on site measurement of resistivity of concrete. *Mater. Struct.* 33, 603–611. <https://doi.org/10.1007/BF02480599>
- Ravikumar, D., Neithalath, N., 2013. An electrical impedance investigation into the chloride ion transport resistance of alkali silicate powder activated slag concretes. *Cem. Concr. Compos.* 44, 58–68. <https://doi.org/10.1016/j.cemconcomp.2013.06.002>
- Sabir, B.B., Wild, S., Bai, J., 2001. Metakaolin and calcined clays as pozzolans for concrete: a review. *Cem. Concr. Compos., Metakaolin and Calcined Clays* 23, 441–454. [https://doi.org/10.1016/S0958-9465\(00\)00092-5](https://doi.org/10.1016/S0958-9465(00)00092-5)
- Shadnia, R., Zhang, L., Li, P., 2015. Experimental study of geopolymer mortar with incorporated PCM. *Constr. Build. Mater.* 84, 95–102. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2015.03.066>
- Zhang, J., Shi, C., Zhang, Z., Ou, Z., 2017. Durability of alkali-activated materials in aggressive environments: A review on recent studies. *Constr. Build. Mater.* 152, 598–613. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2017.07.027>
- Zibara, H., 2001. Binding of external chlorides by cement pastes (Thesis).

Contribution de la mécanique de la rupture et des techniques ultrasonores pour l'inspection et la surveillance des ouvrages en bois

Jérôme S. AFOUTOU

Université de Limoges, Laboratoire GC2D - UR 14477, 87000 Limoges, France

RESUME L'utilisation et la durée de vie des structures en bois sont souvent mises en cause par les problématiques liées à l'humidité et à la fissuration. Cet article présente des outils pour le monitoring de la santé structurale des ouvrages bois en service, notamment l'évaluation des propriétés mécaniques résiduelles et le suivi d'une fissuration volumique. Ces structures étant généralement sous sollicitations complexes, une approche numérique permet de quantifier la contribution de chaque mode élémentaire de rupture dans le processus de fissuration et d'avoir leur distribution dans l'épaisseur de l'élément considéré. L'approche expérimentale repose sur le modèle de Hankinson 3D développé et validé sur la base des mesures de vitesses de propagation d'ondes ultrasonores. Appliqué à la localisation 3D des sources d'émission acoustique, les algorithmes développés ont permis de localiser avec succès lesdites sources. Une autre application du modèle a permis de déterminer la totalité des composantes de la matrice de rigidité du matériau bois, et ce, uniquement à partir des ondes de compression et d'un seul échantillon.

Mots-clefs Mécanique de la rupture 3D ; Contrôle Non Destructif (CND), Propriétés mécaniques résiduelles ; Méthode des Eléments Finis ; Structures en bois

I. INTRODUCTION

L'augmentation du nombre d'ouvrages de génie civil en bois demande de développer des approches reposant, à la fois, sur de l'inspection périodique et de la surveillance en continue. Dans ce contexte, les techniques de Contrôle Non Destructif (CND), comme les méthodes ultrasonores et la technique d'émission acoustique, offrent l'avantage d'être non invasives vis-à-vis du matériau. Les méthodes ultrasonores permettent de lier les vitesses de propagation d'ondes, la masse volumique et les propriétés d'élasticité du matériau d'une part. D'autre part, les risques de rupture et d'évolution spatio-temporelle d'une fissure peuvent être évalués en employant, respectivement, le pronostic énergétique de la mécanique de la rupture et la localisation de sources de fissuration grâce à la technique d'émission acoustique. Les deux techniques CND reposent sur une connaissance des vitesses de propagation d'ondes élastiques.

Du fait de l'orthotropie du matériau bois, les vitesses de propagation d'ondes dépendent de la direction de propagation (Bucur, 1988). Cette orthotropie impacte également le calcul de rigidités locales et de résistance. Dans ce contexte, Hankinson (1921) a été l'un des premiers scientifiques à proposer un modèle empirique afin de prédire les contraintes en compression dans les pièces de bois présentes dans les avions de l'époque en dehors de leur repère principal d'orthotropie. Au-delà de l'utilisation de la formule de Hankinson pour déterminer des propriétés mécaniques (module d'élasticité ou résistance mécanique) (Forest Products Laboratory, 2010), elle est couramment utilisée pour estimer les vitesses de propagation d'ondes ultrasonores dans le bois ou dans des produits dérivés du bois Beall (2002). Cependant, ces modèles sont toujours appliqués pour des configurations bidimensionnelles. La localisation des sources acoustiques dans les structures 3D isotropes et hétérogènes est une tâche complexe (Yin et al., 2021). Lorsque l'orthotropie est considérée, la localisation 3D devient encore plus complexe et demeure aujourd'hui un réel verrou scientifique. Ainsi, en absence d'un modèle phénoménologique tridimensionnel permettant d'estimer les vitesses de propagation d'ondes élastiques, les travaux de localisation de sources acoustiques dans le bois, sont soit linéaire (1D) ou planaire (2D).

L'objectif de ce travail, est de mettre côte à côte la problématique de la fissuration par des approches énergétiques dans un milieu orthotrope hétérogène et la physique de l'émission acoustique avec pour but de suivre une fissure et d'en-déduire son état énergétique en vue de lancer des alertes dans le cadre d'une politique de surveillance. Pour cela, nous présentons une généralisation tridimensionnelle du modèle empirique d'Hankinson. Après validation expérimentale du modèle, nous montrons une première application pour caractériser l'ensemble des composantes de la matrice de rigidité du bois. Ensuite, un algorithme est développé pour réaliser la localisation tridimensionnelle des sources acoustiques dans un milieu orthotrope. Enfin, une approche de découplage de modes de rupture permet de quantifier la contribution de chaque mode de rupture élémentaire dans le processus de fissuration. Leur distribution dans l'épaisseur explique, en partie, la forme du front de fissure en propagation.

II. MODELE HANKINSON 3D : FORMALISME ET VALIDATION EXPERIMENTALE

A. Formalisme mathématique

La proposition d'un modèle généralisé à une approche tridimensionnelle suppose que le modèle soit compatible avec un modèle bidimensionnel (celui de Hankinson), et ce, dans chaque plan principal d'orthotropie. Considérons un repère local d'orthotropie avec une direction de propagation d'onde repérée par une description sphérique. Comme indiqué en Fig. 1, le repère principal d'orthotropie, formé des directions longitudinale, radiale et tangentielle, induit trois plans de symétrie LT, LR et TR. Nous proposons alors le modèle phénoménologique tridimensionnel (3D) suivant :

$$V(\alpha, \theta) = \frac{V_L \cdot V_R \cdot V_T}{V_R \cdot \cos^l(\theta) \cdot [V_L \cdot \cos^m(\alpha) + V_T \cdot \sin^m(\alpha)] + V_T \cdot \sin^l(\theta) \cdot [V_L \cdot \cos^n(\alpha) + V_R \cdot \sin^n(\alpha)]} \quad (1)$$

Par rapport au modèle original, l'expression (1) intègre les trois vitesses de propagation d'ondes lorsque la droite de propagation est colinéaire aux trois directions d'orthotropie, à savoir, V_L , V_R et V_T .

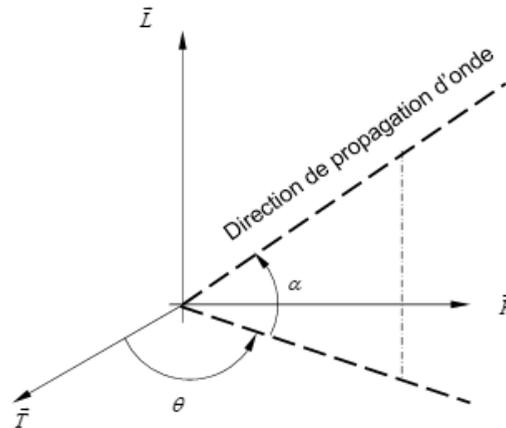


FIGURE 1. Direction de propagation d'onde positionnée dans le repère principal d'orthotropie

Trois constantes de calage (n , m et l) complètent le modèle. Celui-ci respecte le formalisme bi-dimensionnel. En effet, en reprenant les conditions angulaires précédentes, nous obtenons la table de conversion précisée dans le [Tableau 1](#).

TABLEAU 1. Table de conversion

Plan	Angle	Expression 2D
LR	$\alpha \in \left[0, \frac{\pi}{2}\right], \left(\theta = \frac{\pi}{2}\right)$	$V_{LR}(\alpha) = \frac{V_L \cdot V_R}{V_L \cdot \cos^n(\alpha) + V_R \cdot \sin^n(\alpha)}$
LT	$\alpha \in \left[0, \frac{\pi}{2}\right], (\theta = 0)$	$V_{LT}(\alpha) = \frac{V_L \cdot V_T}{V_L \cdot \cos^m(\alpha) + V_T \cdot \sin^m(\alpha)}$
TR	$\theta \in \left[0, \frac{\pi}{2}\right], (\alpha = 0)$	$V_{RT}(\theta) = \frac{V_R \cdot V_T}{V_R \cdot \cos^l(\theta) + V_T \cdot \sin^l(\theta)}$

B. Validation expérimentale

Considérons un cube de Douglas massif de 130mm de côté issu d'une poutre de section transversale $140 \times 140 \text{ mm}^2$. Les dimensions du cube ont été dictées par la fréquence de résonance des transducteurs employés ($54 \text{ kHz} \pm 5 \text{ kHz}$). L'usinage de l'éprouvette privilégie la direction longitudinale \vec{L} parallèle à l'axe z du repère cartésien global, [Fig. 2-a](#). Des échantillons supplémentaires (situés aux deux bouts du cube) ont été prélevés afin de déterminer l'humidité moyenne par double pesée après séchage dans une étuve à 103°C . L'humidité moyenne mesurée est de 12,6% correspondant à une masse volumique de 430 kg/m^3 . La vitesse de propagation des

ondes ultrasonores V est définie en considérant le temps de vol TOF et la distance d_{us} séparant les points d'émission et de réception :

$$V = \frac{d_{us}}{TOF} \quad (2)$$

Les impulsions sont générées par un appareil ultrasonore (Pundit PL-200). Le temps de vol est mesuré avec une résolution temporelle de $0,1\mu s$ avec un rapport Signal/Bruit (SNR) supérieur à 10dB. En utilisant le critère d'Akaike pour déterminer le TOF , on assure une bonne estimation de la vitesse en réception (Arciniegas et al., 2015). Afin d'avoir une ouverture angulaire optimale, nous avons employé des tirs semi-directs (AFNOR 2005), Fig. 2-b. Cela représente, au total, 243 lignes de propagation ($0^\circ \leq \alpha \leq 90^\circ$ et $20^\circ \leq \theta \leq 90^\circ$).

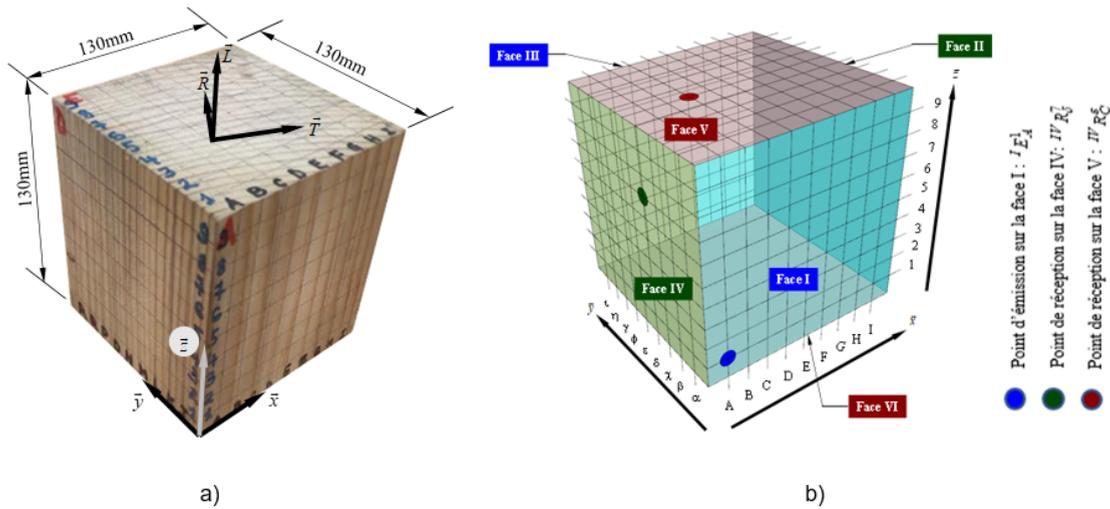


FIGURE 2. a) Eprouvette de Douglas, b) Codification de la position des points d'émission et de réception

En complément des mesures de vitesses expérimentales, une boucle de 'multiplexage', basée sur l'expression (1), est employée pour calculer en parallèle les vitesses théoriques pour l'ensemble des tirs. Le bois étant orthotrope cylindrique, les orientations locales des vecteurs unitaires des directions \vec{R} et \vec{T} évoluent selon les cernes de croissance, entraînant ainsi des variations dans les angles (α, θ) le long du trajet l'onde. L'orthotropie cylindrique est prise en considération en positionnant la moëlle de la grume que nous supposons colinéaire à la direction \vec{L} des fibres. La boucle de 'multiplexage' est implémentée sur un support Eléments Finis et intégrée dans un algorithme d'optimisation. L'optimisation consiste à minimiser une fonction d'écart entre les vitesses expérimentales et les vitesses théoriques. La solution recherchée est le vecteur des six paramètres de la loi d'Hankinson 3D qui minimise cet écart entre l'ensemble des vitesses. A la fin de l'optimisation, un écart moyen de 141 m/s sur l'ensemble des tirs est obtenu ; et les valeurs correspondantes des six paramètres sont répertoriées dans le Tableau 2. La Figure 3 montre le tracé 3D de l'inverse des vitesses pour différents trajets d'ondes.

TABLEAU 2. Paramètres d'Hankinson 3D optimisés

V_L (m/s)	V_R (m/s)	V_T (m/s)	l	m	n
5780	1980	1240	1,97	1,63	1,73

On peut distinguer sur le tracé, les comportements des vitesses de propagation dans les trois principaux plans d'orthotropie et dans les directions principales.

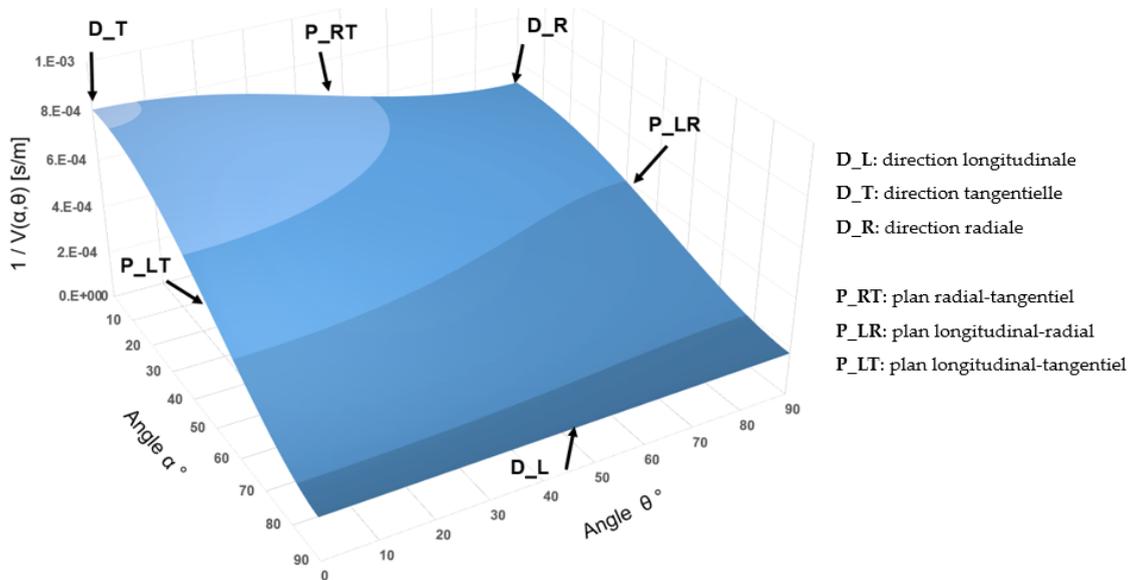


FIGURE 3. Surface de lenteur en 3D des vitesses modèles

III. DIVERSES APPLICATIONS DU MODELE DEVELOPPE

A. Détermination des constantes d'élasticité du matériau bois

Pour déterminer les propriétés d'élasticité du matériau bois, les mesures utilisant des ultrasons sont souvent effectuées à la fois, avec des ondes de compression et de cisaillement. Ces mesures emploient plusieurs géométries et des conditions de mesures pas toujours compatibles avec une utilisation structure (Bucur and Rasolofosaon, 1998; Gonçalves et al., 2014). Dans notre étude, nous avons opté pour une mesure employant uniquement des ondes de compression sur des géométries parallélépipédiques se rapprochant de conditions réelles pour des inspections structurelles. Afin de déterminer les propriétés élastiques, la méthodologie proposée nécessite une projection de l'expression (1) sur les principaux plans d'orthotropie.

Considérons une propagation d'onde de compression le long d'une direction \vec{x}' dans un plan \mathcal{xy} . Soit β correspondant à l'angle entre le chemin de propagation et la direction \vec{x} du plan \mathcal{xy} . La vitesse de propagation analytique V_{ana}^{xy} de cette onde est donnée par l'équation de

Christoffel (Royer et al., 1996). Cette vitesse dépend de l'angle β , de la masse volumique ρ et de la rigidité apparente $C_{x'x'}$ telle que :

$$V_{ana}^{xy}(\beta) = \sqrt{\frac{C_{x'x'}}{\rho}} \quad (3)$$

Avec :

$$C_{x'x'} = \frac{E_{x'} \cdot E_{y'} \cdot (E_{z'} - E_{y'} \cdot \nu_{zy'}^2)}{E_{y'} \cdot E_{z'} - E_{x'} \cdot E_{z'} \cdot \nu_{y'z'}^2 - E_{x'} \cdot E_{y'} \cdot \nu_{z'x'}^2 - E_{y'}^2 \cdot \nu_{z'y'}^2 - 2 \cdot E_{x'} \cdot E_{y'} \cdot \nu_{y'x'} \cdot \nu_{z'y'} \cdot \nu_{z'x'}}$$

D'un autre côté, selon l'équation d'Hankinson, l'expression phénoménologique de la vitesse de propagation de cette onde ultrasonore prend la forme suivante :

$$V_{Hank}^{xy}(\beta) = \frac{V_x \cdot V_y}{V_x \cdot (\sin \beta)^{n_{xy}} + V_y \cdot (\cos \beta)^{n_{xy}}} \quad (4)$$

Le plan xy correspond à la fois à chaque plan d'orthotropie LR, LT et RT. Par permutation, l'angle β balaye les valeurs des angles (α, θ) correspondant à chaque plan, [Tableau 1](#).

Par la suite, la méthodologie repose sur une optimisation qui consiste à déterminer les propriétés élastiques du matériau de manière à minimiser l'écart relatif entre les vitesses analytiques $V_{ana}^{xy}(\alpha, \theta)$ données par l'expression (3) et les vitesses empiriques $V_{Hank}^{xy}(\alpha, \theta)$ issues des formulations de Hankinson (expression 4), et ce, pour chaque plan d'orthotropie LR, LT et RT. Nous obtenons pour un écart relatif moyen de 0,23% entre les deux vitesses, les propriétés d'élasticité regroupées dans le [Tableau 3](#).

TABLEAU 3. Propriétés d'élasticités du Douglas (Afoutou et al., 2024)

Modules d'élasticité (GPa)			Modules de cisaillement (GPa)		
E_L	E_R	E_T	G_{LR}	G_{LT}	G_{RT}
13,1	1,57	0,62	1,45	0,737	0,419
Coefficients de Poisson					
ν_{RL}	ν_{TR}	ν_{TL}	ν_{LR}	ν_{RT}	ν_{LT}
0,04	0,41	0,03	0,484	0,279	0,697

Les coefficients de Poisson satisfont à l'exigence de la positivité de l'énergie de déformation. Les valeurs des constantes élastiques obtenues sont conformes à celles de la littérature.

B. Localisation 3D orthotrope

L'instrumentation d'un élément de structure par la technique d'émission acoustique permet de suivre l'évolution de l'endommagement en fonction des sollicitations appliquées. Elle permet également d'identifier les mécanismes de rupture et de remonter aux sources d'endommagement et de fissuration. Cette section traite du dernier point qu'est la localisation des sources acoustiques. L'objectif étant de mettre en place une procédure de localisation tridimensionnelle dans un milieu orthotrope, nous avons opté pour des émissions acoustiques virtuelles dans le sens où les vitesses de propagation sont générées numériquement afin d'éliminer toutes perturbations pouvant altérer la qualité des signaux réceptionnés. Par contre, lors de l'exploitation de la procédure, les temps virtuels seront considérés comme des temps expérimentaux qui seraient captés par la chaîne d'acquisition. La procédure de localisation consiste à minimiser une fonction au sens des moindres carrés entre les distances (ou temps) calculées et les distances (ou temps) mesurées d'un point d'émission dont la localisation est à déterminer.

Que la localisation acoustique soit unie, bi ou tri- dimensionnelles dans un milieu isotrope ou orthotrope ; elle est influencée par la capacité d'atténuation du milieu, le maillage des récepteurs acoustiques, le type d'algorithme d'optimisation etc. Dans cet article, il est étudié l'influence du maillage des récepteurs acoustiques (Fig. 4) et l'effet du type d'algorithme d'optimisation. Les paramètres d'Hankinson 3D sont préalablement connus, Tableau 2. Ce qui permet de connaître la vitesse effective de propagation de l'onde.

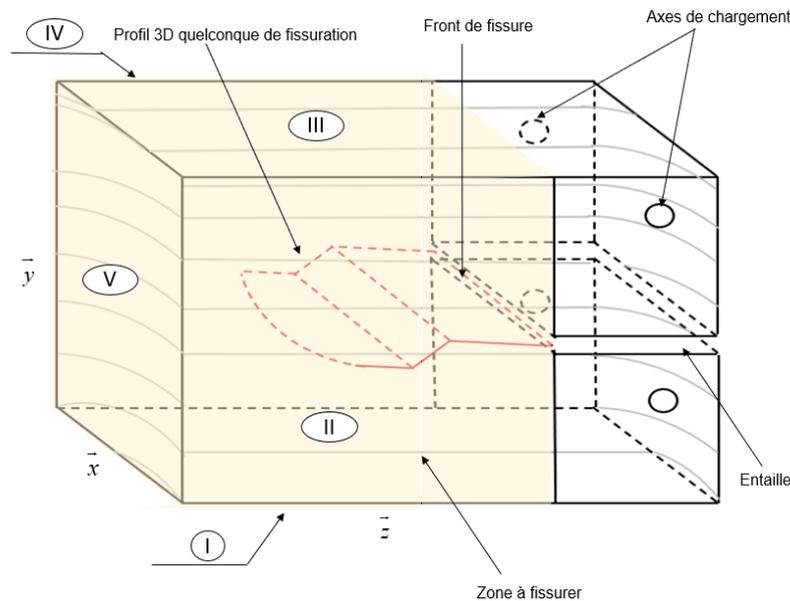


FIGURE 4. Epreuve DCB avec un profil de fissure quelconque

Selon la Figure 4, les récepteurs acoustiques sont disposés simultanément soit sur :

- les faces (I & III), correspondant à une disposition sur champ de l'éprouvette
- les faces (IV & II), correspondant à une disposition sur les faces latérales (vue de face et vue arrière) de l'éprouvette.

- les faces (IV & II & V), ajoutant à la précédente disposition, des récepteurs sur la face V (vue de gauche) de l'éprouvette.

En raison de la complexité de la localisation des sources acoustiques dans le bois avec sa structure orthotrope cylindrique, il a été fait l'hypothèse d'une orthotropie cartésienne, ce qui nous rapproche plus d'un matériau industriel (exemple d'un composite) que d'un matériau naturel. Trois algorithmes d'optimisation ont été utilisés : l'algorithme de Nelder et Mead, l'algorithme de Powell modifié et l'algorithme d'évolution différentielle.

Pour un même maillage des récepteurs, il ressort que l'algorithme d'évolution différentielle présente les meilleurs résultats de localisation grâce au bornage de l'espace et à la multiplication des vecteurs de départ. Les résultats s'améliorent pour les autres types d'algorithmes au fur et à mesure que l'on augmente le nombre de récepteurs.

Les sources d'émissions acoustiques, (suivant leur emplacement et leur coalescence) sont supposées décrire le front de fissure dans le matériau. Toutefois, une autre approche pour appréhender ce front de fissure consiste à utiliser la mécanique de la rupture 3D.

IV. MECANIQUE DE LA RUPTURE DANS UN MILIEU 3D ORTHOTROPE

Le processus de fissuration est piloté par le taux de restitution d'énergie (G). Cette énergie est fonction du type de sollicitation et donc du mode de rupture. On distingue les modes de ruptures élémentaires ci-après : le mode d'ouverture (mode I), le mode de cisaillement plan (mode II) et le mode de cisaillement hors plan (mode III). A chaque mode élémentaire correspond une valeur de G_{crit} (seuil énergétique d'amorçage de propagation de la fissure).

Dans le cas réel, les sollicitations dans les structures bois sont rarement simples. Pour mieux appréhender le comportement à la fissuration, il est utile de procéder à des découplages de modes de rupture afin de quantifier la part de chaque mode élémentaire dans le processus de fissuration. Cela est d'autant justifié au regard de l'anisotropie du matériau bois. Nous avons procédé au découplage de modes de rupture en utilisant l'intégrale M_{θ}^{3D} (Eq. 5) de la Mécanique Linéaire Elastique de la Rupture.

$$M_{\theta}^{3D} = \frac{1}{2} \int_V (\sigma_{ij}^u v_{i,j} - \sigma_{ij}^v u_i) \cdot \theta_{1,j} dV \quad (5)$$

(u) et (v) représentent des champs de déplacements réels et virtuels cinématiquement admissibles. Dans le même esprit, σ_{ij}^u et σ_{ij}^v sont, respectivement, les composantes des champs de contrainte réel et virtuel. dV est le domaine d'intégration.

L'emploi de l'intégrale M_{θ}^{3D} a nécessité de reconstruire un champ mécanique local tridimensionnel par une adaptation (ajout de l'orthotropie) du champ mécanique local isotrope proposé par Irwin (1957). Ce choix a été fait du fait de l'absence d'une expression acceptée dans la littérature. Cette absence de forme 3D du champ de déplacements et de contraintes au voisinage du front de fissure est valable également pour les matériaux isotropes (Zakavi et al., 2022).

La stratégie de découplage est implémentée dans le code aux éléments finis Castem avec la modélisation géométrique d'une éprouvette MMCG (Mixed Mode Crack Growth). Différentes épaisseurs sont explorées afin de mettre en exergue les effets tridimensionnels. Les chargements appliqués permettent d'avoir soit des modes de rupture élémentaires ou des modes de ruptures mixtes (combinaison des modes élémentaires).

Les modélisations en mode III ont permis de mettre en exergue l'effet du mode II aux abords des surfaces libres. Ceci révèle qu'une sollicitation en mode III présente toujours une cinétique de fissuration combinant, à minima, du mode II et parfois du mode I. La Figure 5 montre la distribution de chaque taux de restitution d'énergie dans l'épaisseur pour les épaisseurs de 10mm et 60mm. La part du mode III (GIII) est plus importante au cœur de l'éprouvette si l'épaisseur est petite. Le plateau observé pour GIII en Fig. 5-b peut s'expliquer par l'augmentation de l'épaisseur.

En fonction du degré de mixité du chargement, la part du mode III n'a pas la même distribution le long du front de fissure. De plus, l'induction des autres modes élémentaires (I et II) et donc les parts des taux de restitution d'énergie (GI et GII) dépendent de la mixité du chargement. En mode mixte I+II (par exemple), les résultats montrent que le taux de restitution d'énergie GI est maximal au cœur de l'éprouvette et minimal aux abords des surfaces libres, et ce, quel que soit le taux de mixité pour une épaisseur donnée.

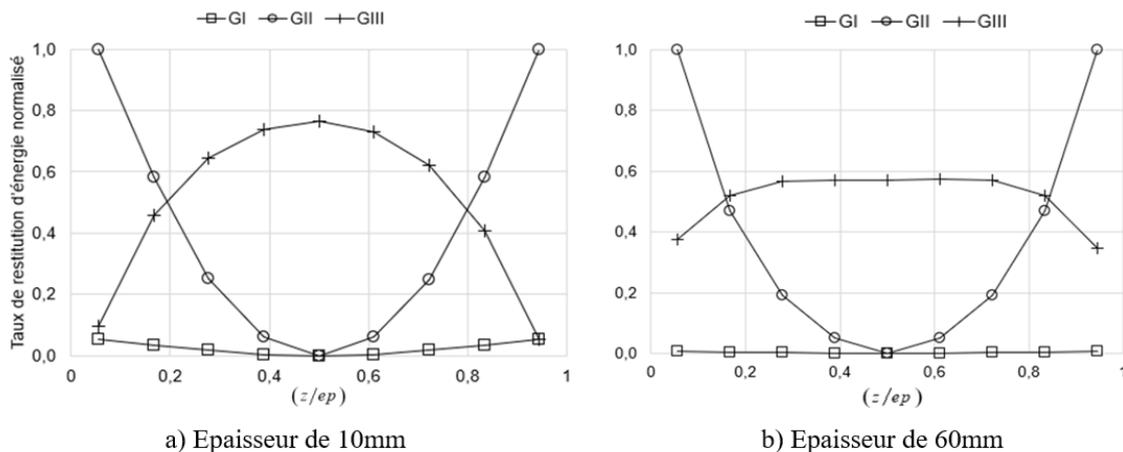


FIGURE 5. GI, GII et GIII le long du front de fissure en mode III en fonctions des épaisseurs

V. CONCLUSION

Ce travail présente une évaluation non destructive des propriétés mécaniques des éléments de structure d'une part, et d'autre part, une estimation du risque de propagation instable des fissures avec un intérêt particulier à l'évolution du front de fissure dans l'épaisseur de l'élément considéré. Une vision tridimensionnelle a nécessité, à chaque étape, des développements spécifiques pour tenir compte du caractère orthotrope du matériau. Selon les conditions ambiantes, la présence d'un gradient hydrique dans l'épaisseur peut perturber les cinétiques de fissuration ainsi que la distribution de chaque mode de rupture. La prise en compte du gradient d'humidité demeure une perspective de ce travail.

VI. REMERCIEMENTS

Les travaux présentés dans cet article ont été financés par la Région Nouvelle Aquitaine et le Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche.

VII. REFERENCES

AFNOR. (2005). Essais pour béton dans les structures – Partie 4 : détermination de la vitesse de propagation des ultrasons. Norme française NF EN 12504-4.

Afoutou, J. S., Zhang, X., Dubois, F. (2024). Full elastic properties characterization of wood by ultrasound using a single sample. *Wood Sci Technol* 58(1), 403-422. doi: 10.1007/s00226-023-01525-y

Afoutou, J. S., Dubois, F., Sauvat, N., Takarli, M. (2023). A novel three-dimensional model for the prediction of ultrasonic velocity in wood considering its orthotropy. *Wood Sci Technol* 57(3), 605–623. doi: 10.1007/s00226-023-01470-w

Arciniegas, A., Brancheriau, L., Lasaygues, P. (2015). Tomography in standing trees : revisiting the determination of acoustic wave velocity. *Annals of Forest Science* 72, 685–691. doi: 10.1007/s13595-014-0416-y

Beall, F. C. (2002). Overview of the Use of Ultrasonic Technologies in Research on Wood Properties. *Wood Sci and Technol* 36 (3), 197-212.

Bucur, V. (1988). Wood Structural Anisotropy Estimated by Acoustic Invariants. *IAWA Journal* 9, 67–74. doi: 10.1163/22941932-90000471

Bucur V, Rasolofosaon P. (1998). Dynamic elastic anisotropy and nonlinearity in wood and rock. *Ultrasonics* 36(7), 813–824. doi: 10.1016/S0041-624X(98)00004-3

Forest Products Laboratory. (2010). Wood handbook : wood as an engineering material. Department of Agriculture Forest Service, Madison, Wisconsin, USA.

Hankinson, R. L. (1921). Investigation of crushing strength of spruce at varying angles of grain. *Air service information circular* 259 (3), 130.

Irwin G.R. (1957). Analysis of Stresses and Strains Near the End of a Crack Traversing a Plate. *J Appl Mech* 24(3), 361–364. doi: 10.1115/1.4011547

Gonçalves R, Trinca AJ, Pellis B. P. (2014). Elastic constants of wood determined by ultrasound using three geometries of specimens. *Wood Sci Technol* 48(2), 269–287. doi: 10.1007/s00226-013-0598-8

Royer D., Dieulesaint E., De Gennes P.G. (1996), *Ondes élastiques dans les solides - Tome 1 : Propagation libre et guidée*, Masson Edition.

Zakavi B, Kotousov A, Branco R. (2022). Overview of three-dimensional linear-elastic fracture mechanics. *Int J Fract* 234, 5-20. doi: 10.1007/s10704-021-00528-9

Effet de la biocalcification par MICP sur les propriétés mécaniques des argiles

Olivier Maston¹

¹ Université Le Havre Normandie, Laboratoire Ondes et Milieux Complexes, UMR 6294 CNRS, Le Havre, France.

RESUME : L'intérêt croissant pour l'utilisation de la terre crue en tant que matériau de construction durable a incité les chercheurs à explorer des moyens d'améliorer sa viabilité dans l'industrie de la construction. Une approche innovante qui a captivé l'attention au cours de la dernière décennie est l'utilisation de la précipitation de calcite induite par les microbes (MICP) pour renforcer et stabiliser principalement les sols inertes. Cette étude vise à appliquer préventivement le MICP par la méthode du "Soil-Mixing" dans une argile chargée, nommée "Kaolin P300". Tous les échantillons ont été soumis à une batterie de tests destructifs pour évaluer l'amélioration des propriétés mécaniques de l'argile, passant d'une préparation de l'état liquide à l'état solide. Les résultats ont démontré une amélioration de la résistance du Kaolin P300 grâce au traitement MICP. La corrélation des résultats a souligné une cohésion renforcée par le MICP, particulièrement à la limite plastique des échantillons. La précipitation de CaCO_3 a été confirmée et quantifiée à l'aide d'un calcimètre. De plus, l'analyse microscopique par spectroscopie infrarouge à réflectance totale atténuée et la diffraction des rayons X ont confirmé la présence de CaCO_3 sous forme de calcite, tout en mettant en évidence la présence résiduelle d'urée et d'acétate de calcium.

Mots-clefs : Sols argileux, MICP, Propriétés mécaniques, Microscopie.

I. INTRODUCTION

Le secteur du bâtiment résidentiel et tertiaire génère une quantité significative de CO_2 . Afin de répondre aux défis environnementaux de notre époque, il est impératif de s'orienter vers l'utilisation de matériaux écologiques renouvelables, moins énergivores et moins polluants. Les éco-matériaux à base de terre crue présentent des perspectives encourageantes. Cependant, pour être mondialement reconnus en tant que matériaux de construction écologiques, ils doivent satisfaire à des critères rigoureux.

L'une des principales raisons pour lesquelles la terre crue ne peut être largement adoptée dans les régions à climats tempérés réside dans le phénomène de fissuration par dessiccation de sa fraction argileuse. Les fluctuations de la teneur en eau de l'argile entraînent un cycle de retrait/gonflement, générant des contraintes internes pendant le séchage et provoquant l'apparition de fissures. Plusieurs projets de recherche sont menés pour comprendre et surmonter ces mécanismes de fissuration. L'amendement de l'argile avec des renforts en fibres végétales apparaît comme une solution potentielle (El Hajjar et al., 2021). Cependant, la réduction de la fissuration reste insuffisante.

La précipitation de carbonate de calcium par l'activité microbienne (MICP) a émergé, ces dernières années, comme une solution potentielle et écologique pour l'amélioration des sols. Elle repose sur l'activité enzymatique bactérienne capable d'hydrolyser l'urée pour produire des ions carbonate, qui, en présence d'ions calcium, précipitent du CaCO_3 . La recherche s'intéresse de plus en plus à l'utilisation du MICP pour améliorer les propriétés mécaniques des sols en cimentant la matrice solide tout en préservant la perméabilité (Whiffin et al., 2007).

Actuellement, les travaux sur le MICP se concentrent principalement sur les sables inertes. Cette étude cherche à élargir ces connaissances en appliquant le MICP dans des sols argileux chargés et non inertes. Elle adopte une approche novatrice en utilisant de l'acétate de calcium, moins fréquemment utilisé dans les argiles et émettant moins d'ammoniac que le chlorure de calcium, plus couramment utilisé (Xiang et al., 2022). Pour ce faire, des échantillons d'argile sont confectionnés avec un traitement MICP pour les renforcer mécaniquement. Le processus débute expérimentalement par la préparation des échantillons par soil-mixing, qui consiste à mélanger une poudre d'argile avec une solution bactérienne et cimentaire contenant respectivement des bactéries *Sporosarcina Pasteurii*, et une solution équimolaire d'acétate de calcium et d'urée. Les échantillons sont soumis à des essais mécaniques trois jours après leur préparation pour évaluer l'augmentation de la résistance de l'argile grâce au traitement MICP. Les analyses par diffraction des rayons X (DRX) et spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (FTIR) confirment la présence de cristaux de CaCO_3 , quantifiée par le calcimètre de Dietrich-Frühling. L'utilisation de l'acétate de calcium pour le MICP dans les argiles semble prometteuse.

II. MATERIAUX ET METHODES

A. Préparation des échantillons

Tous les échantillons étudiés se composent d'une matrice solide à base d'une argile peu plastique nommée « Kaolin P300 », utilisée dans les travaux de (El Hajjar et al., 2022). Dans la suite de cette étude, les échantillons composés par cette argile seront appelés « K100 ». Selon l'ASTM D4318-17e1, les limites d'Atterberg ainsi que quelques autres caractéristiques de K100 sont résumées dans le tableau 1.

TABLEAU 1. Caractéristiques du Kaolin P300

Limite de liquidité W_L (%)	Limite de plasticité W_P (%)	Indice de plasticité I_P (%)	Granulométrie (% < 2 μm)	Densité solide G_s (g/cm ³)
40	20	20	60	2,65

La préparation des échantillons avec le traitement MICP passe par quatre étapes successives et s'articule autour du procédé de soil-mixing. En premier lieu, de l'urée et de l'acétate de calcium sont dissous à équimolarité dans de l'eau pour obtenir une solution de "cimentation". Simultanément, des bactéries uréolytiques, les *Sporosarcina Pasteurii*, sont mélangées avec de l'eau pour créer une solution "bactérienne". Dans un second temps, le mélange de ces deux solutions conduit à une solution "MICP". Après ces deux étapes, la solution MICP est versée sur une poudre de Kaolin P300 préalablement séchée dans un four à 105°C. Cette préparation est activement malaxée jusqu'à obtenir une pâte homogène. Les mélanges issus d'une faible teneur en

eau sont tamisés après le malaxage jusqu'à une ouverture de maille de 1 mm. Enfin, les préparations à l'état liquide et plastique sont placées dans des pots cylindriques hermétiques de 50 mm de diamètre et 70 mm de hauteur, pour être soumises à un cisaillement à l'aide d'un scissomètre de laboratoire. Les préparations à l'état solide sont mises dans un moule cylindrique à double piston et compactées avec une presse statique. Les échantillons résultants, de 50 mm de diamètre et 100 mm de hauteur, sont soumis à un essai de compression uniaxiale. La figure 1 illustre la préparation de ces spécimens.

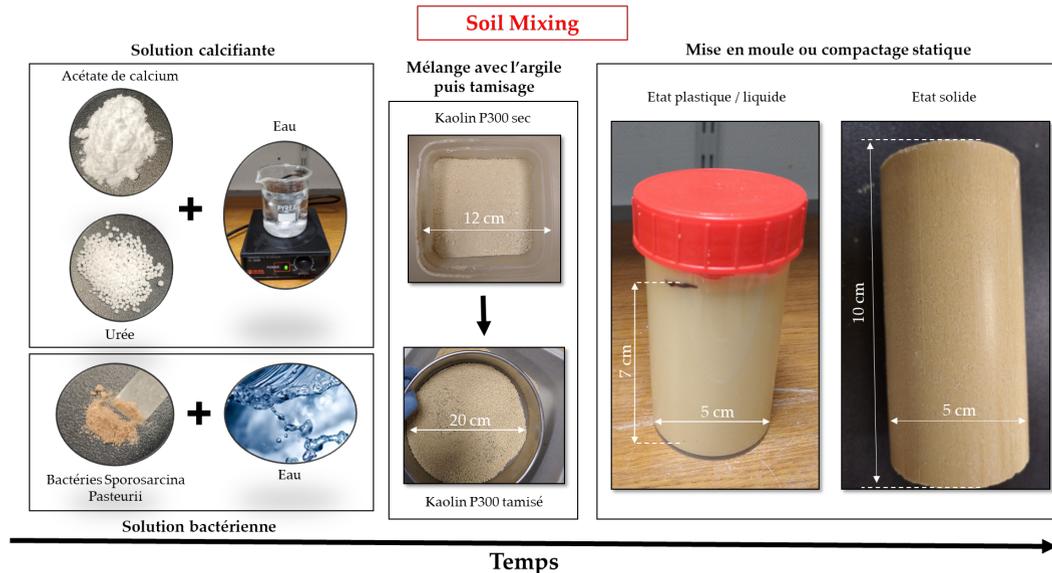


FIGURE 1. Préparation des échantillons de K100 par méthode de soil-mixing

Tous les échantillons sont préparés dans une salle thermostatique maintenue à une température constante de 20°C, avec une variation ne dépassant pas $\pm 0,2^\circ\text{C}$. Ils sont confectionnés à une densité sèche de 15 kN/m³ ou à la saturation ($S_r = 100\%$) pour les plus liquides, puis scellés pour empêcher leur séchage pendant 72 heures, garantissant ainsi la précipitation du carbonate de calcium et l'homogénéité de la teneur en eau. Dans le but d'évaluer l'accroissement de résistance conféré par la biocalcification, les échantillons traités par MICP sont comparés à des échantillons de référence non traités, dans les mêmes conditions initiales. Les éprouvettes sont systématiquement préparées par lots de trois pour vérifier leur reproductibilité.

B. Essais

Les essais au scissomètre de laboratoire permettent, conformément à la norme ASTM D4648/D4648M-16, de mesurer la cohésion non drainée des argiles molles, suivant l'équation 1 :

$$C_u = \frac{6 M}{\pi D^2 (3H + D)} \quad (1)$$

C_u est la cohésion non drainée (kPa), M le couple de forces (kN.m). D et H correspondent respectivement au diamètre et à la hauteur de la pale (m).

Les essais de compression uniaxiale sont, conformément à la norme ASTM D2166/D2166M-16, réalisés sur des éprouvettes solides à faible teneur en eau. La compression est réalisée à une vitesse de déformation constante de 0,1 mm/min, suffisamment rapide pour maintenir des conditions non drainées.

La combinaison de ces deux essais mécaniques permet d'explorer une large gamme de teneurs en eau. L'essai UCS a été utilisé pour un état solide avec des indices de liquidité (I_L) inférieurs à 0, tandis que l'essai au scissomètre de laboratoire a été utilisé pour des états liquide et plastique ($0,4 < I_L < 2,0$). L'indice de liquidité I_L est défini par l'équation 2 :

$$I_L = \frac{W - W_P}{I_P} \quad (2)$$

I_L représente l'indice de liquidité, I_P l'indice de plasticité, W_P la limite de plasticité, et W la teneur en eau de l'échantillon.

La mesure de la teneur en carbonate de calcium est effectuée sur les sols après les essais mécaniques destructifs. Trois échantillons ont été prélevés en haut, au milieu et en bas de chaque échantillon pour définir la teneur globale. La teneur en CaCO_3 précipitée (CCC_P) des échantillons est mesurée à l'aide du test du calcimètre de Dietrich-Frühling selon la norme NF P94-048. Trois mesures répétées sont effectuées pour chaque échantillon.

Pour l'analyse microscopique, la sélection des échantillons a été réalisée de la même manière que ceux destinés au calcimètre. Les techniques analytiques par DRX et FTIR ont été utilisées pour caractériser la minéralogie des échantillons traités et non traités. La structure cristalline a été déterminée par DRX sur des échantillons de poudre sèche à l'aide du diffractomètre Xpert-Pro Powder, avec des données enregistrées par pas de $0,013^\circ$ entre 5° et 80° d'un angle de 2θ . L'analyse FTIR a été réalisée sur des pâtes humides à l'aide d'un spectrophotomètre FTIR Spirit de Shimadzu équipé d'un accessoire de mesure à réflexion totale atténuée (ATR). Cette configuration a permis d'identifier clairement les composants chimiques de chaque échantillon dans une gamme de longueurs d'onde allant de $4\,000$ à 400 cm^{-1} .

III. RESULTATS ET DISCUSSIONS

Comme détaillé dans la section précédente, la résistance mécanique de K100 est étudiée par essai de cisaillement au scissomètre de laboratoire et essai de compression uniaxiale, puis corrélée. Après le cisaillement, le calcimètre est utilisé pour mesurer la teneur en carbonate de calcium du matériau. Enfin, les propriétés cristallines et chimiques du matériau sont analysées à l'aide des méthodes ATR-FTIR et DRX.

A. Scissomètre de laboratoire

La figure 2 présente la cohésion non drainée en fonction de l'indice de liquidité des échantillons K100 non traités et traités par MICP.

La diminution de l'indice de liquidité dans un état saturé implique une augmentation de la densité sèche. Par conséquent, l'espacement entre les particules de sol est réduit, ce qui explique l'accroissement de la cohésion non drainée. De plus, les échantillons de K100 avec MICP présentent un gain de C_u conséquent vis-à-vis de leurs homologues sans MICP. La différence de C_u entre les échantillons d'argile traités et non traités augmente à mesure que l'indice de liquidité diminue.

Le C_u s'est accru de manière significative dans la plage plastique du matériau traité (entre 0,4 et 1 I_L). La valeur la plus élevée de C_u est de 66 kPa et a été obtenue pour les échantillons K100 avec MICP pour un indice de liquidité de 0,4. Cette valeur C_u représente 650% de la cohésion non drainée de K100 sans MICP.

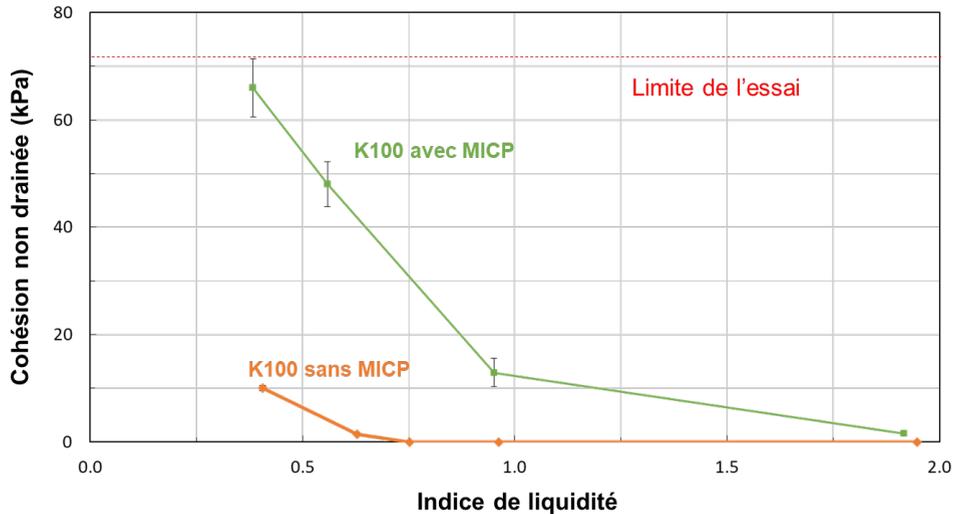


FIGURE 2. Evolution de la cohésion non drainée de K100 en fonction de son indice de liquidité

Suite à la mise en évidence du gain de résistance prodigué par le traitement MICP dans des pâtes de K100, la prochaine section s'intéresse au traitement MICP d'échantillon K100 à l'état solide et plus sec.

B. Compression uniaxiale

Pour des indices de liquidité plus faible, l'essai de compression uniaxiale est envisagé. Il permet de déterminer la valeur de la résistance ultime à la compression (valeur UCS) et le module de déformation E_{50} . La valeur UCS représente le sommet de la courbe contrainte - déformation, qui est deux fois supérieure à la valeur de C_u en conditions UU (non Consolidées et non Drainées). Le module E_{50} présente la rigidité des sols argileux dans la plage de déformation plastique et est défini comme le rapport de la moitié de la valeur UCS sur la déformation correspondante. Sur la base de la contrainte maximale et du module de déformation de chaque spécimen, la figure 3 présente les résultats obtenus.

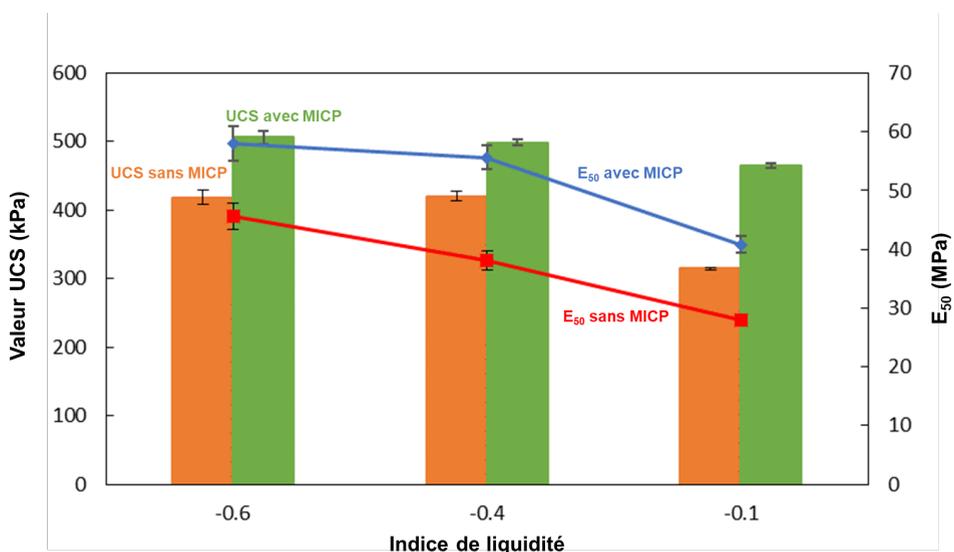


FIGURE 3. Valeurs UCS et E_{50} des échantillons traités et non traités par MICP

Elle révèle une augmentation de la résistance des échantillons K100 lorsque l'indice de liquidité diminue et/ou lorsqu'ils sont traités par MICP. Durant la diminution de l'indice de liquidité dans un milieu à densité sèche fixe, le volume des vides reste constant, mais la succion augmente. Par conséquent, la résistance mécanique s'accroît. De même, le traitement par MICP augmente la valeur UCS. Les échantillons avec et sans traitement MICP présentent notamment la plus grande différence de valeur UCS de l'ordre de 150 kPa. Contrairement aux résultats des essais au scissomètre de laboratoire, la résistance la plus élevée fournie par le MICP lors des essais de compression uniaxiale correspond à l'échantillon avec l'indice de liquidité le plus élevé. Comme pour le comportement de la valeur UCS, le module E_{50} augmente à mesure que l'indice de liquidité diminue et/ou lorsqu'il est traité par MICP. Cela indique d'une part que la désaturation du matériau le rigidifie. D'autre part, l'amélioration de la valeur E_{50} par le traitement MICP laisse à supposer que le carbonate de calcium joue le rôle de liant entre les particules de sol. Plus précisément, la valeur E_{50} pour K100 avec MICP à -0,1 IL atteint 40,8 MPa, soit près de 46% de plus que la valeur E_{50} de K100 sans MICP à -0,1 IL.

C. Corrélation des résultats mécaniques

Afin d'établir une corrélation entre les résultats de cisaillement au scissomètre de laboratoire et la compression uniaxiale, et de mettre en évidence la cohésion apportée par le traitement MICP, un nouveau paramètre appelé " C_{MICP} " a été déterminé. Le C_{MICP} est défini par l'équation 3 et se présente comme la différence entre la cohésion totale d'un échantillon traité ($C_{avec\ MICP}$) et la cohésion totale d'un échantillon non traité ($C_{sans\ MICP}$). Il quantifie spécifiquement l'amélioration de la cohésion due au MICP.

$$C_{MICP} = C_{avec\ MICP} - C_{sans\ MICP} \quad (3)$$

En se basant sur les cercles de Mohr et le critère de rupture de Mohr-Coulomb dans des conditions non confinées et non drainées (UU), la cohésion totale (C_{totale}) de chaque échantillon soumis à des essais en compression uniaxiale a été définie. Elle correspond à la contrainte de cisaillement maximale (τ) car l'angle de frottement est considéré comme nul en raison des conditions non drainées. Or, τ correspond à la moitié de la valeur UCS, d'où :

$$C_{totale} = \frac{UCS}{2} \quad (4)$$

La figure 4 expose les valeurs C_{MICP} de tous les échantillons K100 traités et issus des deux essais mécaniques.

Ce graphique met en évidence trois comportements distincts en fonction de l'état de l'échantillon. Lorsque l'indice de liquidité diminue, l'état liquide présente d'abord une légère augmentation du C_{MICP} , suivie d'une augmentation significative dans son état plastique et enfin, d'une diminution dans son état solide. Ce comportement peut s'expliquer par plusieurs facteurs :

- Dans l'état liquide, la distance interparticulaire est plus grande que dans les autres états. Par conséquent, l'effet de la cimentation du carbonate de calcium dans le sol est moins efficace. Il en résulte une légère augmentation du C_{MICP} .
- Dans l'état plastique, la diminution du degré de saturation a lieu dans une plage d'indice de liquidité de 0,6 à -0,1. Cette réduction favorise la formation de ménisques d'eau entre les particules d'argile, facilitant la cimentation du sol par précipitation de la calcite et améliorant considérablement le C_{MICP} .
- Comme la teneur en eau de préparation est moins élevée à l'état solide, le taux de $CaCO_3$ devient moins important, ce qui entraîne une diminution du C_{MICP} .

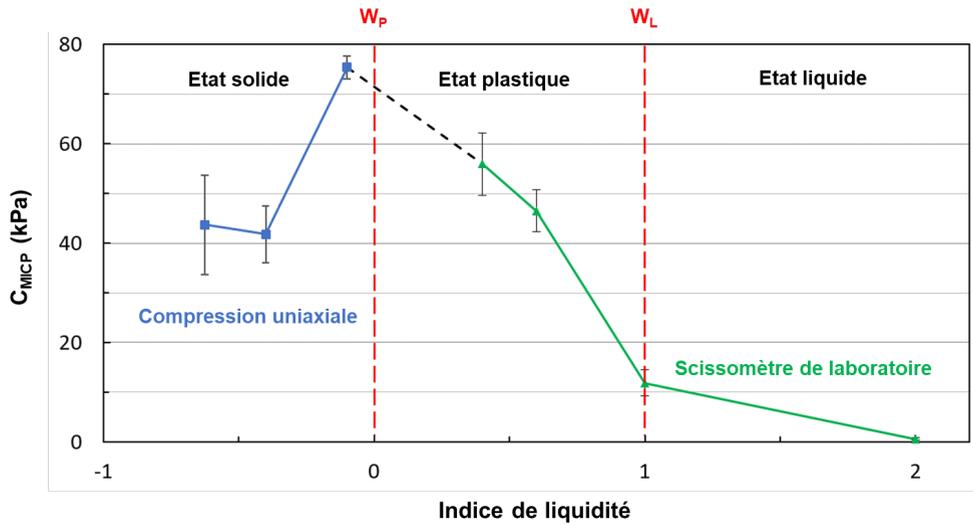


FIGURE 4. Evolution de C_{MICP} de K100 avec MICP en fonction de son indice de liquidité

La section suivante expose les taux de carbonate de calcium précipité (CCC_P) de chaque échantillon.

D. Taux de carbonate de calcium précipité

La figure 5 présente l'évolution du taux de carbonate de calcium précipité dans K100 avec MICP en fonction de son indice de liquidité.

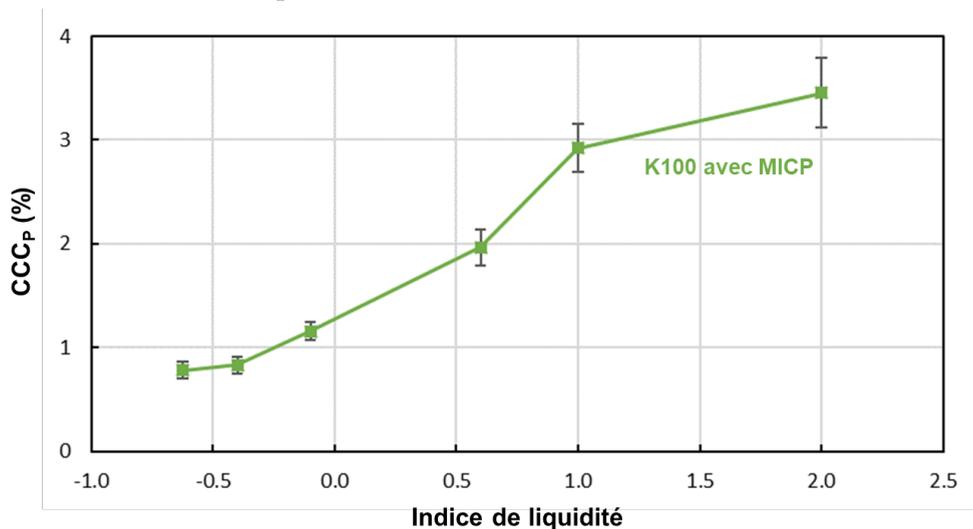


FIGURE 5. Evolution du CCC_P de K100 traité par MICP en fonction de son indice de liquidité

Elle montre la diminution du CCC_P durant la réduction de l'indice de liquidité. En effet, pour une même concentration nutritive et un même taux de réaction, la quantité de $CaCO_3$ précipitée sera plus importante pour un échantillon préparé avec plus d'eau. De plus, cette réduction du CCC_P pourrait expliquer la baisse de C_{MICP} observée dans l'état solide de K100. Fondamentalement, C_{MICP} dépend du CCC_P et à la disposition des cristaux de calcite dans la matrice solide, ce qui affecte finalement la cimentation et/ou la densification du sol.

E. Analyse microscopique

L'analyse des composants microscopiques par DRX et FTIR est essentielle pour mettre en évidence la précipitation du carbonate de calcium et les réactions chimiques au sein des échantillons d'argile traités par MICP. La figure 6. a) superpose les spectres ATR-FTIR de K100 avec et sans MICP à 1 l. Les deux pâtes humides de K100 présentent de nombreux pics propres aux liaisons chimiques retrouvées dans la kaolinite, notamment dans la zone de l'empreinte digitale entre 1500 et 400 cm^{-1} (Saikia et al., 2003). L'état humide de K100 implique l'existence de liaisons caractéristiques de l'eau avec des vibrations d'étirement O-H (bande d'absorption large et intense entre 3200 et 3400 cm^{-1}) et un cisaillement de flexion H-O-H caractérisé par un pic intense à une fréquence proche de 1639 cm^{-1} (Mojet et al., 2010). La présence de CO_2 est représentée par des pics autour de 2348 cm^{-1} (Boffa et al., 2008). Elle pourrait être dû aux conditions de l'analyse ATR-FTIR qui s'effectue à l'air libre. Cette analyse de la pâte humide de K100 avec MICP confirme la présence de CaCO_3 (pics de longueur d'onde à 874 cm^{-1} et large bande à environ 1416 cm^{-1} correspondant aux vibrations en flexion hors du plan et en étirement asymétrique, respectivement), malgré la présence résiduelle d'acétate de calcium (vibrations symétriques de flexion CH_3 à 1347 cm^{-1} et vibrations asymétriques d'étirement C-O à 1553 cm^{-1}). Ces résultats sont en accord avec les observations de (Tiwari et al., 2021) réalisés sur des sols traités au MICP. Le processus de précipitation n'est pas totalement efficace, ce qui peut expliquer la présence des résidus de la solution nutritive (Šovljanski et al., 2021).

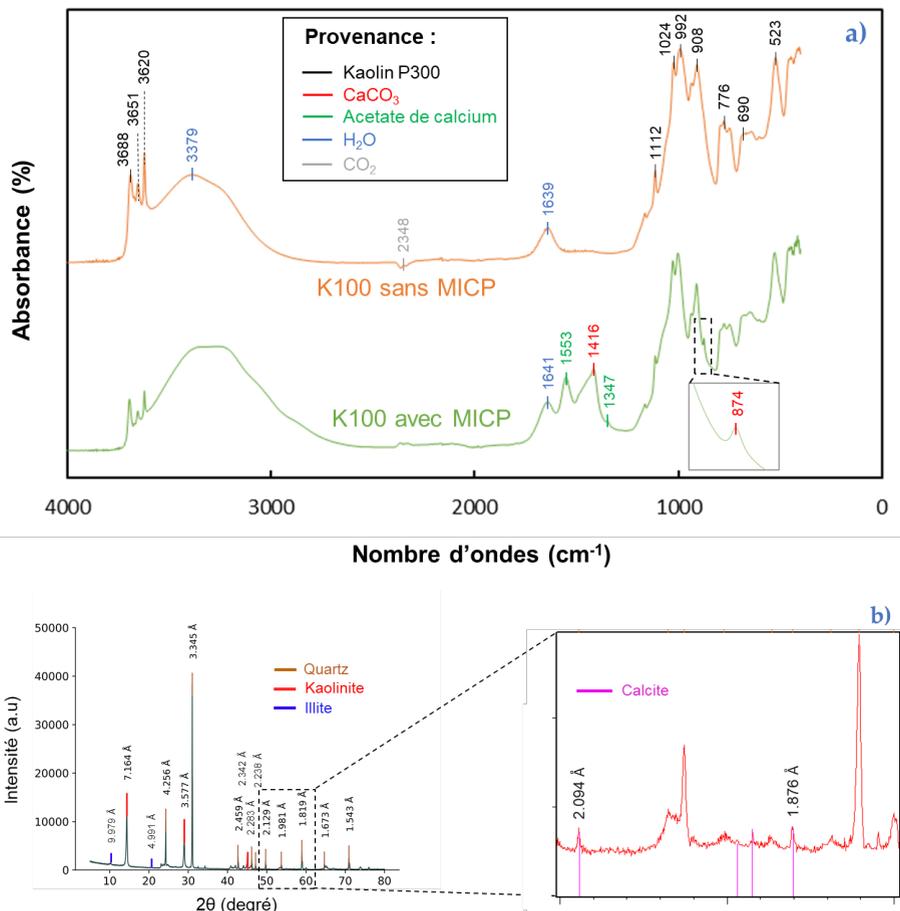


FIGURE 6. a) Spectre ATR-FTIR de pâtes humides de K100 ; **b)** Diffractogramme d'une poudre sèche de K100 avec MICP

Grâce à l'analyse par DRX, la figure 6. b) dresse le diffractogramme de K100 avec MICP, préalablement séché au four à 105°C. Elle met en évidence la composition de K100, constituée de kaolinite, de quartz et d'illite. La vue rapprochée sur la droite de cette figure permet d'attester de l'existence de carbonate de calcium et expose des distances interréticulaires propres à l'arrangement structural de la calcite. Tout comme la spectroscopie ATR-FTIR, l'analyse microscopique par DRX a confirmé la précipitation de CaCO_3 dans les échantillons traités. Elle a également spécifié sa forme cristalline observée, correspondant à la calcite.

L'incorporation d'acétate de calcium dans le procédé MICP a permis d'améliorer les propriétés mécaniques d'argiles telles que K100, contrairement aux résultats rapportés par (Gorospe et al., 2013) dans le contexte des milieux sableux. Enfin, l'analyse des composants microscopiques par ATR-FTIR s'avère être un moyen simple et rapide de vérifier la présence de CaCO_3 dans les échantillons d'argile secs ou humides. Elle constitue également une méthode d'identification efficace des liaisons chimiques dans les argiles sans les sécher au four, préservant ainsi toute modification de leur composante microscopique liée au séchage. Ces échantillons peuvent ensuite être analysés par des méthodes complémentaires plus longues et plus coûteuses, telles que la DRX ou le MEB. De plus, sa capacité à distinguer les liaisons atomiques lui permet de détecter les phases en présence, qu'elles soient cristallines ou amorphes. En complément, la DRX peut être utilisée pour identifier spécifiquement la structure cristalline. Une analyse plus poussée des diffractogrammes permettrait de déterminer la taille des cristaux de CaCO_3 .

IV. CONCLUSION

Ces travaux ont permis de souligner l'effectivité du MICP dans des argiles traitées par soil-mixing, en ayant recours à l'utilisation d'une source de calcium moins émettrice en ammoniac et beaucoup moins utilisée que le chlorure de calcium. Le couplage d'essais mécaniques destructifs, le scissomètre de laboratoire et la compression uniaxiale, ont permis d'étudier l'effet du traitement MICP sur le Kaolin P300 dans une large gamme de teneur en eau. Un nouveau paramètre mécanique appelé " C_{MICP} " a été défini pour quantifier explicitement la cohésion découlant uniquement de la biocalcification. Le C_{MICP} démontre le fonctionnement efficace de la biocalcification et son impact positif sur l'amélioration des propriétés mécaniques de l'argile, avec une résistance optimale observée à la limite de plasticité du kaolin P300.

Au-delà de l'amélioration de la résistance observée dans ces échantillons d'argile par le traitement MICP, la biocalcification a été confirmée grâce au calcimètre de Dietrich-Fruhling. Elle a montré l'augmentation du taux de carbonate de calcium précipité pour une teneur en eau plus importante. L'analyse microscopique par DRX révèle la précipitation de cristaux de calcite dans K100 traité avec MICP. La spectroscopie ATR-FTIR a été utilisée pour caractériser les groupes fonctionnels moléculaires dans les échantillons de K100 humides, tels que le CaCO_3 et l'acétate de calcium. Elle ne spécifie pas la présence d'autres réactions chimiques observables.

REMERCIEMENTS : La Région Normandie a financé ce travail dans le cadre du projet BIOFIS. Le financement de ces recherches est assuré par l'université du Havre Normandie. L'industrie Soletanche Bachy fournit les bactéries nécessaires à ces études.

REFERENCES

- Boffa, V., Ten Elshof, A., Petukhov, A., Blank, D., 2008. Microporous Niobia–Silica Membrane with Very Low CO₂ Permeability. *ChemSusChem* 1, 437–43.
<https://doi.org/10.1002/cssc.200700165>
- El Hajjar, A., Ouahbi, T., Hamrouni, I., Taibi, S., Eid, J., Hattab, M., 2022. Experimental characterization of desiccation cracking mechanisms in clayey soils. *European Journal of Environmental and Civil Engineering*. <https://doi.org/10.1080/19648189.2022.2136249>
- El Hajjar, A., Ouahbi, T., Taibi, S., Eid, J., Hattab, M., Fleureau, Jean-Marie, 2021. Assessing crack initiation and propagation in flax fiber reinforced clay subjected to desiccation. *Construction and Building Materials* 278.
<https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2021.122392>
- Gorospe, C.M., Han, S.-H., Kim, S.-G., Park, J.-Y., Kang, C.-H., Jeong, J.-H., So, J.-S., 2013. Effects of different calcium salts on calcium carbonate crystal formation by *Sporosarcina pasteurii* KCTC 3558. *Biotechnology and Bioprocess Engineering* 18, 903–908.
<https://doi.org/10.1007/s12257-013-0030-0>
- Mojet, B., Ebbesen, S., Lefferts, L., 2010. ChemInform Abstract: Light at the Interface: The Potential of Attenuated Total Reflection Infrared Spectroscopy for Understanding Heterogeneous Catalysis in Water. *Chemical Society reviews* 39, 4643–55.
<https://doi.org/10.1039/c0cs00014k>
- Saikia, Dr.N., Bharali, D., Sengupta, P., Bordoloi, D., Goswamee, R., Saikia, P., Borthakur, P., 2003. Characterization, beneficiation and utilization of a kaolinite clay from Assam, India. *Applied Clay Science - APPL CLAY SCI* 24, 93–103. [https://doi.org/10.1016/S0169-1317\(03\)00151-0](https://doi.org/10.1016/S0169-1317(03)00151-0)
- Šovljanski, O., Pezo, L., Stanojev, J., Bajac, B., Kovač, S., Tóth, E., Ristić, I., Tomić, A., Ranitović, A., Cvetković, D., Markov, S., 2021. Comprehensive Profiling of Microbiologically Induced CaCO₃ Precipitation by Ureolytic *Bacillus* Isolates from Alkaline Soils. *Microorganisms* 9, 1691. <https://doi.org/10.3390/microorganisms9081691>
- Tiwari, N., Satyam, N., Sharma, M., 2021. Micro-mechanical performance evaluation of expansive soil biotreated with indigenous bacteria using MICP method. *Sci Rep* 11, 10324.
<https://doi.org/10.1038/s41598-021-89687-2>
- Whiffin, V.S., van Paassen, L.A., Harkes, M.P., 2007. Microbial Carbonate Precipitation as a Soil Improvement Technique. *Geomicrobiology Journal* 24, 417–423.
<https://doi.org/10.1080/01490450701436505>
- Xiang, J., Qiu, J., Wang, Y., Gu, X., 2022. Calcium acetate as calcium source used to biocement for improving performance and reducing ammonia emission. *Journal of Cleaner Production* 348, 131286. <https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2022.131286>

Adsorption compétitive et non compétitive de six métaux sur des fibres de lin locales

Juliette Vievard

Normandie Univ, UNIHAVRE, UMR 6294 CNRS, LOMC, Le Havre, France

INSA Rouen Normandie, Univ Rouen Normandie, CNRS, Normandie Univ, COBRA UMR 6014, F-76000 Rouen, France

RESUME

Au cours des dernières décennies, les activités humaines ont engendré une importante pollution de l'environnement, par de nombreux polluants, tels que les métaux lourds. Pour tenter de diminuer cette pollution, la bio-adsorption (méthode eco-friendly utilisant un adsorbant biosourcé) est désormais très utilisée pour éliminer les polluants des eaux. Dans cette étude, des fibres de lin locales sont utilisées pour dépolluer des eaux de 6 métaux lourds (Cd(II), Cu(II), Hg(II), Ni(II), Pb(II) et Zn(II)), présents à des concentrations de l'ordre du $\mu\text{g/L}$. Différents paramètres pouvant affecter l'adsorption des métaux ont été étudiés : concentration en adsorbant, concentration initiale en polluant et temps de contact. Des essais batch ont été réalisés avec des solutions contenant un seul métal à la fois (solution mono-élément) et avec les 6 métaux simultanément (solution multi-élément), afin d'étudier un potentiel effet de compétition. Des modèles cinétiques et des isothermes ont été utilisés pour modéliser le comportement d'adsorption des métaux lourds sur les fibres de lin. Notamment, pour les essais en multi-élément, le modèle de Langmuir Compétitif a été appliqué pour analyser les données expérimentales obtenues. Dans la gamme des concentrations étudiées ($\mu\text{g/L}$), les résultats montrent une absence de compétition des métaux lourds pour les sites d'adsorption des fibres de lin.

Mots-clefs adsorption, fibres de lin, métaux lourds, cinétique, isothermes

I. INTRODUCTION

L'urbanisation croissante, et la modification de la fréquence des épisodes pluvieux ont généré une augmentation du volume d'eaux pluviales nécessitant une gestion accrue. Cela oblige les pouvoirs publics à légiférer drastiquement, notamment avec la loi « climat et résilience », qui impose la réduction de la consommation d'espaces naturels ou agricoles, avant d'atteindre la zéro artificialisation nette (ZAN) en 2050. Par ailleurs, il est estimé que les zones soumises à l'aléa ruissellement sont bien plus étendues que celles soumises aux inondations, mais encore peu connues, car il s'agit d'un risque diffus. Un projet de cartographie face à cet aléa est en cours, certaines zones ne peuvent compter que sur les eaux de surface, il est donc nécessaire de les préserver. La gestion des eaux pluviales urbaines est obligatoire depuis 2020 pour les communautés d'agglomérations, mais posent des difficultés. Pour faire face à ces volumes importants, des solutions alternatives ont été mises en place, telles que des réservoirs enterrés, des

bassins de rétention, des chaussées perméables ou des noues. Ces solutions ont été élaborées au fil des années en complément aux deux types de réseaux d'assainissement traditionnels (Abbar et al., 2017). Des équipements collectifs de récupération des eaux de pluie sont intégrés dans des programmes d'aménagement globaux. Au regard des enjeux, il convient d'assurer une politique de gestion des eaux pluviales en contribuant à leur assainissement durable. Les eaux pluviales, bien que nettement moins polluées que les eaux usées, sont néanmoins néfastes à l'environnement, à cause de leur caractère chronique et cumulatif et la nature des polluants issus du lessivage des surfaces urbaines. En effet, la fraction en polluant dissoute peut être élevée. La mise en place de dispositifs adsorbants, comme des textiles échangeurs d'ions (choisis en fonction des contaminants), permet sa rétention avant le rejet au niveau des avaloirs. C'est dans ce cadre que se situe cette étude sur le TRI (Territoire à Risques Importants) du Havre, où sont recensés un certain nombre d'aléas, comme des débordements de cours d'eau, le ruissellement urbain, péri-urbain ou rural et la submersion marine.

Différents types de polluants peuvent être retrouvés dans la nature, comme les polluants organiques, inorganiques, radioactifs et microbiens. Parmi les polluants organiques, il est possible de retrouver les pesticides, les colorants, les hydrocarbures aromatiques polycycliques ainsi que des résidus de produits pharmaceutiques. Pour les polluants inorganiques, les engrais, les substances halogénées ou les métaux lourds peuvent être cités (Madhav et al., 2019). Ces derniers sont considérés comme étant l'une des familles de polluants les plus toxiques, notamment parce qu'ils peuvent provoquer des maladies chroniques ou aiguës. Les métaux lourds peuvent être déversés dans les eaux par différents types d'industries : la transformation du pétrole, la métallurgie, la production de produits chimiques ou les centrales électriques. Plus précisément, les sédiments dans les canalisations, les dépôts atmosphériques, la circulation et les matériaux de construction ont été identifiés comme contribuant à la pollution des eaux pluviales. Les matériaux de construction sont aussi considérés comme une source importante, notamment les produits galvanisés (pour le Zn(II)) et les toitures (pour le Cu(II)) (Sörme and Lagerkvist, 2002). De nombreuses études ont été menées, depuis des années, sur l'utilisation de différentes méthodes pour éliminer les polluants des eaux, telles que la filtration sur membrane, l'oxydation ou la réduction chimique, la coagulation ou la floculation, l'osmose inverse et l'adsorption. Parmi ces méthodes, la bio-adsorption est une méthode prometteuse de dépollution de l'eau. Elle est considérée comme l'une des méthodes les plus efficaces et les plus économiques pour l'élimination de polluants. Les adsorbants biosourcés peuvent être de diverses sources, notamment des déchets agricoles, d'algues, de biomasse microbienne, de roches et de matières minérales (Vievard et al., 2023).

Une étude antérieure réalisée au laboratoire a montré que l'étope de lin, une fibre courte générée lors de la production de fibres de lin pour les textiles, était un adsorbant biosourcé prometteur pour Cu(II), Pb(II) et Zn(II), avec une capacité d'adsorption maximale de 7,8, 23,2 et 4,6 mg/g, respectivement (Kajeiou et al., 2020). Cette étude a également mis en évidence un effet de compétition entre les métaux lourds pour les sites d'adsorption des fibres lorsque les trois métaux étaient en solution simultanément. Cela s'est traduit par une diminution des capacités d'adsorption qui passent à 3,6, 17,0 et 0,5 mg/g, pour Cu(II), Pb(II) et Zn(II), respectivement. Les études menées visent à valider les performances épuratoires d'un pilote de traitement des eaux pluviales. L'objectif du présent travail est d'étendre l'étude à d'autres métaux (Cd(II), Hg(II) et Ni(II)), avec des concentrations proches de celles des eaux de ruissellement polluées ($\mu\text{g/L}$). Plusieurs paramètres pouvant influencer l'adsorption ont été étudiés : la concentration en adsorbant, la concentration initiale en métaux et le temps de contact. De plus, l'étude a été menée d'une part,

avec des solutions contenant un seul élément métallique (solutions mono-élément) et d'autre part avec des solutions contenant simultanément l'ensemble des éléments métalliques (solutions multi-élément), afin de mettre en évidence un éventuel effet de compétition. Enfin, l'analyse et l'interprétation ont été menées en s'appuyant sur les isothermes de Langmuir, de Freundlich et de Langmuir Compétitif, et les modèles cinétiques pseudo-premier et pseudo-second ordre.

II. MATERIEL ET METHODES

II.1 Adsorbant biosourcé

Les fibres de lin sont fournies par le groupe Depestele, implanté en Normandie. Il s'agit de fibres courtes, appelées étoupes, non utilisées par l'industrie textile, résultant de la séparation des fibres des pailles. Un lavage de 24 heures, avant les essais d'adsorption, dans de l'eau ultrapure a été effectué pour nettoyer les fibres. Une coupe et un tamisage ont ensuite été effectués pour récupérer les fibres de taille comprise entre 200 µm et 900 µm. Les fibres ont été conservées au four à 60°C jusqu'à leur utilisation.

II.2 Préparation de l'échantillon

L'étude a été réalisée avec de l'eau ultrapure et des solutions métalliques. Le pH des solutions simulées a été ajusté à 6,4, proche du pH des eaux de ruissellement urbaines, avec des solutions de 0,1 M d'acide nitrique et d'ammoniaque. Une masse de fibres de lin a été déposée dans les tubes contenant les solutions simulées, puis une agitation à 30 rpm a été appliquée pendant un temps spécifique. A la fin du temps de contact défini, les solutions ont été filtrées et stockées dans un congélateur à -18°C jusqu'à l'analyse par ICP-MS. Chaque essai a été réalisé en trois exemplaires.

II.3 Optimisation des paramètres d'adsorption des métaux sur les fibres de lin

Trois paramètres expérimentaux ont été étudiés pour déterminer les conditions optimales d'adsorption des métaux lourds sur les fibres de lin : la concentration en fibres de lin, la concentration initiale en métaux lourds et le temps de contact. Pour déterminer les paramètres optimaux, deux indicateurs ont été calculés à partir des concentrations initiales et à l'équilibre déterminées par ICP-MS (spectrométrie de masse à plasma à couplage inductif) : l'efficacité d'élimination R (Eq. 1) et la capacité d'adsorption q (Eq. 2).

$$R(\%) = \frac{C_i - C_e}{C_i} \times 100 \quad (1)$$

$$q(\text{mg/g}) = \frac{(C_i - C_e) \times V}{m} \quad (2)$$

Avec C_i et C_e les concentrations initiales et à l'équilibre (mg/L), respectivement, V le volume de la solution (L), et m la masse des fibres de lin (g).

Le logiciel commercial Origin Pro (version 95e) a été utilisé pour estimer la capacité d'adsorption maximale des métaux et les paramètres d'adsorption pour les modèles de Langmuir, Freundlich, pseudo-premier ordre et pseudo-second ordre pour les solutions mono-éléments. Le logiciel commercial Athena Visual Studio a été utilisé pour estimer la capacité maximale d'adsorption des

métaux pour les solutions multi-éléments (Stewart and Caracotsios, 2008). Les intervalles crédibles, exprimés par les intervalles de confiance asymptotiques à 95 %, et la matrice de covariance ont été estimés à l'aide du progiciel GREGPLUS.

II.4 Cinétique et isothermes d'adsorption

- Cinétique d'adsorption

Les cinétiques d'adsorption sont utilisées pour comprendre le processus contrôlant la vitesse d'adsorption (Hussain et al., 2022). Les modèles du pseudo-premier ordre (PFO) et du pseudo-second ordre (PSO) sont utilisés.

Le modèle de pseudo-premier ordre, également appelé modèle de premier ordre de Lagergren, se présente sous la forme intégrée suivante (Eq. 3) :

$$q_t = q_e (1 - \exp(-k_1 t)) \quad (3)$$

Avec q_t la capacité d'adsorption (mg/g) après le temps de contact t , q_e la capacité d'adsorption à l'équilibre (mg/g) et k_1 la constante de vitesse d'adsorption du premier ordre. Si les résultats expérimentaux correspondent à ce modèle, cela implique une physisorption régie par des étapes de diffusion entre les métaux lourds et les sites d'adsorption des fibres de lin.

L'équation du pseudo-second ordre est décrite par la forme intégrée suivante (Eq. 4) :

$$\frac{1}{q_e - q_t} = \frac{1}{q_e} + k_2 t \quad (4)$$

Avec q_t la capacité d'adsorption (mg/g) après le temps de contact t , q_e la capacité d'adsorption à l'équilibre (mg/g) et k_2 la constante de vitesse d'adsorption du second ordre. Si les résultats expérimentaux correspondent à ce modèle, cela implique une chimisorption.

- Isothermes d'adsorption – solutions mono-éléments

Afin de décrire les caractéristiques des processus d'adsorption, les courbes de bio-adsorption ont été ajustées par les modèles de Freundlich et de Langmuir. Le modèle de Freundlich (Eq. 5) décrit une surface hétérogène et ne montre aucune saturation limite. Chaque site d'adsorption pourrait contenir plusieurs molécules en épaisseur, ce qui permettrait une adsorption réversible (Proctor and Toro-Vazquez, 1996). Le modèle de Langmuir (Eq. 6) suppose une surface de l'adsorbant homogène et que tous les sites actifs sont de même énergie. Chaque site d'adsorption ne peut contenir qu'une molécule en épaisseur et le polluant ne se concentre que sur les sites inoccupés (Febrianto et al., 2009).

Le modèle de Freundlich est décrit par l'équation suivante (Eq. 5) :

$$q_e = K_f C_e^{\frac{1}{n}} \quad (5)$$

Avec q_e la capacité d'adsorption à l'équilibre (mg/g), K_f (mg/g)(L/mg), n la constante de Freundlich et C_e (mg/L) la concentration du polluant à l'équilibre. La valeur de la constante de Freundlich peut fournir des informations sur le processus d'adsorption : $2 < n < 10$ indique une bonne adsorption, $1 < n < 2$ indique une adsorption modérément difficile, et $1 < n$ indique mauvaise adsorption.

Le modèle de Langmuir est décrit par l'équation suivante (Eq. 6) :

$$q_e = \frac{q_{\max} K_L C_e}{1 + K_L C_e} \quad (6)$$

Avec q_e la capacité d'adsorption à l'équilibre (mg/g), q_{\max} (mg/g) la capacité d'adsorption maximale, K_L (L/mg) la constante d'interaction adsorbant/polluant et C_e (mg/L) la concentration du polluant à l'équilibre.

- Isothermes d'adsorption – solutions multi-éléments

Les modèles utilisés pour décrire l'adsorption d'un seul polluant peuvent être modifiés pour décrire le comportement d'adsorption de plusieurs polluants simultanément. Dans cette étude, le modèle de Langmuir est modifié pour devenir l'isotherme compétitive de Langmuir (Aksu, 2002).

Le modèle est décrit par l'équation suivante (Eq. 7) :

$$q_{e,i} = \frac{q_{\max,i} K_{L,i} C_{e,i}}{1 + \sum_{j=1}^6 K_{L,j} C_{e,j}} \quad (7)$$

Avec $q_{e,i}$ (mg/g) la capacité d'adsorption du polluants i à l'équilibre, $q_{\max,i}$ (mg/g) la capacité d'adsorption maximale du polluants i , $K_{L,i}$ et $K_{L,j}$ (L/mg) les constantes d'interaction adsorbant/polluant et $C_{e,i}$ et $C_{e,j}$ (mg/L) les concentrations des polluants i et j à l'équilibre.

III. RESULTATS ET DISCUSSION

III.1 Optimisation des paramètres d'adsorption des métaux sur les fibres de lin

Différents paramètres ont été testés afin d'optimiser l'élimination des métaux lourds par les fibres de lin. En effet, le temps de contact, la concentration en adsorbant et la concentration initiale en métaux ont été étudiés.

- Temps de contact

L'effet du temps de contact sur l'adsorption des métaux a été étudié en prélevant un volume d'un même échantillon à neuf moments différents, entre 5 minutes de contact et 24 heures. La concentration en fibres était de 0,5 g/L et la concentration initiale en métal de 200 µg/L. Le temps de contact optimal traduit le temps nécessaire pour atteindre un équilibre entre les concentrations des métaux lourds présents en solution aqueuse et à la surface des fibres de lin. La figure 1 représente l'effet du temps de contact sur l'adsorption pour les solutions mono (Fig. 1.a) et multi-éléments (Fig. 1.b). Les barres d'erreur ont été déterminées à partir de l'écart-type obtenu pour les trois essais.

Les essais avec les deux types de solutions (mono-éléments et multi-éléments) ont montré que l'adsorption des métaux par les fibres de lin est très rapide, avec un temps d'équilibre atteint après 60 minutes de contact. Le taux d'adsorption augmente rapidement au début de l'essai en raison de la grande disponibilité des sites, avant de se stabiliser en raison d'une diminution des sites vacants. Une répulsion entre les métaux adsorbés et ceux encore présents dans la solution pourrait également expliquer la stabilisation. Au temps d'équilibre de 60 minutes, les taux d'adsorption sont compris entre 61 % pour le Hg(II) et 85 % pour le Cd(II) et le Pb(II) pour les

solutions mono-éléments, et entre 57 % pour le Hg(II) et 90 % pour le Pb(II) pour les solutions multi-éléments.

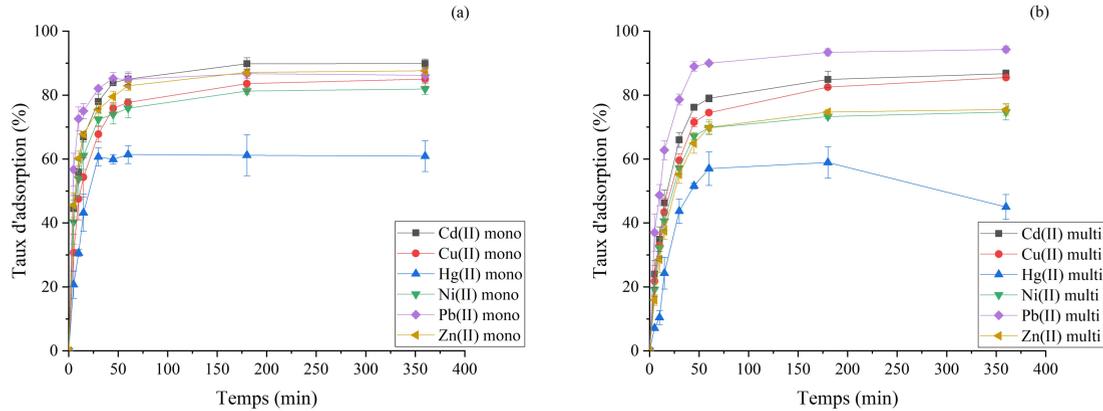


FIGURE 1. Effet du temps de contact sur l'adsorption dans des solutions mono-éléments (a) et multi-éléments (b)

- Concentration en fibres de lin

Pour étudier l'effet de la concentration en fibres de lin sur l'adsorption des métaux, six concentrations ont été testées (0,14, 0,25, 0,50, 1,00, 2,00 et 4,00 g/L). Les solutions ont été préparées avec une concentration de métaux lourds de 200 $\mu\text{g/L}$ et un temps de contact fixé à 60 minutes. La figure 2 présente l'effet de la concentration en fibres sur l'adsorption des métaux pour les solutions mono (Fig. 2.a) et multi-éléments (Fig. 2.b). Le taux d'adsorption des métaux lourds augmente rapidement avec la concentration en fibres de lin pour atteindre un plateau autour de 0,5 g/L pour les solutions mono-éléments, et 2 g/L pour solutions multi-éléments. Ce résultat prévisible s'explique par un accroissement de sites d'adsorption disponibles avec l'augmentation de la concentration d'adsorbant. La concentration de 0,5 g/L a été conservée pour l'étude de l'effet des autres paramètres. De plus, pour les deux types de solution, le Pb(II) est le métal le plus adsorbé, avec un taux maximal supérieur à 98 %, et le Hg(II) le moins adsorbé, avec un taux maximal de 67 %, obtenu à la concentration optimale en fibres de lin de 2 g/L dans les solutions multi-éléments. Aux concentrations optimales en fibres, les taux des autres métaux sont compris entre 86 % pour Ni(II) et 89 % pour Cd(II) pour les solutions mono-éléments, et entre 91 % pour Zn(II) et 98 % pour Cd(II) pour les solutions multi-éléments.

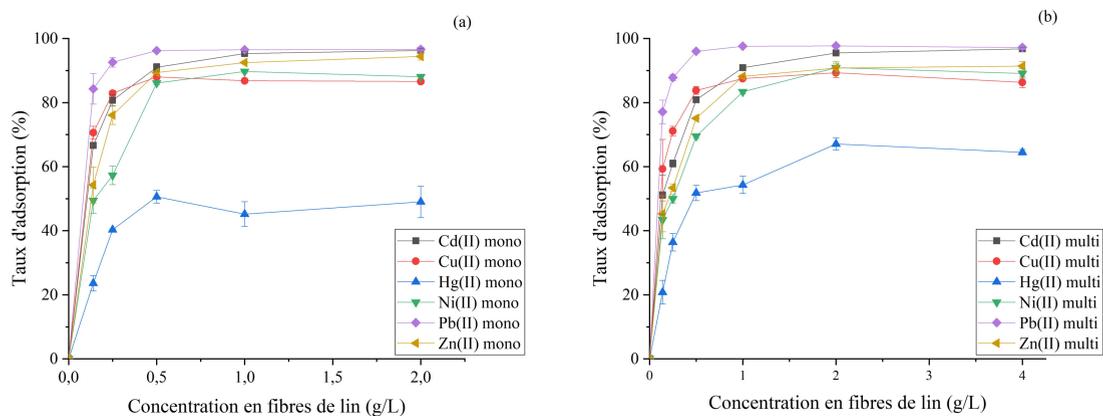


FIGURE 2. Effet de la concentration en fibres de lin sur l'adsorption des métaux dans des solutions mono-éléments (a) et multi-éléments (b)

- Concentration initiale en métaux lourds

Pour étudier l'effet de la concentration initiale en métaux sur l'adsorption des métaux, plusieurs concentrations initiales ont été testées, allant de 50 µg/L à 8 mg/L. Une concentration en fibres de lin de 0,5 g/L et un temps de contact de 60 minutes ont été fixés pour l'étude. La figure 3 représente l'effet de la concentration initiale sur l'adsorption des métaux pour les solutions mono (Fig. 3.a) et multi-éléments (Fig. 3.b).

En général, le taux d'adsorption augmente légèrement au début, puis diminue avec l'augmentation de la concentration initiale en métaux dans les deux types de solution. Cette diminution peut être causée par un nombre excessif de métaux par rapport au nombre de sites d'adsorption disponibles ou par l'augmentation des forces de cohésion entre eux dans la solution. Les taux d'adsorption optimaux sont obtenus pour des concentrations de 200 µg/L (Fig. 3.a), sauf pour le Hg(II) en solution mono-élément et de 100 µg/L (Fig.3.b) pour les solutions multi-éléments. La concentration de 200 µg/L a été conservée pour l'étude des autres paramètres.

La figure 3.a montre, qu'à l'exception du Ni(II), pour lequel un palier synonyme de la saturation des fibres a été atteint autour de 4 mg/L, la saturation n'est toujours pas atteinte à une concentration initiale de 8 mg/L en solution mono-élément. En revanche, pour les solutions multi-éléments, la saturation des fibres a été atteinte autour de 4 mg/L pour tous les métaux, à l'exception du Pb(II) pour lequel l'adsorption diminue encore à 8 mg/L. Pour les autres métaux, à cette concentration initiale, le taux d'adsorption était compris entre 5% pour Ni(II) et 30% pour Cu(II).

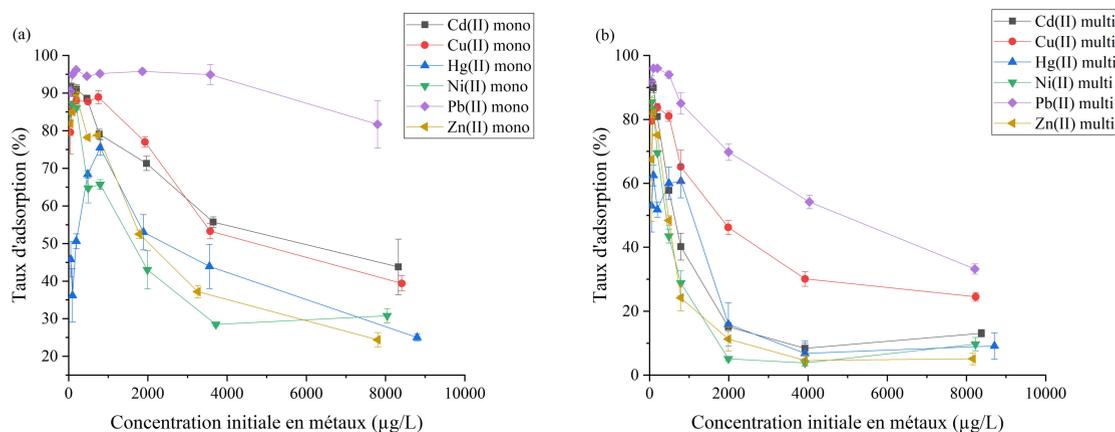


FIGURE 3. Effet de la concentration initiale en métaux sur l'adsorption dans des solutions mono-éléments (a) et multi-éléments (b)

III.2 Cinétique et isothermes d'adsorption

- Cinétique d'adsorption

La cinétique d'adsorption fournit des données importantes sur les mécanismes d'absorption à l'interface solide-solution. Les modèles du pseudo-premier ordre et du pseudo-second ordre ont été utilisés pour l'analyse des cinétiques d'adsorption. Le tableau 1 résume les paramètres des

deux modèles appliqués aux essais réalisés avec une concentration en fibres de lin de 0,5 g/L et une concentration initiale en métaux de 200 µg/L.

TABLEAU 1. Valeurs déterminées des paramètres des modèles PFO et PSO (Mo = Solution mono-élément, Mu = solution multi-élément)

Métaux lourds	Type de solution	PFO			PSO		
		q _e (mg/g)	k ₁ (/min)	R ²	q _e (mg/g)	k ₂ (g/mg.min)	R ²
Cd(II)	Mo	0,171	0,111	0,937	0,180	0,995	0,986
Cu(II)	Mo	0,160	0,075	0,950	0,174	0,639	0,996
Hg(II)	Mo	0,127	0,073	0,951	0,136	0,776	0,919
Ni(II)	Mo	0,150	0,118	0,932	0,159	1,19	0,996
Pb(II)	Mo	0,174	0,195	0,888	0,182	2,03	0,968
Zn(II)	Mo	0,169	0,130	0,917	0,179	1,718	0,997
Cd(II)	Mu	0,170	0,052	0,993	0,173	0,662	0,977
Cu(II)	Mu	0,167	0,046	0,984	0,177	0,412	0,991
Hg(II)	Mu	0,112	0,042	0,898	0,128	0,201	0,834
Ni(II)	Mu	0,146	0,055	0,996	0,146	1,05	0,967
Pb(II)	Mu	0,186	0,076	0,972	0,195	0,670	0,979
Zn(II)	Mu	0,148	0,047	0,998	0,146	0,934	0,961

A l'exception du Hg(II), les cinétiques d'adsorption pour l'ensemble des essais suivent correctement les modèles du pseudo-premier ordre et du pseudo-second ordre, le deuxième étant légèrement meilleur. Ceci laisse supposer des réactions de chimisorption et de physisorption.

- Isothermes d'adsorption – solutions mono-éléments

Les isothermes de Langmuir et de Freundlich ont été appliquées aux données d'adsorption des solutions mono-éléments. Les coefficients des deux modèles sont présentés dans le tableau 2.

TABLEAU 2. Valeurs des paramètres des isothermes de Langmuir et de Freundlich pour les solutions mono-éléments

Métaux lourds	Langmuir			Freundlich		
	q _{max} (mg/g)	K _L (L/mg)	R ²	n	K _f (mg/g) (L/mg) ^{1/n}	R ²
Cd(II)	10,1	0,53	0,971	1,92	3,31	0,995
Cu(II)	7,0	1,38	0,943	2,28	3,29	0,975
Hg(II)	5,2	0,79	0,979	2,11	1,90	0,950
Ni(II)	2,9	1,71	0,983	2,80	1,47	0,975
Pb(II)	15,2	3,90	0,994	2,04	11,1	0,949
Zn(II)	3,8	1,61	0,939	2,56	1,90	0,984

Les résultats ont été ajustés aux deux modèles avec des coefficients de détermination supérieurs à 0,939. Hg(II) et Pb(II) sont mieux modélisés par l'isotherme de Langmuir, qui suppose une énergie homogène et des sites énergétiquement équivalents à la surface de l'adsorbant. Cd(II), Cu(II) et

Zn(II) sont mieux modélisés par l'isotherme de Freundlich, qui suppose que l'énergie présente à la surface de l'adsorbant est hétérogène. Les coefficients de détermination obtenus pour Ni(II) sont similaires pour les deux modèles testés. De plus, pour tous les métaux, sauf pour le Cd(II), la constante de Freundlich est comprise entre 2 et 10, ce qui implique une bonne capacité d'adsorption. Un ordre de sélectivité basé sur l'isotherme de Langmuir a été déterminé $Pb(II) > Cd(II) > Cu(II) > Hg(II) > Zn(II) > Ni(II)$.

- Isothermes d'adsorption – solutions multi-éléments

Les isothermes classiques de Langmuir et de Freundlich ont été appliquées aux données d'adsorption pour les solutions multi-éléments. Les résultats ont été non satisfaisants avec des coefficients de détermination faibles inférieurs à 0,756. Ceci montre que ces deux modèles ne sont pas adaptés à l'adsorption multi-éléments car ils ne prennent pas en compte une potentielle interaction entre les différents métaux lourds. L'isotherme de Langmuir compétitive a donc été appliquée aux données d'adsorption pour les solutions multi-éléments. Pour cela, deux logiciels de modélisation ont été utilisés. Les paramètres trouvés ont été répertoriés dans le tableau 3.

Les intervalles de crédibilité sont inférieurs à 50 %, ce qui signifie que les valeurs prédites étaient correctement estimées. L'ordre de sélectivité est le même que pour les solutions mono-éléments.

TABLEAU 3. Valeurs des paramètres de l'isotherme de Langmuir compétitive pour les solutions multi-éléments

Métaux lourds	q_{\max} (mg/g)	Intervalle de crédibilité (%)	K_L (L/mg)	Intervalle de crédibilité (%)
Cd (II)	10,3	8,7	0,51	19,7
Cu (II)	6,8	5,7	1,58	17,8
Hg (II)	4,9	8,8	0,93	23,7
Ni (II)	3,0	10,6	1,28	29,0
Pb (II)	15,3	3,2	3,81	8,4
Zn (II)	4,0	9,8	1,13	26,5

III.3 Compétition entre les métaux lourds

Les coefficients de variation, entre les capacités d'adsorption maximales déterminées pour les solution mono-éléments et multi-éléments, ont été calculés afin d'identifier un potentiel effet de compétition des métaux lourds pour les sites d'adsorption. Il se définit comme étant cent fois le rapport de l'écart-type (entre les capacités des solutions mono et multi-éléments) sur la valeur moyenne des capacités maximales (moyenne des capacités des solutions mono et multi-éléments).

Les coefficients de variation obtenus sont inférieurs à 5 %. Ces valeurs nous permettent de supposer que les métaux lourds possèdent une capacité d'adsorption maximale similaire pour les solutions mono et multi-éléments. L'adsorption des métaux lourds n'est donc pas impactée par la présence d'autres métaux en solution pour des concentrations de l'ordre du $\mu\text{g/L}$. Une étude antérieure réalisée au laboratoire sur l'adsorption de Cu(II), Pb(II), et Zn(II), à des concentrations de l'ordre de mg/L, par les fibres de lin a montré un effet de compétition entre Cu(II) et Zn(II), mais pas pour Pb(II) (Kajeiou et al., 2020). Les résultats de notre étude et de l'étude antérieure permettent de conclure que l'effet de compétition des métaux dépend de leur niveau de concentration. En effet, Cu(II) et Zn(II) étaient en compétition à des concentrations de l'ordre de mg/g, et non à des concentrations de l'ordre de $\mu\text{g/g}$.

TABLEAU 4. Etude de l'effet de compétition des métaux lourds pour les sites d'adsorption des fibres de lin

Heavy metal	$q_{\max \text{ single}}$ (mg/g)	$q_{\max \text{ multi}}$ (mg/g)	Coefficient of variation (%)
Cd (II)	10.1	10.3	1.4
Cu (II)	7.0	6.8	2.0
Hg (II)	5.2	4.9	4.2
Ni (II)	2.9	3.0	2.4
Pb (II)	15.2	15.3	0.5
Zn (II)	3.8	4.0	3.6

IV. CONCLUSION

Cette étude a montré que l'utilisation de fibres de lin locales pouvait efficacement nettoyer les eaux pluviales de six métaux lourds. Les paramètres optimaux d'adsorption ont été déterminés pour des solutions contenant un seul métal et contenant les six métaux simultanément, ce qui a permis de mettre en avant une absence de compétition des métaux pour les sites d'adsorption. L'ambition finale de ce projet est le développement d'un système filtrant, qui serait placé à l'entrée d'un bassin de rétention, pour nettoyer efficacement des eaux polluées en métaux. Deux premières études avaient montré que l'utilisation de sable et de disques de géotextile composés de fibres de lin au sein de ce système permettait une bonne capacité globale de rétention de trois métaux lourds adsorbés sur des particules en suspension et dissouts. La présente étude a montré que le géotextile était en mesure d'adsorber trois métaux supplémentaires. Ces résultats peuvent servir d'indicateur prometteur pour l'utilisation de matériaux à base de fibres de lin dans la conception de systèmes de traitement des eaux de ruissellement, visant l'élimination de métaux solubles ou adsorbés aux particules en suspension.

REFERENCES

- Abbar, B. et al. *Environmental Technology* 2017, 38, 2964–2978. <https://doi.org/10.1080/09593330.2017.1284270>
- Aksu, Z. et al. *Water Research*, 2002, 36, 3063–3073. [https://doi.org/10.1016/S0043-1354\(01\)00530-9](https://doi.org/10.1016/S0043-1354(01)00530-9)
- Febrianto, J. et al. *Journal of Hazardous Materials*, 2009, 162, 616–645. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2008.06.042>
- Hussain, Z. et al. *Journal of Hazardous Materials*, 2022, 422, 126778. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2021.126778>
- Kajeiou, M. et al. *Chemosphere*, 2020, 260, 127505. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2020.127505>
- Madhav, S. et al. *Sensors in Water Pollutants Monitoring: Role of Material*, 2019 https://doi.org/10.1007/978-981-15-0671-0_4
- Proctor, A. et al. *Journal of the American Oil Chemists' Society*, 1996, 73, 1627–1633. <https://doi.org/10.1007/BF02517963>
- Sörme, L. et al. *Science of The Total Environment*, 2002, 298, 131–145. [https://doi.org/10.1016/S0048-9697\(02\)00197-3](https://doi.org/10.1016/S0048-9697(02)00197-3)
- Stewart, W.E. et al. *Computer-Aided Modeling of Reactive Systems*, 2008, John Wiley & Sons.
- Vievard, J. et al. *Toxics*, 2023, 11, 404. <https://doi.org/10.3390/toxics11050404>

Modélisation en transport réactif de la dégradation des granulats lors d'une réaction alcali-silice.

Gomez Lucie

LMDC, Université de Toulouse / IRSN

RESUME Dans le contexte du vieillissement des structures massives en béton, comme les enceintes de confinement des centrales nucléaires ou les barrages hydro-électrique, l'étude de la durabilité des matériaux cimentaires est d'un grand intérêt. En particulier, la Réaction Alcali-Silice (RAS) peut réduire la durabilité des structures. Le mécanisme de réaction se décrit en 4 étapes : transport des ions, dissolution de la silice réactive, précipitation des produits de réaction et gonflement causant la fissuration du système. Un modèle de transport réactif à l'échelle mésoscopique est proposé afin de simuler la dissolution progressive des granulats et la précipitation des gels en fonction des caractéristiques du granulat. Les résultats retrouvent les observations de la littérature où le gel d'alcali-silice se forme à cœur de granulat alors qu'un C-S-H au ratio Ca/Si faible se forme à l'interface entre la pâte et le granulat. Deux études paramétriques montrent la capacité du modèle à simuler les effets de taille du granulat ainsi que l'influence des paramètres diffusifs sur le type de produits formés.

Mots-clefs Réaction Alcali-Silice, Transport Réactif, Granulat réactif

I. INTRODUCTION

De nos jours, le vieillissement des ouvrages en béton est une problématique majeure, le béton étant un matériau multiphasique composé d'une matrice cimentaire et d'inclusions granulaires, avec un comportement dépendant du milieu dans lequel il se trouve (température, humidité extérieure). Ainsi, le vieillissement peut avoir un impact sur la sûreté des installations ainsi que sur leur exploitation. Dans le but de caractériser la durabilité du béton en vue de l'extension de la durée d'exploitation des centrales, une attention particulière est portée aux enceintes de confinement en béton des Réacteurs à Eau Pressurisée (REP). De nombreuses études ont été initiées par l'IRSN (Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire), afin d'étudier les différentes pathologies pouvant atteindre le béton, notamment celles concernant les réactions de gonflement interne (RGI) (Socié, 2019). Dans cette étude, nous nous intéressons à la Réaction Alcali-Granulat (RAG), et plus particulièrement à la Réaction Alcali-Silice (RAS) (mécanisme de réaction mettant en jeu les composants siliceux réactifs des granulats). Cette réaction est étudiée depuis de nombreuses années (Urhan, 1987; Hou et al., 2004; Ichikawa et Miura, 2007) mais la

compréhension fine des mécanismes impliqués, ainsi que leurs conséquences, nécessite encore des approfondissements.

La RAS met en jeu un couplage de plusieurs physiques à différentes échelles et se développe quand trois composants principaux interagissent pour former un gel d'alcali-silice : les composants siliceux réactifs des granulats, les alcalins provenant du ciment, des granulats ou de l'extérieur, ainsi qu'une humidité relative élevée. Le mécanisme peut être décrit en quatre étapes (Urhan, 1987; Hou et al., 2004; Leemann et al., 2011) :

- Le transport des ions, par gradient de concentration, dans le milieu poreux hétérogène (pâte de ciment, granulat, porosité).
- La dissolution de la silice réactive au contact des ions OH^- présents en solution, par rupture des liaisons Si-OH. La consommation des OH^- engendre la baisse du pH, causant la dissolution de la portlandite CH, libérant des ions OH^- et Ca^{2+} en solution.
- La précipitation des produits de réactions à partir de la silice aqueuse, des ions alcalins et/ou des ions calcium.
- Expansion puis fissuration. Les produits de réaction secondaires se formant dans les vides disponibles (pores ou fissures existantes), une contrainte locale apparaît lors que le volume de produit formé devient supérieur au volume de vides disponibles. Si cette contrainte dépasse la résistance locale du matériau, des fissures peuvent être initiées ou propagées.

La RAS est une réaction lente dont la cinétique de dégradation est de l'ordre de quelques dizaines d'années pour un ouvrage exposé à un climat tempéré (Fernandes et Broekmans, 2013). Elle est souvent diagnostiquée tardivement car interne à la structure et la prédiction de son avancement pour un ouvrage en cours d'exploitation est un enjeu majeur. La mise en place d'outils numériques prédictifs devient nécessaire dans des ouvrages comme les enceintes de confinement ne pouvant être étudiés par des prélèvements destructifs. La modélisation numérique peut apporter une compréhension des mécanismes locaux et leurs rôles dans les conséquences macroscopiques de la réaction. L'objectif de l'étude est de mettre en place un modèle numérique pouvant prendre en compte l'influence des caractéristiques des granulats sur le développement de la réaction. Un modèle numérique de Transport Réactif (TR), combinant transport et réactions chimiques, en milieu saturé a donc été développé afin de prédire l'évolution de la microstructure au cours de l'avancement de la réaction à partir de paramètres physiques et chimiques locaux mesurables. Dans une première partie, les mécanismes physico-chimiques associés à la réaction sont décrits puis, les équations du modèle sont détaillées, et enfin, une application montrant les potentialités du modèle est présentée. L'effet de la taille du granulat et l'influence des paramètres de diffusion sur la réaction ont été étudiés.

II. MODÉLISATION

Les méthodes numériques pour la prédiction d'avancement de la RAS à différentes échelles sont couramment utilisées dans la littérature. Néanmoins, les modèles à l'échelle macroscopique utilisent des paramètres fittés sur des courbes d'expansion expérimentales et négligent la partie chimie de la réaction (Sellier et al., 2009; Morenon et al., 2022). Or la description des mécanismes à

l'échelle de la microstructure paraît primordiale pour la compréhension de la réaction. Des modèles de transport réactif à l'échelle mésoscopique ont été proposés (Guthrie et Carey, 2015; Qiu et al., 2022). Ces modèles prennent en compte le transport des ions et les réactions chimiques pilotées par l'équilibre thermodynamique entre 2 phases : la pâte de ciment hydratée et le granulats. Ils ont montré la possibilité de simuler les étapes de la RAS et la formation des différents types de produits en fonction des conditions chimiques dans la solution poreuse.

Ici le modèle de transport réactif décrit les trois premières étapes de la réaction : transport, dissolution de la silice et précipitation des produits.

A. Modèle de Transport Réactif

Le transport est supposé être piloté par gradient de concentration ionique et est modélisé par la seconde loi de Fick. Les 2 paramètres importants sont la porosité et le coefficient de diffusion associés à chaque phase prise en compte.

L'équation de dissolution de la silice ne validant pas l'hypothèse de l'équilibre local, une loi cinétique est utilisée (Kim et Olek, 2014; Qiu et al., 2022). Cette loi prend en compte l'influence du pH sur la dissolution à partir de l'activité de l' OH^- et la réactivité de la silice est prise en compte par la surface spécifique, le constante cinétique de dissolution et la constante thermodynamique associée à la réaction.

$$\frac{\partial C_m}{\partial t} = -A_m \cdot k_m \cdot a_{\text{OH}^-}^\beta \cdot \left(\frac{Q}{K_m} - 1 \right) \quad (1)$$

Avec C_m la concentration du minéral [mol/L], A_m la surface spécifique réactive du minéral m [m^2/L], k_m la constante cinétique de dissolution [$\text{mol}/\text{m}^2 \cdot \text{s}$], a_{OH^-} l'activité de l'ion OH^- , β un paramètre représentant l'ordre partiel de la réaction (ici $\beta = 0,44$), Q le quotient réactionnel, K_m la constante de solubilité du minéral m.

Seul les hydrates impliqués dans la RAS seront pris en compte, ici la pâte de ciment est initialement composée de portlandite CH et de C-S-H (ratio Ca/Si=1,65). Le granulats est supposé uniformément réactif. Les produits de réaction considérés sont généralement observés lors d'une RAS : un C-S-H ayant un faible ratio Ca/Si(0,8), semblable à de la tobermorite (Hou et al., 2004; Leemann et al., 2011) et un gel d'alcali-silice (Na-S-H) expansif semblable à de la kanémite (Leemann et al., 2011; Kim et Olek, 2014). La composition stœchiométrique de la kanémite est connue, cependant sa constante d'équilibre n'est pas définie dans les bases de données. Après une étude paramétrique, la solubilité du gel est égale à 2,5. Afin de stabiliser le système, des espèces aqueuses secondaires, composées d'ions alcalins, calcium et silice, sont prises en compte. Le Tableau 1 donne les réactions chimiques des produits considérés et leurs constantes d'équilibre. La base de données utilisée est Thermoddem (Blanc et al., 2012). Les modèles proposés par (Guthrie et Carey, 2015; Qiu et al., 2022) gèrent, et bloquent, la dissolution de la portlandite et du C-S-H de la pâte par une loi cinétique. Cette hypothèse est assez forte et peut mener à des non-linéarités au niveau de la résolution numérique, ici toutes les réactions sont supposées être à l'équilibre thermodynamique, à l'exception de la dissolution de la silice.

TABLEAU 1. Réactions et constantes d'équilibre des produits modélisés à 25°C (Blanc et al., 2012)

Produits	Equations	Log K
Si(s)	$H_4SiO_4 \leftrightarrow SiO_2(s) + 2 H_2O$	3,74
Kanémite	$2 H_4SiO_4 + 4 H_2O + Na^+ \leftrightarrow Na-S-H + H^+$	2,5
Tobermorite	$6 H_4SiO_4 + 3,5 H_2O + 5 Ca^{2+} \leftrightarrow C-S-H_{0.8} + 10 H^+$	-62,944
C-S-H(1,6)	$H_4SiO_4 + 2,18 H_2O + 1,6 Ca^{2+} \leftrightarrow C-S-H_{1.6} + 3,2 H^+$	-28,002
Portlandite	$2 H_2O + Ca^{2+} \leftrightarrow Ca(OH)_2 + 2 H^+$	-22,812

B. Application

L'objectif de l'application est de comprendre les effets chimiques locaux de la RAS ainsi que l'effet des gradients ioniques dans le granulat. Dans le travail ci-dessous, le code de transport réactif HYTEC (Van der Lee et al., 2003) est utilisé. Les équations du système chimique (thermodynamique + cinétique) sont résolues simultanément (modèle monolithique).

1. Cas d'étude

Le système unitaire de référence est un rectangle de dimension 0,1 mm x 0,75 mm, composé de pâte de ciment et d'un granulat avec un ratio pâte/granulat de 30/70, représentatif d'un béton ordinaire, illustré en Figure 1. Une condition de symétrie est appliquée sur le bord droit du granulat. Le calcul est en 1D.

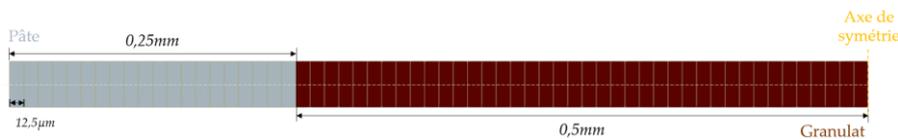


FIGURE 1. Domaine étudié : 30% de pâte et 70% de granulat

La taille de maille est de 12,5 µm. Le matériau est mature, déjà hydraté (eau/ciment = 0,45). A l'initialisation, la pâte est composée de portlandite et de C-S-H(1,6) avec des concentrations obtenues à partir du modèle d'hydratation utilisé dans (Socié et al., 2022). La concentration initiale en ions alcalins, définie en sodium équivalent, est égale à 1 mol/l. Le pH dans les granulats est initialisé à 10. La concentration de silice solide est calculée à partir des données de (Gao et al., 2013). Les valeurs initiales sont données dans le Tableau 2.

Les essais pour la détermination des paramètres diffusifs portent essentiellement sur des éprouvettes de béton. Néanmoins, Goto et Roy (1981) ont proposé une étude focalisée sur les granulats (quartzite). De plus, dans leur modèle, Qiu et al. (2022) calculent les coefficients de diffusion à partir de données expérimentales de la littérature. Concernant la dissolution, les essais de dissolution de la silice en milieu basique sont courants, et englobent de nombreux paramètres (température, pH, nature du granulat) (Brady et Walther, 1990; Kim et Olek, 2014). Les paramètres utilisés dans le modèle sont donnés dans le Tableau 3. Le coefficient k_{eq} est défini par $k_m * A_m$.

TABLEAU 2. Valeurs initiales du modèle après calcul d'hydratation (modèle de Socié et al., 2022)

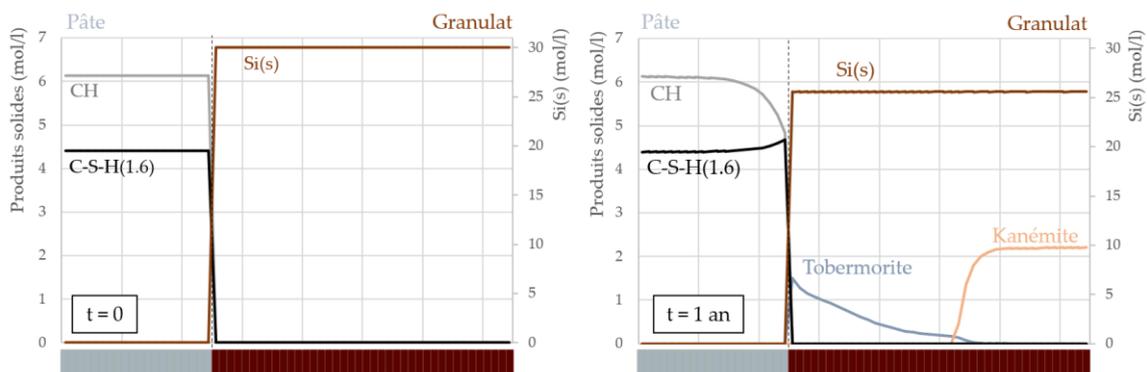
Pâte	Granulat
$Ca(OH)_2 = 6,13 \text{ mol/l}$	$Si(s) = 30 \text{ mol/l}$
$C-S-H_{1.6} = 4,41 \text{ mol/l}$	pH = 10

TABLEAU 3. Paramètres de diffusion (Goto et Roy, 1981; Qiu et al., 2022) et de dissolution (Brady et Walther, 1990; Kim et Olek, 2014)

	Pâte	Granulat
Coefficient de diffusion (m^2/s)	$D_p = 10^{-11}$	$D_g = 10^{-13}$
Porosité	0,25	0,01
Coefficient cinétique de dissolution ($mol/l.s$)	-	$k_{eq} = 1.10^{-10}$

2. Simulation de l'attaque du granulat par la solution interstitielle de la pâte

Dans cette partie, nous présentons l'attaque d'un granulat de 1 mm par la solution porale du béton. Les résultats de la simulation obtenus à 1 an sont affichés dans la Figure 2, en utilisant la symétrie dans le maillage du granulat, seulement 0,5 mm de longueur est représentée. La figure montre la dissolution de la silice solide : la concentration de silice dans le granulat évolue de 30 mol/l à 25 mol/l. Notons que la dissolution est homogène, cela est dû, d'une part, à l'homogénéité de la silice réactive dans la particule de granulat et, d'autre part, à la cinétique d'attaque pilotée majoritairement par la dissolution de la silice dans le cas des petites particules. Dans ce cas, la diffusion des espèces agressives dans le granulat est rapide alors que la dissolution est lente.

**FIGURE 2.** Profils de concentration des phases solides à l'initialisation et à 1 an

Le modèle, à partir de l'équilibre thermodynamique, permet de reproduire la séquence complète de la réaction : dissolution de la portlandite libérant des ions calcium disponibles pour former des C-S-H proches de l'interface. Les produits de réaction se formant dans le granulat sont conformes à ceux décrits dans la littérature : tobermorite proche de l'interface (produit contenant du calcium, semblables à des C-S-H) et de la kanémité au cœur du granulat (Urhan, 1987; Ichikawa et Miura, 2007).

Les quantités de produits formés sont présentées dans la Figure 3. Pour les hydrates initiaux de la pâte, il est observé des variations légères : la portlandite se dissout et le C-S-H1.6 augmente. La précipitation de C-S-H1.6 est due à la présence simultanée de calcium et de silice aqueuse, rendant possible sa formation côté pâte. Pour la Si(s), la quantité diminue, validant la dissolution quasi-linéaire provoquée par la loi cinétique. Concernant les produits de réaction, il est observé que la kanémité se forme en plus grande quantité que la tobermorite. Néanmoins, la cinétique de formation semble ralentir pour la kanémité alors qu'elle semble rester linéaire pour la tobermorite.

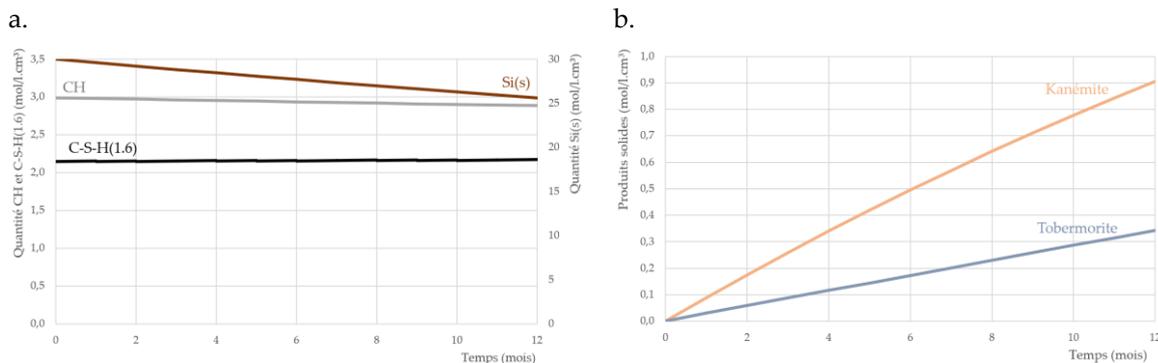


FIGURE 3. Quantité des phases solides en mol/l.cm³ à 1 an : a. portlandite, C-S-H1.6 et Si(s) et b. Kanémite et Tobermorite

3. Influence de la taille de granulat

L'effet de la taille du granulat sur l'expansion macroscopique est souvent discuté dans la littérature (Urhan, 1987; Ichikawa et Miura, 2007; Gao et al., 2013). Les gonflements dus à la RAS varient avec le diamètre. Une réduction du diamètre peut accélérer le transport (les petites particules seront saturées plus vite que les grosses), et donc la cinétique de dissolution. Cela peut mener à une réaction pouzzolanique : la dissolution rend, rapidement, la silice aqueuse disponible en solution (Cyr et al., 2009). De plus, la dissolution de la silice consommant les ions OH⁻, il y a une accélération de la dissolution de la portlandite (CH) pour équilibrer la solution, rendant les ions calcium aussi disponibles. Il en résulte que l'équilibre thermodynamique en solution est favorable à la formation de produits de type C-S-H (de différents ratios), consommant la silice aqueuse issue de la dissolution et bloquant la formation de gel d'alcali-silice.

Dans le but de comprendre ces observations et mettre en évidence les capacités du modèle à reproduire ces phénomènes, 4 tailles de granulat sont considérées : 0,1 mm, 0,5 mm, 1 mm et 5 mm.

Dans la Figure 4, nous pouvons voir que pour les petits diamètres (0,1 et 0,5 mm), la formation de tobermorite domine celle de la kanémite, menant en un effet non-délétère de la réaction. La cinétique étant plus rapide pour de petits diamètres, la silice est dissoute rapidement et captée directement par les ions calcium à l'interface, laissant les ions alcalins diffuser dans le granulat sans réagir. Pour les particules plus larges, plus le diamètre est grand, plus la quantité de kanémite formée est grande. Ce résultat confirme que les granulats les plus gros mènent à la plus grande production de kanémite et présente donc un potentiel d'expansion supérieur, pour l'intervalle de taille étudiée.

La Figure 5 montre les quantités de produits de réaction formés au cours du temps pour différents diamètres. Nous pouvons observer que, pour les diamètres les plus faibles, quand la kanémite ne se forme pas la quantité de tobermorite est élevée. A l'inverse, pour les diamètres élevés, la kanémite se forme en grande quantité et la tobermorite est faible. Néanmoins, les courbes semblent linéaires mais les quantités ne sont pas proportionnelles aux diamètres. Cela peut être expliqué par l'influence des cinétiques de dissolution et diffusion sur la cinétique de formation des produits. En effet, pour un grand diamètre, les ions n'ont pas encore eu le temps d'atteindre le cœur du granulat : la dissolution de la silice est donc plus lente que pour un petit granulat. La

formation de produit de réaction est donc aussi retardée car les espèces aqueuses ne sont pas encore disponibles dans le granulat.

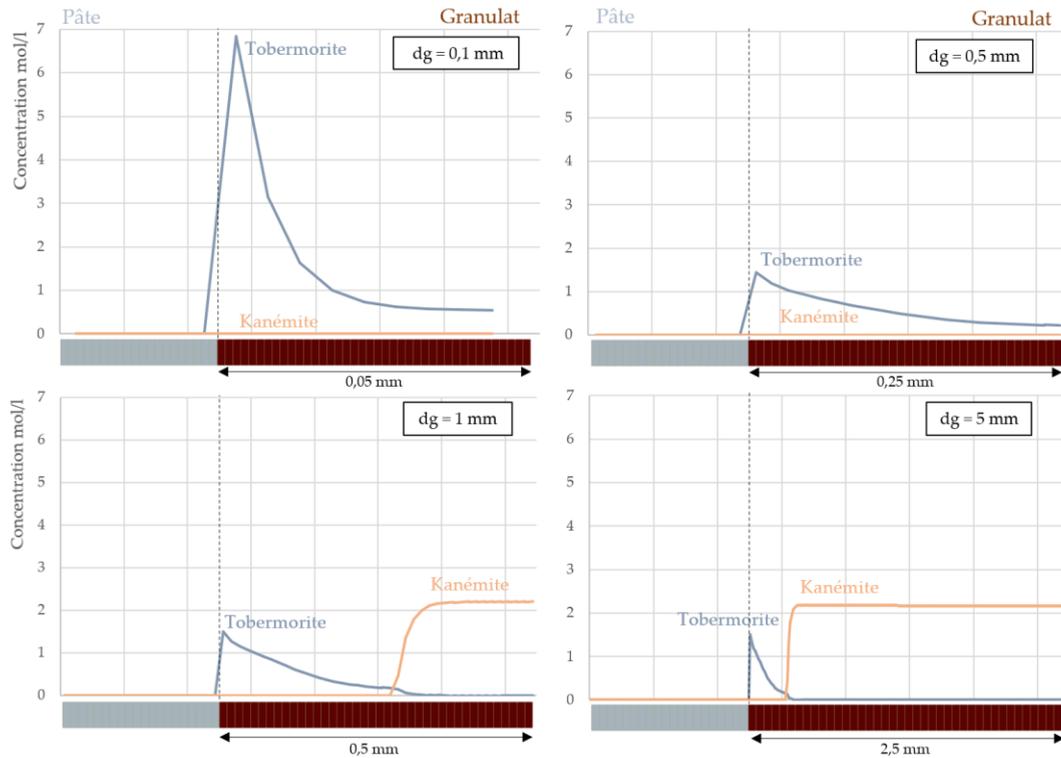


FIGURE 4. Profils de concentration des produits de réaction à 1 an pour les diamètres : 0,1 mm, 0,5 mm, 1 mm et 5 mm

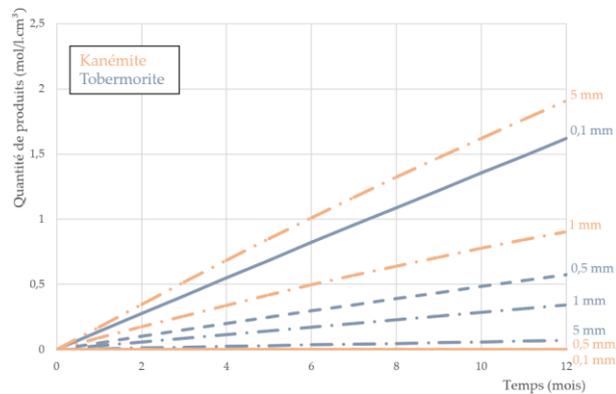


FIGURE 5. Quantités de kanémite et tobermorite formées en fonction du temps pour les diamètres : 0,1 mm, 0,5 mm, 1 mm et 5 mm

Ces résultats montrent que, avec l’hypothèse de l’homogénéité de la réactivité dans le granulat, le modèle est capable de reproduire l’effet pouzzolanique observé dans la littérature pour des petites particules de granulats siliceux réactifs. Cependant il est souvent noté, dans la littérature, qu’un diamètre de 0,5 mm devrait entraîner un gonflement (Gao et al., 2013). Ces observations suggèrent la formation de gel d’alcali-silice (kanémite ici), ce qui n’est pas notre cas.

4. Effet du coefficient de diffusion

Dans le but d'étudier l'effet du coefficient de diffusion dans le granulat, plusieurs coefficients ont été testés, $D_g = D_p/100$ (référence), $D_g = D_p/200$ et $D_g = D_p/1000$, pour le cas de la particule de 0,5mm de diamètre. Les valeurs ont été choisies pour représenter un intervalle de valeurs cohérentes avec la littérature (Goto et Roy, 1981 ; Qui et al., 2022). Les résultats sont présentés dans la Figure 6.

Des valeurs de coefficient de diffusion faibles pour D_g entraînent une formation de kanémite (Figure 6b et 6c).

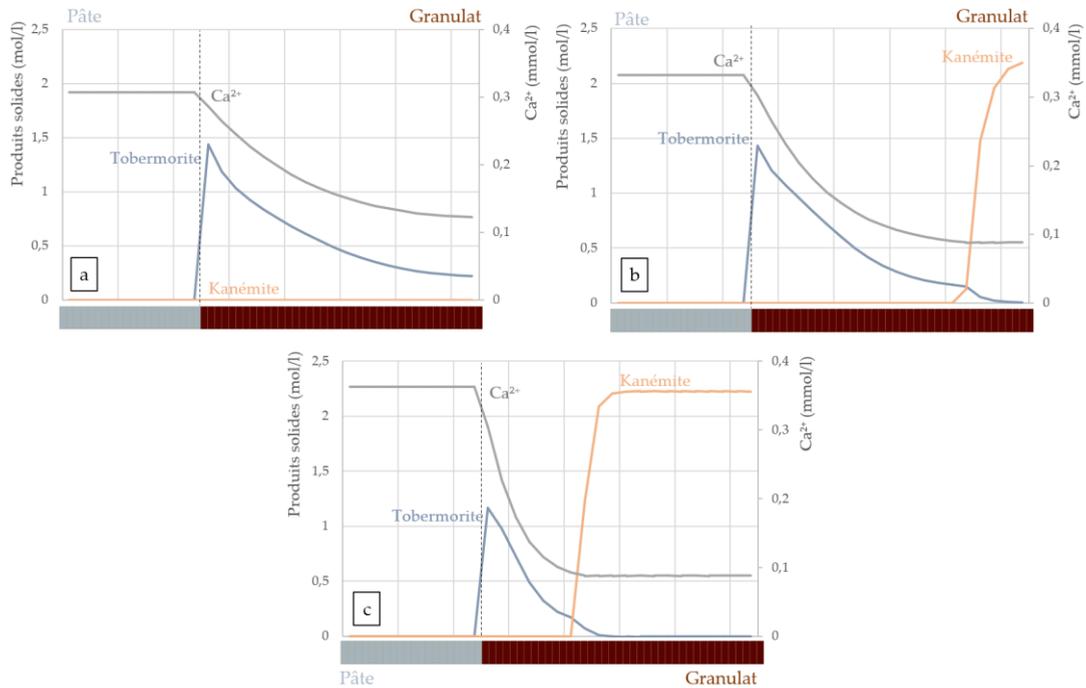


FIGURE 6. Profils de concentration des produits de réaction et du Ca^{2+} à 1 an pour un granulat de 0,5 mm de diamètre : a) $D_g = D_p/100$ (référence), b) $D_g = D_p/200$, c) $D_g = D_p/1000$

Pour une particule de petit diamètre, cela peut être expliqué de la manière suivante.

- Lorsque D_g est élevé, les espèces pénètrent rapidement vers le cœur du granulat et les concentrations en ions calcium et alcalins sont élevées dans l'ensemble du volume. Dans cette situation, une compétition entre les constantes de solubilité est engagée. Au final, la tobermorite prend le dessus et se forme, engendrant la consommation des ions ce qui bloque la formation de kanémite. Comme la cinétique de dissolution est plus lente que la cinétique de diffusion, les ions calcium diffusent très vite et la silice aqueuse issue de la dissolution sera consommée directement. Il en résulte que la formation de la tobermorite est pilotée par le front de diffusion du calcium, les courbes représentant leurs concentrations ayant des tendances identiques (Figure 6a).
- Lorsque D_g est faible, la différence entre les cinétiques de diffusion de dissolution est moins marquée, ce qui implique que la dissolution commence rapidement. Les concentrations des espèces aqueuses (ions calcium et silice) sont alors élevées à l'interface, permettant la formation de tobermorite. Les ions calcium sont consommés par cette

réaction et ne sont plus disponibles pour diffuser jusqu'au cœur du granulat. Les ions alcalins, non impliqués dans cette réaction, peuvent diffuser vers le cœur. La kanémite se formera dans le granulat tant que la concentration locale des ions calcium est faible.

CONCLUSION

La modélisation proposée prend en compte les étapes principales de la séquence de la RAS : diffusion des espèces aqueuses, dissolution de la silice réactive et précipitation de produits à partir des équilibres thermodynamiques. Les résultats du modèle montrent une bonne capacité à retrouver les observations de la littérature. L'analyse montre que l'interface pâte/granulat est le lieu préférentiel des interactions chimiques : les gradients de concentration provoquent la dissolution locale de la portlandite (les ions calcium se retrouvent disponibles en solution). De plus, la dissolution de la silice au contact des ions OH⁻ rend la silice aqueuse disponible en solution. Il en résulte une formation de C-S-H à l'interface côté pâte et côté granulat (tobermorite). Les deux produits sont similaires dans leurs compositions (calcium + silice) mais le produit précipitant à l'interface présente un ratio Ca/Si plus élevé que celui se formant du côté du granulat. La formation d'un produit de type gel d'alcali-silice (kanémite), qualifié d'expansif, au cœur du granulat est également observée. Une étude portant sur l'effet de la taille du granulat sur la réaction a été présentée. Il a été observé que la formation de kanémite est bloquée quand le diamètre est réduit, alors que la quantité de produit formé dans le granulat augmente proportionnellement avec le diamètre. Une seconde étude, portant sur le coefficient de diffusion dans les granulats, a montré que ralentir la diffusion dans la particule faisait augmenter la formation de kanémite. Ce phénomène est dû à la compétition entre les cinétiques de diffusion et de dissolution, influençant l'équilibre thermodynamique du système. Dans cette situation, la formation de tobermorite domine celle de la kanémite quand la concentration de calcium est élevée dans le granulat.

Ces résultats ont montré l'importance de la prise en compte, dans un modèle numérique, de la diffusion et de la dissolution sur l'avancement de la réaction. D'autre part, la prise en compte globale des granulats (paramètres physiques et minéralogiques) dans le béton semble primordiale pour la compréhension de la réaction (les gonflements et la fissuration s'initiant dans les granulats). Enfin, le modèle pourra servir de base pour l'évaluation de l'avancement d'une réaction (en fonction de ses différentes formes), pouvant être observée sur une structure réelle.

REFERENCES

Blanc, Ph., Lassin, A., Piantone, P., Azaroual, M., Jacquemet, N., Fabbri, A., & Gaucher, E.C. (2012). Thermoddem: A geochemical database focused on low temperature water/rock interactions and waste materials. *Applied Geochemistry*, 27(10), 2107-2116.

Brady, P.V., & Walther, J.V. (1990). Kinetics of quartz dissolution at low temperatures. *Chemical Geology*, 82, 253-264.

Cyr, M., Rivard, P., & Labrecque, F. (2009). Reduction of ASR-expansion using powders ground from various sources of reactive aggregates. *Cement and Concrete Composites*, 31, 438-446.

Fernandes, I., & Broekmans, M.A.T.M. (2013). Alkali-Silica Reactions : An Overview. Part I. *Metallogr. Microstruct. Anal.*, 2, 257-267.

Gao, X.X., Multon, S., Cyr, M., & Sellier, A. (2013). Alkali-silica reaction (ASR) expansion: Pessimism effect versus scale effect. *Cement and Concrete Research*, 44, 25–33.

Goto, S., & Roy, D.M. (1981). Diffusion of ions through hardened cement pastes. *Cement and Concrete Research*, 11, 751-757.

Guthrie, G.D., Carey, W. (2015). A thermodynamic and kinetic model for paste-aggregate interactions and the alkali-silica reaction. *Cement and Concrete Research*, 76, 107–120.

Hou, X., Struble, L.J., & Kirkpatrick, R.J. (2004). Formation of ASR gel and the roles of C-S-H and portlandite. *Cement and Concrete Research*, 34(9), 1683–1696.

Ichikawa, T., & Miura, M. (2007). Modified model of alkali-silica reaction. *Cement and Concrete Research*, 37(9), 1291–1297.

Kim, T., & Olek, J. (2014). Chemical Sequence and Kinetics of Alkali-Silica Reaction Part II. A Thermodynamic Model. *Journal of the American Ceramic Society*, 97(7), 2204–2212.

Leemann, A., Le Saout, G., Winnefeld, F., Rentsch, D., & Lothenbach, B. (2011). Alkali-Silica Reaction: the influence of Calcium on Silica Dissolution and the Formation of Reaction Products. *Journal of the American Ceramic Society*, 94(4), 1243–1249.

Morenon, P., Multon, S., Sellier, A. (2022). Modelling the mechanical behaviour of concrete subjected to Alkali-Silica Reaction (ASR) under multi-axial stress. *Cement and Concrete Research*, 158, 106823.

Qiu, X., Chen, J., Ye, G., & De Schutter, G. (2022). A 3D reactive transport model for simulation of the chemical reaction process of ASR at microscale. *Cement and Concrete Research*, 151, 106640.

Sellier, A., Bourdarot, E., Multon, S., Cyr, M., Grimal, E. (2009). Combination of structural monitoring and laboratory tests for assessment of Alkali-Aggregate Reaction swelling: application to gate structure dam. *Materials Journal*, 106 (3), 281-290.

Socié, A. (2019). Modélisation chimio-mécanique de la fissuration de matériaux cimentaires : vieillissement et tenue des enceintes de confinement des centrales nucléaires. *Phd thesis*, Université de Montpellier.

Socié, A., Dubois, F., Monerie, Y., Neji, M., & Perales, F. (2022). Simulation of internal and external sulfate attacks of concrete with a generic reactive transport-poromechanical model. *European Journal of Environmental and Civil Engineering*, 1-28.

Van Der Lee, J., De Windt, L., Lagneau, V., & Goblet, P. (2003). Module-Oriented Modeling of Reactive Transport with HYTEC. *Computers and Geosciences*, 29, 265–275.

Urhan, S. (1987). Alkali silica and pozzolanic reactions in concrete. Part 1: Interpretation of published results and a hypothesis concerning the mechanism. *Cement and Concrete Research*, 17(1), 141–152.

Suivi diélectrique de l'hydratation d'une pâte de ciment : une approche multidisciplinaire

Sofiane AIT HAMADOUCHE

Université Paris-Saclay, CentraleSupélec, ENS Paris-Saclay, CNRS, LMPS-Laboratoire de Mécanique Paris-Saclay, 91190, Gif-sur-Yvette, France

SATIE, UMR 8029, ENS Paris-Saclay, Université Paris-Saclay, Gif-sur-Yvette, France

RESUME Les mesures diélectriques sont un bon candidat pour le suivi non destructif de l'hydratation des matériaux cimentaires. Dans le cadre d'une application in-situ de ces méthodes il est nécessaire de : (i) comprendre les processus à l'origine de la réponse diélectrique de la matrice cimentaire lors de l'hydratation (ii) passer à l'échelle de l'application sur des structures en béton et (iii) développer des méthodes expérimentales adaptées. Ce travail se focalise sur le point (i), avec une approche multidisciplinaire combinant modélisation (en dynamique moléculaire, micromécanique et modélisation thermodynamique) et expérimentations (mesures diélectriques et calorimétriques sur pâte de ciment). Expérimentalement, le but est de corrélérer la permittivité diélectrique $\epsilon_r(f,t)$ au degré d'hydratation $\alpha(t)$. Plusieurs fréquences f sont testés entre 100 MHz et 3 GHz. Une corrélation plus directe est obtenue à partir de 600 MHz entre $\epsilon_r(t)$ et $\alpha(t)$. En termes de modélisation, le but est de prédire $\epsilon_r(\alpha)$. Une stratégie de modélisation multi-échelle est proposée où des résultats à l'échelle moléculaire sont utilisés comme données d'entrée dans une approche micromécanique tenant compte de la composition du matériau. Enfin, le modèle est comparé aux résultats expérimentaux à 800 MHz. Il donne des résultats satisfaisant avec 2,3% d'erreur moyenne par rapport aux données expérimentales.

Mots-clés Permittivité diélectrique, Hydratation, Calorimétrie, Modélisation multi-échelle

I. INTRODUCTION

Le béton est actuellement le matériau le plus utilisé dans le monde. Être capable de caractériser les matériaux cimentaires est nécessaire du point de vue scientifique, pour la compréhension de leur évolution et de leur vieillissement. Cela l'est aussi du point de vue applicatif : pour le contrôle qualité lors de la fabrication et l'évaluation de la santé des ouvrages. Dans ce contexte, le suivi des processus d'hydratation du ciment est particulièrement important, étant donné que le développement de la microstructure au jeune âge est responsable du développement des propriétés des matériaux cimentaires, telles que les propriétés mécaniques (De Schutter, 2002).

Plusieurs méthodes expérimentales peuvent être utilisées pour suivre l'hydratation, telles que la calorimétrie et la thermogravimétrie (Parrott et al., 1990). Dans la perspective d'application de terrain, ces dernières ont toutefois l'inconvénient d'être destructives et non utilisables sur site. Les mesures diélectriques constituent une alternative intéressante car elles permettent, dans certaines configurations, un suivi non invasif et non-destructif de l'hydratation des matériaux cimentaires (Van Beek and Milhorst., 2000). En outre, elles ont l'avantage d'être très sensibles à la teneur en eau

dans les géomatériaux (Berg et al., 1992), étant donné que l'eau liquide présente une permittivité diélectrique nettement plus élevée que les phases gazeuses et solides.

Dans cet article, nous proposons une approche de suivi d'hydratation combinant expérimentation et modélisation diélectrique ainsi que des mesures calorimétriques. Cette approche permet de confronter l'évolution expérimentale et théorique de la permittivité diélectrique ϵ_r d'une pâte de ciment en fonction de son degré d'hydratation α . Sur le plan expérimental, le suivi de l'hydratation d'une pâte de ciment a été réalisé sur 28 jours, au moyen de mesures de spectroscopie diélectriques (de 100 MHz à 3 GHz ou 6 GHz) et des mesures de calorimétrie isotherme. La combinaison de ces mesures a servi à étudier la corrélation entre la permittivité diélectrique $\epsilon_r(f,t)$ et le degré d'hydratation $\alpha(t)$. Sur le plan de la modélisation, une approche multi-échelle tenant compte de l'échelle moléculaire a été utilisée afin d'obtenir également l'évolution $\epsilon_r(\alpha)$ de la permittivité d'une pâte de ciment en fonction de son degré d'hydratation et de sa composition. Le modèle a ensuite été confronté aux résultats expérimentaux.

II. PREPARATION DU MATERIAU

Le ciment utilisé est de type CEM I 52,5 R CE CP2 NF. Il a été produit par Vicat à l'usine La Grave de Peille. La composition minéralogique du clinker est la suivante (d'après la fiche technique du fabricant) : $C_3S = 55,4 \%$, $C_2S = 18,6 \%$, $C_3A = 7,3 \%$ et $C_4AF = 10,7 \%$. La masse volumique est de $3,18 \text{ g/cm}^3$ et le diamètre médian des grains est de $11,6 \mu\text{m}$.

La pâte de ciment a un rapport $E/C = 0,4$. Le malaxage a été réalisé avec un malaxeur à mortier selon la norme EN 196-3. Les échantillons utilisés dans les mesures calorimétriques et diélectriques sont tous issus du même mélange de pâte de ciment.

III. MESURES CALORIMETRIQUES

III.A. Calorimétrie isotherme

Les mesures calorimétriques ont été effectuées avec un calorimètre isotherme TAM Air. Trois échantillons issus de la pâte de ciment préparée (voir section II) ont fait l'objet d'un suivi durant 28 jours à une température de 23°C .

III.B. Degré d'hydratation

Une mesure de calorimétrie isotherme, permet de déterminer le degré d'avancement de l'hydratation $\xi(t)$ à l'instant t à partir du dégagement de chaleur cumulé $q(t)$ [J/g] :

$$\xi(t) = \frac{q(t)}{q_{\max}} \quad 1$$

où q_{\max} est le dégagement de chaleur à la fin de l'essai. Cette valeur est conventionnellement déterminée à 28 jours pour un ciment Portland et est relié à $\alpha = \alpha_{\max}$ et $\xi = 1$ (Lacarrière et al., 2019). Sachant qu'à 28 jours la réaction d'hydratation n'est pas encore finie, le degré d'hydratation $\alpha(t)$ peut être calculé de la manière suivante (Olivier, 2016) :

$$\alpha(t) = \alpha_u \times \xi(t) \quad 2$$

où α_u est le degré d'hydratation ultime au-delà duquel il n'y a plus de place dans la matrice cimentaire pour la formation de nouveaux hydrates (Van Breugel, 1997). Ce paramètre a été estimé avec le modèle de (Waller, 1999) :

$$\alpha_u = 1 - e^{-3,3\frac{E}{C}} = 0,73 \quad 3$$

La Fig. 1 représente l'évolution de $\alpha(t)$ calculé à partir de nos données expérimentales en utilisant le modèle de (Waller, 1999). Les résultats étant assez proches, seule l'échantillon 1 sera considéré pour l'étude de corrélation entre la réponse diélectrique et $\alpha(t)$.

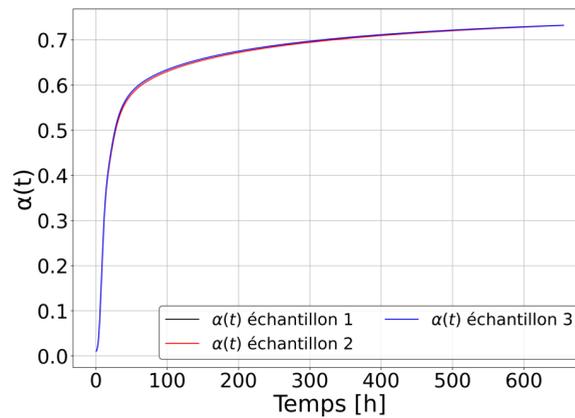


FIGURE 1. Degré d'hydratation calculé à partir des mesures de calorimétrie isotherme en considérant le modèle Waller pour le calcul de α_u

IV. MESURES DIELECTRIQUES

IV.A. Permittivité diélectrique

La permittivité diélectrique représente la quantité d'énergie électrique pouvant être stockée par un matériau, elle est exprimée par rapport à la permittivité du vide ϵ_0 sous le nom de permittivité relative $\epsilon_r(f) = \epsilon(f)/\epsilon_0$ (Chen, 2004). La permittivité relative combine les effets de polarisation et de pertes diélectriques, c'est une grandeur complexe qui dépend de la fréquence f :

$$\epsilon_r^*(f) = \epsilon_r'(f) - j\epsilon_r''(f) \quad 4$$

où la partie réelle $\epsilon_r'(f)$ représente les effets du stockage de l'énergie électromagnétique dans le matériau dus aux différents phénomènes de polarisation qui s'y produisent, la partie imaginaire $\epsilon_r''(f)$ représente les pertes diélectriques qui se traduisent par des pertes électromagnétiques (Quan et al., 2017).

Il existe plusieurs types de polarisations en fonction de la fréquence : (i) interfaciale (ii) dipolaire, (iii) ionique et (iv) électronique. Les polarisations électroniques et ioniques se produisent dans des fréquences de l'ordre du THz. La polarisation interfaciale intervient à des fréquences $f < 50$ MHz

(Metaxas and Meredith, 1993). La polarisation dipolaire est présente à des fréquences $f < 10$ GHz (Schwing, 2016). La molécule d'eau se comporte naturellement comme un dipôle, en l'absence d'un champ électromagnétique (EM), les molécules d'eau sont orientées d'une manière aléatoire. Suite à l'application d'un champ EM, elles se polarisent car les dipôles s'alignent dans la direction du champ (Schwing, 2016). Le temps que mettent les molécules à se réorienter aléatoirement quand le champ EM n'est plus appliqué est le temps de relaxation τ_{relax} , qui est déterminé via la partie imaginaire $\varepsilon_r''(f)$.

Dans les géomatériaux, il y a un fort contraste entre la permittivité de l'eau et celle des phases solides et gazeuses. La permittivité de l'eau dépend de la fréquence et de la température. La partie réelle de sa permittivité statique $\varepsilon_r'(0)$ est égale à 80 à 20°C (Gregory and Clarke, 2005). Les permittivités des grains solides et de l'air ne dépendent pas de la fréquence ni de la température et n'ont pas de partie imaginaire : $\varepsilon_r(\text{air}) = 1$ et $3 < \varepsilon_r(\text{grain}) < 9$. De ce fait, l'eau est la phase qui contribue le plus à la réponse diélectrique des géomatériaux.

IV.B. Spectroscopie diélectrique RF

La méthode de spectroscopie RF adoptée consiste à mesurer le coefficient de réflexion $S_{11}(f)$ de l'onde électromagnétique à l'interface d'une sonde à effet de bout et du matériau sous test (Material Under Test – MUT) au moyen d'un analyseur de réseau vectoriel (Vector Network Analyser-VNA) (Fig. 2(A)). La sonde est constituée : (i) d'un connecteur de type N (avec une ouverture de 8 mm), relié à un plan de masse circulaire en cuivre avec un diamètre de 40 mm et (ii) d'un porte échantillon (Fig. 2(B)).

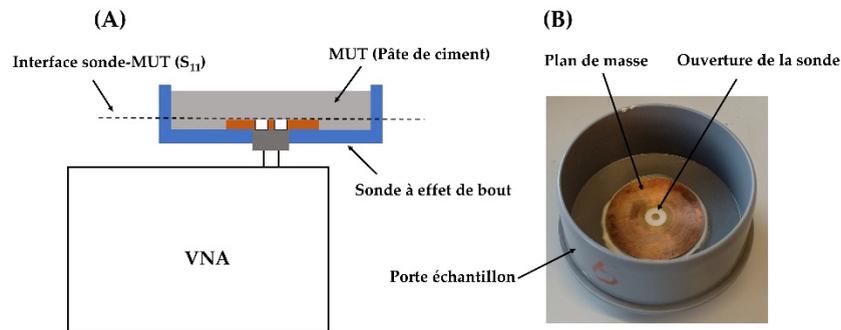


FIGURE 2. Banc de mesure expérimentale constitué d'une sonde à effet de bout reliée à un VNA

Le coefficient de réflexion mesuré à l'interface sonde-MUT dépend de la permittivité diélectrique de ce dernier. Une relation bilinéaire entre le $S_{11}(f)$ mesuré par le VNA et la permittivité relative $\varepsilon_r^*(f)$ du MUT est dérivée des travaux de (Marsland and Evans, 1987) :

$$\varepsilon_r^*(f) = \frac{c_1(f) \cdot S_{11}(f) - c_2(f)}{c_3(f) - S_{11}(f)} \quad 5$$

où $c_1(f)$, $c_2(f)$ et $c_3(f)$ sont des paramètres de calibration de la sonde, ils sont déterminés en réalisant des mesures sur des matériaux dont la permittivité est connue. Dans ce travail, la sonde a été

calibrée en faisant des mesures sur : un circuit ouvert (air), un court-circuit (laque d'argent) et de l'éthanol.

Afin d'étudier la répétabilité des mesures et la variabilité des caractéristiques des échantillons de pâte de ciment, nous avons choisi de mesurer simultanément les caractéristiques diélectriques de 6 échantillons issus d'un même mélange de pâte de ciment. Six bancs de mesures tels que représenté sur la Fig.2(A) ont été mis en place, dont 5 reliant une sonde à un NanoVNA de type SAA-2N V2 et un reliant une sonde à un VNA de type Anristu 2026C. Les mesures avec les NanoVNAs et le VNA ont été effectuées respectivement sur les bandes [100 MHz – 3 GHz] et [100 MHz – 6 GHz], compte tenu des limites des appareils. L'utilisation de deux types de VNA se justifie par le fait que les NanoVNAs ont un coût beaucoup plus faible que celui du VNA, permettant ainsi d'en utiliser plusieurs pour des mesures en simultanées.

IV.C. Suivi diélectrique de l'hydratation

Les mesures de spectroscopie diélectriques ont été réalisées sur 28 jours. Le banc de mesure a été placé dans une enceinte climatique à 23°C. Les échantillons de pâte de ciment ont été couverts avec du cellophane afin d'éviter le séchage.

La Fig. 3 montre l'évolution de la partie réelle de la permittivité diélectrique en fonction du temps $Re(\epsilon_r^*(t))$ pour plusieurs fréquences. Les lignes continues représentent la moyenne des mesures données par les différentes sondes. Les lignes discontinues représentent la moyenne \pm l'écart type.

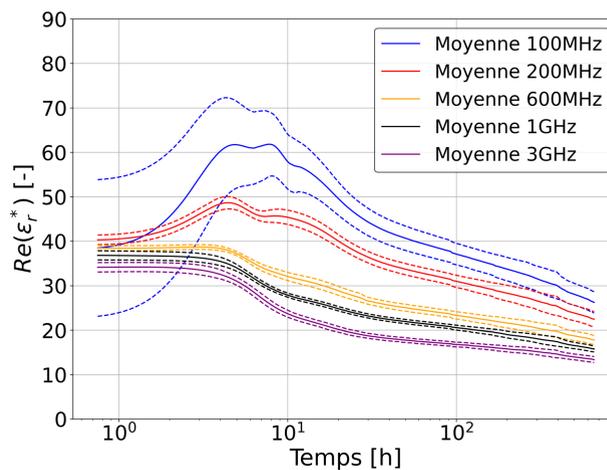


FIGURE 3. Evolution de la permittivité relative en fonction du temps.

Dans les basses fréquences (100 MHz et 200 MHz), la permittivité augmente pendant les 10 premières heures de mesure puis diminue. Ce phénomène serait dû à des effets de polarisation qui se produisent aux interfaces solide-liquide (polarisation interfaciale) lors de la formation des hydrates (Van Beek and Milhorst., 2000). Cependant, la polarisation d'interface intervient en dessous de 50 MHz (voir section IV.A). Etant donné que dans cette étude les mesures sont faites à partir de 100 MHz, la polarisation d'interface ne pourrait pas être la cause, des recherches

supplémentaires en exploitant la partie imaginaire seront menées afin de comprendre ce comportement.

Entre 600 MHz et 3 GHz la permittivité diminue au fur et à mesure que la quantité d'eau libre diminue suite à la réaction d'hydratation. A ces fréquences la mesure est sensible à la dynamique de l'eau libre dans les pores capillaires.

Les mesures diélectriques et calorimétriques de suivi de l'hydratation ont été réalisées dans une optique d'analyse mécanistique consistant à relier les variations de permittivité diélectrique à celle du degré d'hydratation de la pâte de ciment. Dans cette optique, il convient de n'utiliser que les mesures diélectriques faites au-delà de 600 MHz.

V. MODELISATION

Le modèle mécanistique, multi-échelle utilisé est basé sur les formalismes de Bruggeman et auto-cohérent généralisé. La loi de Bruggeman (Bruggeman, 1935) s'applique lorsque les phases d'un mélange ont des tailles équivalentes, aucune phase ne sert d'hôte aux autres, ce qui est représentatif de la pâte de ciment étudiée. L'estimation de $\varepsilon'_r(\alpha)$ à une fréquence fixée du MUT est faite via l'équation suivante :

$$\sum_{i=1}^N v_i \frac{\varepsilon'_{r,i} - \varepsilon'_{r,MUT}}{\varepsilon'_{r,i} + 2\varepsilon'_{r,MUT}} = 0 \quad 6$$

où N correspond au nombre de phases dans la pâte de ciment, i l'indice relatif à une phase donnée, v_i est sa fraction volumique et $\varepsilon'_{r,i}$ la partie réelle de sa permittivité intrinsèque. Dans la suite de ce travail, le modèle sera comparé aux résultats expérimentaux pour une fréquence de 800 MHz. Notons que le choix de la fréquence est arbitraire et que le but sera d'exploiter également les autres fréquences entre 600 MHz et 3 GHz.

V.A. Fractions volumiques

Deux méthodes ont été considérées pour le calcul des fractions volumiques des phases : (i) Le modèle de Königsberger (Königsberger et al., 2016) et (ii) une simulation thermodynamique donnant l'assemblage des phases avec cemGEMS (Kulik et al., 2021). Le modèle de Königsberger permet de calculer les fractions volumiques des phases en fonction du degré d'hydratation, tandis que cemGEMS est un outil de simulation thermodynamique de l'hydratation des matériaux cimentaires, qui permet d'obtenir également les fractions volumiques des phases mais de façon plus détaillée et en fonction de la composition du ciment.

La Fig. 4 montre l'évolution des fractions volumiques en fonction du degré d'hydratation avec le modèle de Königsberger (Fig. 4(A)) et la simulation cemGEMS (Fig. 4(B)).

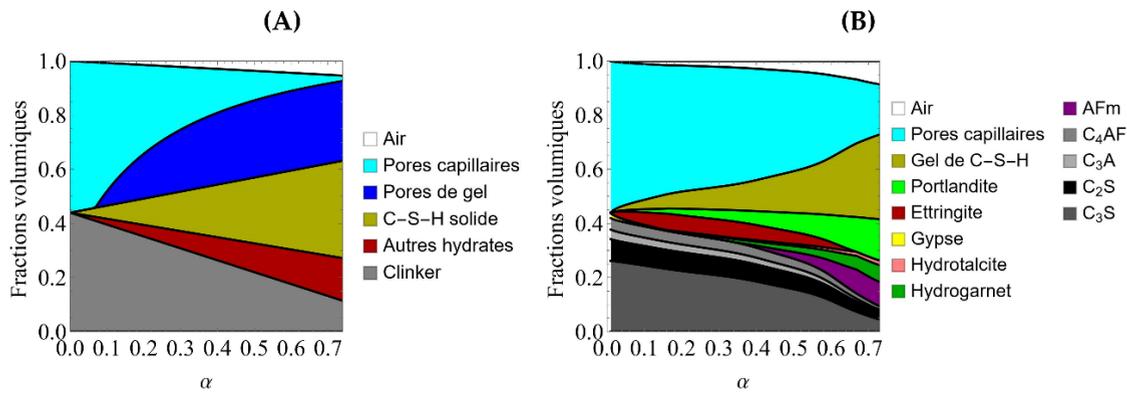


FIGURE 4. Fractions volumiques des phases en fonction de α : (A) Le Modèle de Königsberger (Königsberger et al., 2016) et (B) Simulations avec cemGEMS (Kulik et al., 2021)

V.B. Permittivité intrinsèque des phases

L'approche multi-échelle adoptée nécessite la connaissance des permittivités intrinsèques des phases constituantes. Pour cela, la permittivité complexe du gel de C-S-H a été estimée à 800 MHz. Des simulations en dynamique moléculaire (DM) ont permis de calculer la réponse diélectrique des particules solides de C-S-H ainsi que celle des porosités de gel (pour des tailles de pores de 2, 3, 4 et 10 nm). Ces résultats ont servi de données d'entrée dans un modèle d'homogénéisation qui a permis d'estimer la réponse diélectrique du gel de C-S-H.

La table 1 illustre les valeurs de permittivité des phases considérées pour une fréquence de 800 MHz (Guihard et al., 2020; Kaatze, 1989). Notons que les permittivités de l'ettringite, AFm, gypse, hydrocalcite et hydrogarnet ne sont connues et que la valeur de permittivité du clinker leur a été attribuée.

TABLEAU 1. Permittivité diélectrique des phases considérées pour une fréquence de 800 MHz

Phases	ϵ'_r	Références
Air	1	-
Eau capillaire	$80,04 \pm 0,2$	(Kaatze, 1989)
Eau de gel (pore 10 nm)	68,24	
C-S-H solide microporeux	5,30	
Gel de C-S-H (pore 10 nm)	10,47	
Portlandite	$7,40 \pm 0,3$	(Guihard et al., 2020)
Ciment (CEM 1 52.5 N CE CP2 NF)	$9 \pm 0,3$	(Guihard et al., 2020)
Autres phases	9	-

V.C. Confrontation mesures/modèles

La Fig. 5 illustre la comparaison à 800 MHz de $\varepsilon'_r(\alpha)$ expérimental de la pâte de ciment avec $\varepsilon'_r(\alpha)$ modélisé. Les valeurs expérimentales sont représentées en termes de moyenne et \pm l'écart type. Deux configurations ont été testées afin de modéliser $\varepsilon'_r(\alpha)$ avec l'équation 6, la différence entre les 2 configurations est le calcul des fractions volumiques des phases. Dans la configuration 1, elles sont calculées en utilisant le modèle de Königsberger. Dans la configuration 2, elles sont calculées en utilisant cemGEMS. Les valeurs des permittivités intrinsèques des phases sont les mêmes pour les 2 configurations.

On constate que les 2 configurations permettent de prédire la valeur de ε'_r pour une valeur de α proche de 0 (mélange ne contenant que du clinker et de l'eau). Cela montre que la permittivité relative du clinker est bien connue. De plus, les deux configurations sont qualitativement satisfaisant avec une diminution de la permittivité en fonction de α , mais calculer les fractions volumiques avec cemGEMS permet de mieux capturer l'allure des données expérimentales. Quantitativement les configurations en utilisant Königsberger et cemGEMS présentent des erreurs relatives par rapport à la moyenne expérimentale de 8,6 % et 2,3 % respectivement. La configuration qui prend en compte la composition du ciment en utilisant cemGEMS donne donc de meilleurs résultats.

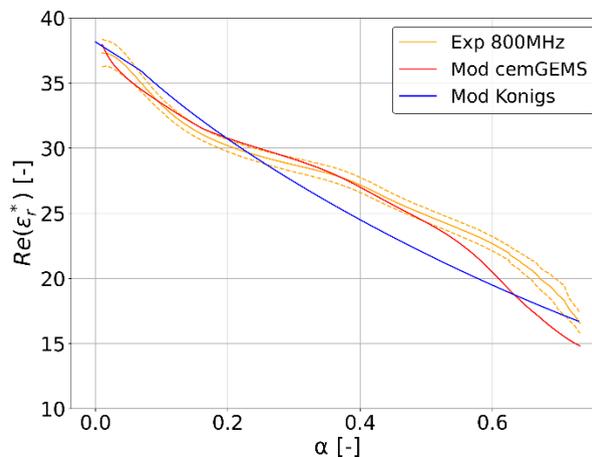


FIGURE 5. Comparaison à 800 MHz entre $\varepsilon'_r(\alpha)$ expérimental de la pâte de ciment et $\varepsilon'_r(\alpha)$ modélisé

IV. CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Cette étude propose une approche multidisciplinaire permettant la caractérisation diélectrique de la matrice cimentaire lors de l'hydratation et de relier sa permittivité à son degré d'hydratation. Cette approche est basée sur des travaux expérimentaux et de modélisation. Un suivi de l'hydratation d'une pâte de ciment avec un rapport $E/C = 0,4$ a été réalisé pendant 28 jours. Pour cela des mesures diélectriques et de calorimétrie ont été lancés en parallèle. Cela permet de tracer la réponse diélectrique en fonction du degré d'hydratation $\varepsilon'_r(\alpha)$ pour différentes fréquences.

En suivant l'évolution de la réponse diélectrique en fonction du temps pour plusieurs fréquences, on remarque qu'à 100 MHz et 200 MHz la permittivité augmente puis diminue. Les mécanismes à

L'origine de ce phénomène ont été proposées dans la littérature mais n'ont toujours pas été validés. A partir de partir de 600 MHz, la réponse diélectrique est sensible à la polarisation de l'eau libre. Une diminution de $\varepsilon'_r(t)$ est alors observée suite à la diminution de la quantité d'eau libre qui réagit avec le ciment. La même tendance est observée pour $\varepsilon'_r(\alpha)$ à ces fréquences, étant donné que plus α augmente, moins il y a d'eau libre dans la matrice cimentaire.

Le but étant d'obtenir α à partir des mesures diélectriques, un schéma multi-échelle tenant compte de la dynamique de l'eau à l'échelle moléculaire est adopté afin de modéliser $\varepsilon'_r(\alpha)$. Ce dernier nécessite les fractions volumiques des constituants et leur permittivités intrinsèques comme données d'entrées. La permittivité du C-S-H est estimée par simulation en dynamique moléculaire, alors que les permittivités des autres phases sont extraites de la littérature. Les fractions volumiques sont calculées avec 2 méthodes, le modèle de Konigsberger et les simulations cemGEMS. Le modèle en utilisant cemGEMS capture l'allure des données expérimentales à 800 MHz d'une manière satisfaisante et avec une erreur relative de 2,3 %, montrant que α peut être obtenu uniquement à partir de mesures diélectriques. De plus, la prise en compte de la composition (via le modèle thermodynamique de cemGEMS) et les permittivités intrinsèques déterminés à une échelle pertinente (par simulation en DM) permettent de réduire l'empirisme dans l'interprétation des résultats diélectriques et donc de prédire l'évolution du degré d'hydratation pour différentes compositions cimentaires.

En termes de perspectives, il est envisagé de : (i) optimiser quantitativement le modèle pour les fréquences de 600 MHz à 3 GHz, (ii) faire des mesures en dessous de 50 MHz et comprendre les phénomènes de polarisation interfacial qui s'y produisent, ce qui pourrait permettre d'obtenir des corrélations avec la microstructure (porosité, perméabilité), (iii) exploitation de la partie imaginaire et enfin (iv) investiguer l'effet thermo-diélectrique dans les matériaux cimentaires qui pourrait être la cause de l'augmentation/diminution de la permittivité à basses fréquences.

REFERENCES

Berg, A., Niklasson, G.A., Brantervik, K., Hedberg, B., Nilsson, L.O., 1992. Dielectric properties of cement mortar as a function of water content. *J. Appl. Phys.* 71, 5897–5903. <https://doi.org/10.1063/1.350488>

Bruggeman, D. a. G., 1935. Berechnung verschiedener physikalischer Konstanten von heterogenen Substanzen. I. Dielektrizitätskonstanten und Leitfähigkeiten der Mischkörper aus isotropen Substanzen. *Ann. Phys.* 416, 636–664. <https://doi.org/10.1002/andp.19354160705>

Chen, L. (Ed.), 2004. *Microwave electronics: measurement and materials characterisation*. John Wiley, Chichester.

De Schutter, G., 2002. Influence of hydration reaction on engineering properties of hardening concrete. *Mater. Struct.* 35, 447–452. <https://doi.org/10.1007/BF02483131>

Gregory, A.P., Clarke, R.N., 2005. Traceable measurements of the static permittivity of dielectric reference liquids over the temperature range 5–50 °C. *Meas. Sci. Technol.* 16, 1506. <https://doi.org/10.1088/0957-0233/16/7/013>

Guihard, V., Patapy, C., Sanahuja, J., Balayssac, J.-P., Taillade, F., Steck, B., 2020. Effective medium theories in electromagnetism for the prediction of water content in cement pastes. *Int. J. Eng. Sci.* 150, 103273. <https://doi.org/10.1016/j.ijengsci.2020.103273>

Kaatze, U., 1989. Complex permittivity of water as a function of frequency and temperature. *J. Chem. Eng. Data* 34, 371–374. <https://doi.org/10.1021/je00058a001>

Königsberger, M., Hellmich, C., Pichler, B., 2016. Densification of C-S-H is mainly driven by available precipitation space, as quantified through an analytical cement hydration model based on NMR data. *Cem. Concr. Res.* 88, 170–183. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2016.04.006>

Kulik, D.A., Winnefeld, F., Kulik, A., Miron, G.D., Lothenbach, B., 2021. CemGEMS – an easy-to-use web application for thermodynamic modelling of cementitious materials. *RILEM Tech. Lett.* 6, 36–52. <https://doi.org/10.21809/rilemtechlett.2021.140>

Lacarrière, L., Knoppik, A., Leal Da Silva, W.R., Honorio, T., Šmilauer, V., Asamoto, S., Fairbairn, E.M.R., 2019. Hydration and Heat Development, in: Fairbairn, E.M.R., Azenha, M. (Eds.), *RILEM State-of-the-Art Reports*. Springer International Publishing, Cham, pp. 13–46. https://doi.org/10.1007/978-3-319-76617-1_2

Marsland, T.P., Evans, S., 1987. Dielectric measurements with an open-ended coaxial probe. *IEE Proc. H Microw. Antennas Propag.* 134, 341–349. <https://doi.org/10.1049/ip-h-2.1987.0068>

Metaxas, A.C., Meredith, R.J., 1993. *Industrial microwave heating*, IEEE Press power systems engineering series. P. Peregrinus on behalf of the Institution of Electrical Engineers, London, UK.

Olivier, K., 2016. *Étude expérimentale et modélisation de l'auto-cicatrisation des matériaux cimentaires avec additions minérales* (These de doctorat). Université Paris-Saclay (ComUE).

Parrott, L.J., Geiker, M., Gutteridge, W.A., Killoh, D., 1990. Monitoring Portland cement hydration: Comparison of methods. *Cem. Concr. Res.* 20, 919–926. [https://doi.org/10.1016/0008-8846\(90\)90054-2](https://doi.org/10.1016/0008-8846(90)90054-2)

Quan, B., Liang, X., Ji, G., Cheng, Y., Liu, W., Ma, J., Zhang, Y., Li, D., Xu, G., 2017. Dielectric polarization in electromagnetic wave absorption: Review and perspective. *J. Alloys Compd.* 728, 1065–1075. <https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2017.09.082>

Schwing, M., 2016. *Mechanical, hydraulic, and dielectric characterisation of fine-grained soils during densification* (PhD Thesis). The University of Queensland. <https://doi.org/10.14264/uql.2016.94>

Van Beek, A., Milhorst, M.A., 2000. Dielectric measurements to characterize the microstructural changes of young concrete. *HERON* Vol 44 1 2000.

Van Breugel, K., 1997. *Simulation of hydration and formation of structure in hardening cement-based materials*. Delft University Press.

Waller, V., 1999. *Relations entre composition des betons, exothermie en cours de prise et resistance en compression* (phdthesis). Ecole des Ponts.

Approche couplée nanoindentation-imagerie pour la quantification des phases et la prédiction du fluage des matériaux cimentaires

Imane BEKRINE

Nantes Université, Ecole Centrale Nantes, CNRS, Institut de Recherche en Génie Civil et Mécanique (GeM), UMR 6183, F-44000 Nantes, France

RESUME La nanoindentation statistique se présente comme une technique puissante et rapide pour l'étude des propriétés micromécaniques des pâtes cimentaires à l'échelle micrométrique. Cependant, la classification des phases constituant la pâte, généralement effectuée par le biais d'algorithmes numériques sur la base d'informations mécaniques obtenues, peut donner lieu à des classes composées de mélanges de phases ayant des propriétés mécaniques proches. Dans cette étude, une nouvelle approche de déconvolution appelée Auto-NI-MEB, couplant les résultats de nanoindentation NI aux analyses des images de microscope électronique à balayage MEB des zones indentées, est développée. Ses résultats sont ensuite comparés à ceux de la déconvolution statistique classique du modèle de mélange gaussien (GMM). Les avantages de l'approche Auto-NI-MEB par rapport à GMM sont présentés, notamment à travers l'identification de certaines phases mineures, la réduction d'erreur sur le calcul du module de fluage des phases, et l'évaluation plus précise de la teneur en portlandite validée par des mesures thermogravimétriques. L'approche a été enfin utilisée afin de prédire les propriétés viscoélastiques à l'échelle des pâtes à travers un modèle d'homogénéisation analytique, ouvrant ainsi la voie vers une meilleure prédiction du fluage notamment des bétons bas carbone.

Mots-clefs matériaux cimentaires, nanoindentation, MEB, homogénéisation, fluage

I. INTRODUCTION

Les propriétés différées des bétons (retrait, fluage, durabilité) sont principalement conditionnées par la qualité de leur phase liante. Celle-ci constitue un milieu fortement hétérogène et complexe à l'échelle microscopique, et une caractérisation fine des propriétés de ses différentes phases est nécessaire pour mieux comprendre le comportement macroscopique des bétons (Scrivener and Kirkpatrick, 2008). La nanoindentation statistique se présente comme une technique utile pour caractériser ces propriétés élastiques et viscoélastiques à travers l'application de faibles charges (1 - 10 mN) conduisant à des centaines de nanomètres de profondeur de pénétration (Constantinides et al., 2006). L'attribution des phases et la détermination de leurs propriétés et fractions volumiques reposent sur les algorithmes de déconvolution, comme l'algorithme d'estimation des moindres carrés (LSE) sur la fonction de densité de probabilité/la distribution cumulée des données de nanoindentation, ou encore le modèle de mélange gaussien (GMM) (Krakowiak et al., 2015). Cette dernière demeure la plus utilisée dans les dernières années et la plus

adaptée à l'étude des matériaux à base de ciment (Zhang et al., 2023), mais elle présente certaines limites. D'une part, GMM ne permet pas la détection des phases en petites quantités dans une pâte en tant que classes individuelles. Elles sont plutôt mélangées dans une classe unique avec d'autres phases en plus grande quantité et avec des propriétés similaires/proches, ce qui est le cas de la portlandite dans les matériaux à faible rapport eau/ciment (E/C) (Wei et al., 2016). D'autre part, l'utilisation des fractions volumiques issues directement du processus de déconvolution dans les modèles d'homogénéisation s'avère limitée, et la réalisation d'autres essais pour la quantification des phases est nécessaire (notamment l'analyse thermogravimétrique pour la portlandite et le microscope électronique à balayage pour la fraction de particules anhydres) (Li et al., 2022).

La combinaison des mesures par nanoindentation et imagerie par microscope électronique à balayage (MEB) a permis certaines avancées dans l'étude des matériaux cimentaires, notamment pour l'observation des indents et l'attribution des phases avec des analyses chimiques additionnelles (Wilson et al., 2017; Wei, 2018), et l'amélioration de la prédiction des propriétés élastiques (Hu and Li, 2014).

Dans cette étude, nous nous proposons d'utiliser ce couplage d'une façon automatisée, qu'on appellera Auto-NI-MEB, afin de quantifier les phases dans des systèmes cimentaires à différents rapports eau/liant (E/L) et une pâte incorporant 60 % de laitier et de réduire l'incertitude sur le module de fluage des phases. Enfin, nous utiliserons les résultats du couplage afin de mieux prédire le fluage à l'échelle des pâtes comparés à ceux de GMM. Les prédictions seront ensuite validées par les mesures expérimentales de microindentation.

II. MATERIAUX ET METHODES

A. Matériaux et formulations

Cinq pâtes font l'objet de la présente étude, fabriquées à base de ciment Portland de type CEM I 52,5 N et de laitier de haut fourneau (GGBFS), dont les compositions chimiques sont données dans le **TABLEAU 1**. Leurs masses volumiques respectives sont 3,15 g/cm³ et 2,90 g/cm³, et leurs surfaces spécifiques respectives sont 3979 cm²/g et 4450 cm²/g. Quatre pâtes sont constituées de ciment Portland uniquement avec différents rapports E/C 0,23 ; 0,30 ; 0,35 et 0,40 et sont nommées de la façon OPC-x,xx où x,xx est le rapport E/C. La cinquième pâte a un rapport E/L = 0,30, avec 60 % de substitution volumique du ciment par du laitier et est nommée PS₆₀. Le décoffrage de ces pâtes est effectué après 24 heures du coulage, et elles sont conservées dans l'eau saturée en chaux jusqu'à l'âge de 28 jours.

TABLEAU 1. Composition chimique du ciment et du laitier de haut fourneau employés (% massique).

Matériau	SiO ₂	Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	CaO	MgO	SO ₃	K ₂ O	Na ₂ O	Cl ⁻	S ²⁻	LOI
CEM I	20,4	4,4	2,3	64,0	3,9	2,9	0,66	0,15	0,02	<0,02	1,2
GGBFS	37,7	10,2	0,6	43,8	6,4	0,1	0,28	0,21	0,02	0,7	-

B. Méthodes et techniques expérimentales

La porosité des pâtes est caractérisée en utilisant un porosimètre à mercure Micromeritics AutoPore IV permettant d'accéder à des pores de diamètre de 3 nm.

Un thermogravimètre NETZSCH est utilisé afin de déterminer la teneur en portlandite dans les mélanges étudiés. Les échantillons broyés à 80 μm sont sujets à un profil de température allant de 20 °C jusqu'à 1000 °C avec une vitesse de 10 °C/min. La teneur en portlandite massique est déterminée par la mesure de la perte de masse entre 400 °C et 550 °C par la méthode de Marsh (Marsh and Day, 1988), et puis convertie en volume en utilisant les densités respectives des pâtes.

Avant de réaliser des essais de nanoindentation, microindentation et des observations au MEB, la surface des échantillons est bien polie afin de minimiser les défauts. La rugosité finale des échantillons mesurée sur une surface de 50 \times 50 μm^2 est inférieure à 50 nm.

Les essais de nanoindentation sont réalisés par le biais d'un nanoindenteur Hysitron TS 77 Select de Bruker, équipé d'une pointe Berkovich. Une grille de 31 \times 21 indents couvrant une surface de 300 \times 200 μm^2 a été réalisée sur chaque échantillon sous un mode de contrôle de charge, d'une charge maximale $P_{max} = 2 \text{ mN}$ maintenue constante pendant 60 s. Chaque indent k permet d'obtenir un triplet de propriétés micromécaniques (E_k , H_k , C_k) qui représentent respectivement le module élastique, la dureté et le module de fluage de la phase indentée. Dans cette étude, nous nous intéressons au module de fluage C [GPa] qui est proportionnel à la variation de la dérivée de la complaisance de fluage $L(t)$ [GPa⁻¹] :

$$\dot{L}(t) = 2 \sqrt{\frac{A_c}{\pi}} \frac{\dot{h}(t)}{P_{max}} = \frac{1}{Ct} \quad (1)$$

Avec A_c [μm^2] l'aire de contact entre la pointe du nanoindenteur et l'échantillon, déterminée par l'approche d'Oliver et Pharr (Oliver and Pharr, 1992), et $h(t)$ [μm] est la profondeur de pénétration pendant la phase de maintien de charge.

Etant donné que le fluage des matériaux cimentaires est bien représenté par une évolution temporelle logarithmique à cette échelle, C est obtenu par ajustement de la profondeur de pénétration pendant la phase de maintien de charge qui peut s'écrire sous la forme $h(t) = x_1 \ln(x_2 t + 1)$, avec x_1 et x_2 les deux paramètres d'ajustement. Enfin, C est obtenu par la formule :

$$C = \frac{P_{max}}{2x_1} \sqrt{\frac{\pi}{A_c}} \quad (2)$$

Avec une charge maximale plus importante de 2 N, le module de fluage des pâtes a été déterminé en utilisant un microindenteur Fischerscope HM2000 moyennant les valeurs mesurées sur 25 indents.

Des images des zones indentées sont capturées à l'aide d'un MEB JEOL JSM-6060LA en mode d'électrons rétrodiffusés sous une tension d'accélération de 20 kV et une distance de travail de 5 mm. En utilisant un agrandissement $\times 3000$, 100 images de dimensions 1280 \times 960 pixels sont recollées afin de construire l'image de la zone indentée, donnant accès à une résolution de 33,33 nm/pixel suffisante pour l'analyse des images. Un exemple d'image MEB d'une partie de la zone indentée (16 \times 11 indents) est présenté dans la [FIGURE 1](#), où les indents sont encadrés en bleu, avec la distribution des propriétés micromécaniques obtenues par nanoindentation de la même pâte.

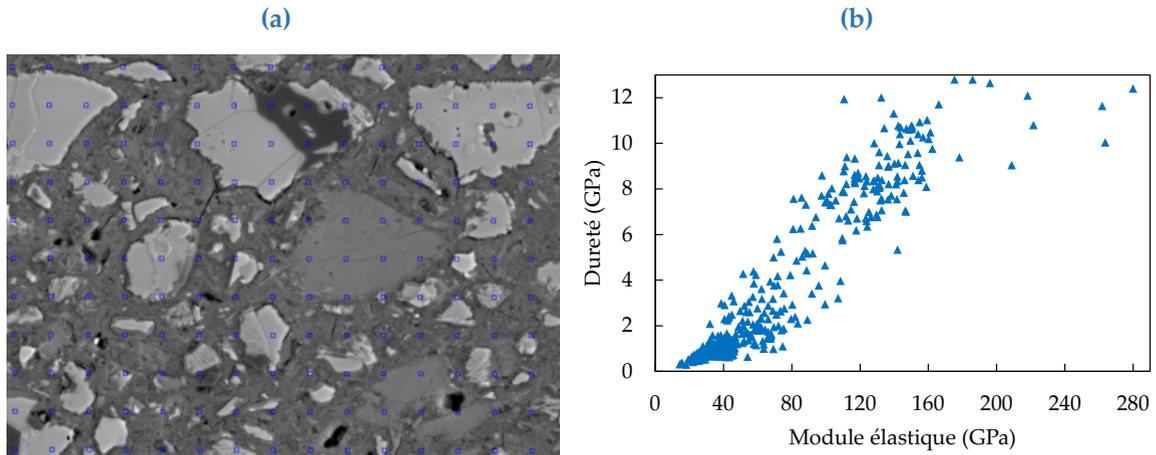


FIGURE 1. (a) Image MEB d'une zone indentée où les indents sont encadrés en bleu, (b) distribution des propriétés micromécaniques du même échantillon dans le plan (E, H).

C. L'approche Auto-NI-MEB pour la classification des phases

Afin d'attribuer les mesures micromécaniques aux différentes phases au sein des matériaux étudiés, nous avons effectué un couplage entre les attributions des phases basées sur l'algorithme de classification non supervisé GMM d'une part et l'analyse du niveau de gris des images d'autre part. Le fondement mathématique ainsi que le processus d'attribution des phases par GMM sont détaillés dans (Bekrine et al., 2023).

En ce qui concerne l'attribution des phases sur la base d'images MEB, des seuils ont été définis pour différencier les CSH, la portlandite et les particules non hydratées sur la base de l'analyse des niveaux de gris de l'image entière, en suivant les méthodes proposées pour la segmentation des images MEB des pâtes de ciment (Wong and Buenfeld, 2009). Ceci permet alors de définir des plages de niveaux de gris pour chaque phase. Ensuite, des images carrées de 80×80 pixels (correspondant à $2,67 \times 2,67 \mu\text{m}^2$, ce qui est légèrement supérieur à la plus grande empreinte) ont été extraites des images MEB autour de chaque empreinte et leurs niveaux de gris sont analysés. La valeur moyenne m des niveaux de gris dans chaque image permet d'attribuer l'indent à une phase en fonction de la plage de niveau de gris à laquelle elle appartient. Si l'écart-type σ est supérieur à $0,35 \times m$, l'indent est considéré comme étant réalisé sur une interface entre deux phases.

Une nouvelle approche s'appuyant sur un couplage automatique des deux méthodes de classification précédemment décrites, nommée Auto-NI-MEB, est proposée afin de surmonter les limites de la déconvolution statistique et réduire ainsi la variabilité des propriétés identifiées des phases. Comme le montre le schéma de la FIGURE 2, la nature des indents prédites par les deux méthodes GMM et analyse d'images est comparée : lorsque les deux prédictions coïncident, l'indent est alors attribué à cette phase prédite ; dans le cas contraire, les indents sont considérés comme des informations non fiables et ne sont pas pris en compte lors du recalcul/l'évaluation des propriétés des phases individuelles. Comme expliqué précédemment, le résultat de l'analyse d'images MEB fait ressortir quatre classes : CSH, portlandite, interfaces et particules de ciment non hydratées (cinq pour PS₆₀ avec une nouvelle classe pour le laitier), tandis que la classification statistique GMM dépend du mélange, et les classes sont attribuées sur la base de leurs valeurs de propriétés moyennes et de leur écart-type. Lorsqu'une classe GMM contient probablement deux phases, les

prédictions associées sont comparées à ces mêmes deux phases identifiées dans la classification basée sur l'analyse d'image.

Les résultats de l'approche ainsi proposée Auto-NI-MEB seront comparés à ceux de la classification numérique GMM en se référant à des mesures expérimentales.

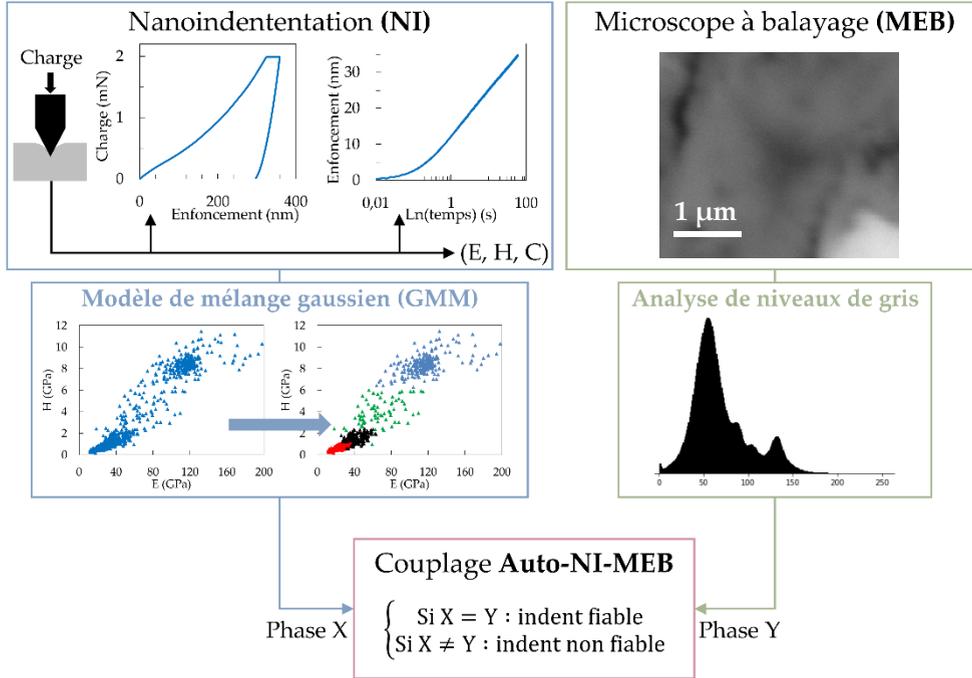


FIGURE 2. Schématisation de l'approche couplée Auto-NI-MEB.

D. Modèle analytique et démarche d'homogénéisation

Le béton est un matériau composite contenant plusieurs phases qui peuvent être divisées en plusieurs échelles comme il a été suggéré dans (Bernard et al., 2003). A l'échelle de la pâte, qui rentre dans le cadre de notre étude, deux niveaux peuvent être distingués :

- Un niveau I à l'échelle de la matrice des CSH où les deux types de CSH (de faible et haute densité) sont les phases prises en compte. A ce niveau, le schéma de Mori-Tanaka est utilisé pour faire l'homogénéisation afin d'obtenir le module de fluage homogénéisé des CSH (C_{CSH}). Dans ce schéma, le type de CSH ayant la fraction volumique la plus importante est considéré comme matrice m et l'autre comme inclusion i .
- Un niveau II à l'échelle de la pâte composée de la matrice des CSH, de la portlandite, des particules anhydres (de ciment et de laitier) ainsi que de la porosité capillaire. Le module de fluage homogénéisé ($C_{pâte}$) à ce niveau est obtenu par le schéma auto-cohérent.

Le modèle analytique employé a été proposé et validé dans plusieurs études où le développement mathématique a été détaillé [dont (Li et al., 2022)]. Nous donnons ici les formules issues du modèle permettant de calculer C_{CSH} et $C_{pâte}$:

$$C_{CSH} = \frac{f_m C_m + f_i C_i \left[1 + \frac{2}{5} \left(\frac{C_i}{C_m} - 1 \right) \right]^{-1}}{f_m + f_i \left[1 + \frac{2}{5} \left(\frac{C_i}{C_m} - 1 \right) \right]^{-1}} \quad (3)$$

$$C_{p\grave{a}te} = \frac{\sum_r f_r C_r [1 + \frac{2}{5} (\frac{C_r}{C_{p\grave{a}te}} - 1)]^{-1}}{\sum_r f_r [1 + \frac{2}{5} (\frac{C_r}{C_{p\grave{a}te}} - 1)]^{-1}} \quad (4)$$

Avec C_m , C_i , C_r sont respectivement les modules de fluage de la matrice m , de l'inclusion i et de la phase r ; f_m , f_i , f_r sont leurs fractions volumiques respectives. Ces paramètres sont ceux déterminés à l'issue du processus de déconvolution pour chaque phase après mesure par nanoindentation. Pour les pores, $C_{pore} = 0 \text{ GPa}$ et la fraction volumique correspond à la porosité capillaire mesurée par la porosimétrie à mercure.

Ensuite, le modèle analytique d'homogénéisation viscoélastique est alimenté par les données de sorties de la déconvolution GMM d'une part, et de l'approche Auto-NI-MEB d'autre part. Les modules de fluage homogénéisés respectifs C_{hom_GMM} et $C_{hom_Auto-NI-MEB}$ seront par la suite comparés à la mesure du module de fluage des pâtes C_{exp} , effectuée par le biais de la microindentation. La démarche ainsi décrite est schématisée dans la **FIGURE 3**.

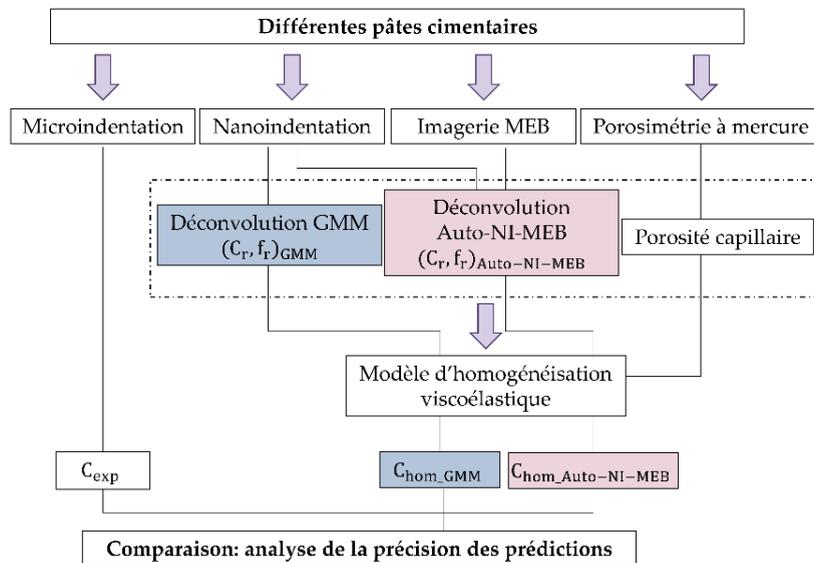


FIGURE 3. Schématisation de la démarche d'homogénéisation pour l'analyse de précision des données d'entrées (propriétés et fractions volumiques des phases) obtenues par nanoindentation.

III. RESULTATS ET DISCUSSION

A. Quantification des phases mineures par l'approche Auto-NI-MEB

La portlandite peut être considérée comme phase mineure dans les pâtes de ciment à faible E/C. Ceci empêche sa détection comme une classe à phase individuelle par la déconvolution numérique GMM, et donc on la trouve plutôt mélangée à des phases dont les propriétés sont similaires/proches. Ces phases se composent de certaines particules de CSH à haute densité ou ultra-haute densité et des interfaces entre les produits d'hydratation et les particules non hydratées (ciment ou laitier).

La **FIGURE 4** montre la teneur en portlandite des pâtes de ciment évaluée par GMM, par l'analyse d'images MEB et l'approche Auto-NI-MEB, comparée à celle déterminée par les mesures d'ATG.

L'approche Auto-NI-MEB a permis de contourner la limitation de GMM à travers la construction d'une classe individuelle pour la portlandite. En comparant les fractions volumiques obtenues par Auto-NI-MEB à celles mesurées expérimentalement, on peut remarquer qu'elles sont généralement sous-estimées. Ceci est dû à la prédiction erronée de la portlandite par GMM qui tend à attribuer certains indents dans la portlandite aux CSH, ce qui fait que certains indents dans la portlandite (comme prédits par le MEB) sont éliminés par le couplage. Il est intéressant de noter que les teneurs en portlandite obtenues par l'analyse d'images MEB P_{MEB} s'ajustent bien linéairement à celles mesurées par ATG selon l'équation $P_{MEB} = 1,01P_{ATG}$ avec un $R^2 = 0,92$ ($P_{MEB} = 0,99P_{ATG}$; $R^2 = 0,99$ pour les pâtes à base de ciment Portland seul). Pour les mélanges avec des rapports E/C de 0,35 et 0,40, la quantité de portlandite évaluée à l'aide de GMM était relativement bonne. Nous pouvons ainsi conclure que l'approche Auto-NI-MEB permet une quantification fiable de phases lorsque leurs quantités réelles sont inférieures à 10,7 %, voire comprises entre 10,7 % et 12,8 %, là où la déconvolution GMM ne le permet pas.

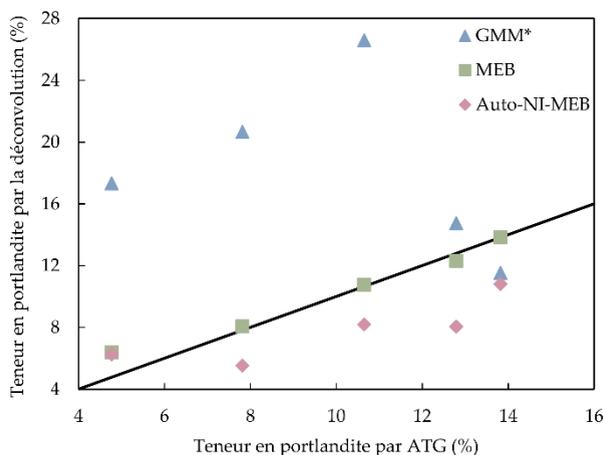


FIGURE 4. Teneur en portlandite déterminée par GMM, analyse d'images MEB et Auto-NI-MEB en fonction de celle déterminée par ATG. *La classe de portlandite contient également des indents dans les interfaces.

L'analyse des images MEB a également permis de quantifier la phase de périclase (MgO) facilement distinguée par un niveau de gris foncé à noir sur les particules de ciment non hydratées. Par conséquent, ses propriétés peuvent être déterminées avec précision et sa fraction volumique quantifiée. Par exemple pour OPC-0,23 qui contient la plus grande fraction de ciment anhydre, nous avons calculé les propriétés de la périclase comme étant $E = 208,8 \pm 53,9 \text{ GPa}$ et $H = 9,70 \pm 1,29 \text{ GPa}$. Ceci est cohérent avec les valeurs rapportées dans (Tavakoli and Tarighat, 2016), avec une fraction de 3,9 % du total des indents dans le ciment non hydraté, ce qui est également cohérent avec la composition de ciment (TABLEAU 1).

B. Vers une meilleure caractérisation du fluage des liants cimentaires

Afin de montrer le potentiel de l'approche Auto-NI-MEB par rapport à GMM dans l'affinement des propriétés viscoélastiques des matériaux cimentaires, et étant donné que leur fluage est principalement conditionné par les CSH, nous avons comparé le coefficient de variation (le ratio de l'écart-type sur la moyenne) sur leurs modules de fluage calculés par les deux méthodes. La

FIGURE 5 montre que ce coefficient de variation a en général une valeur moins importante quand calculé par Auto-NI-MEB, ce qui signifie que les valeurs du module de fluage calculées par cette approche sont moins dispersées que celles obtenues par GMM. En termes d'écart-type, la différence entre les deux méthodes est plus prononcée et Auto-NI-MEB permet de le diminuer davantage. En effet, les moyennes du module de fluage calculées par Auto-NI-MEB sont généralement moins importantes, étant donné qu'elle élimine les indents de portlandite susceptibles d'être assignés aux CSH par GMM, et ayant des propriétés viscoélastiques plus importantes. Ainsi, nous pouvons conclure que l'approche permet bien l'affinement des propriétés de fluage des phases cimentaires.

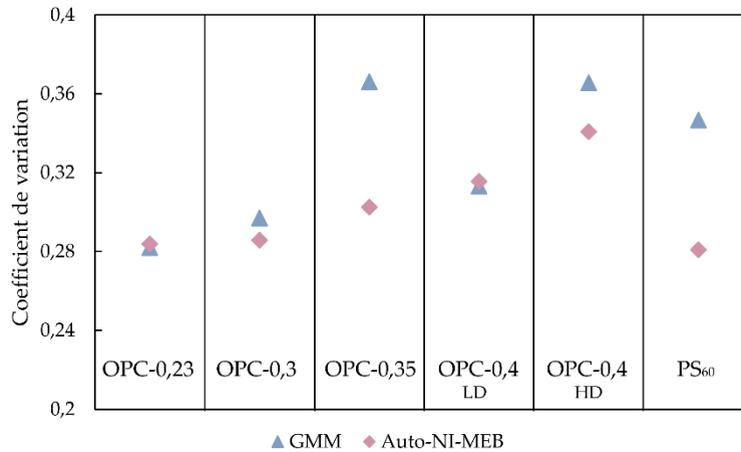


FIGURE 5. Coefficient de variation sur les modules de fluage des CSH au sein des différentes pâtes, obtenus par GMM et Auto-NI-MEB.

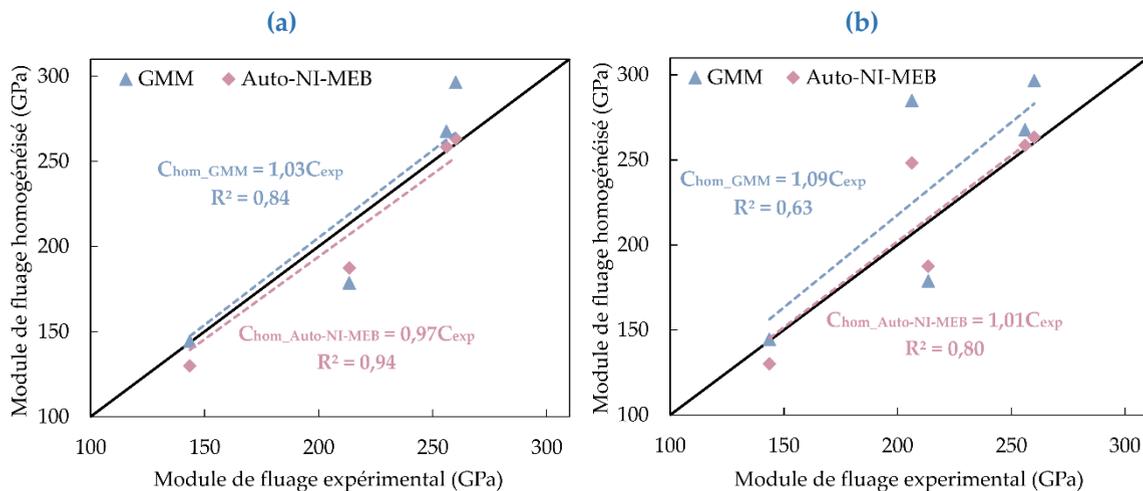


FIGURE 6. Corrélation entre les modules de fluage homogénéisés et ceux mesurés par microindentation (a) des pâtes à base de CEM I seul, (b) des cinq pâtes étudiées.

Nous avons exploré par la suite la fiabilité des résultats des deux méthodes de déconvolution en les utilisant comme données d'entrée dans le modèle d'homogénéisation et en comparant les résultats avec les mesures directes par microindentation (FIGURE 6). Les modules de fluage obtenus par le modèle d'homogénéisation alimenté à partir des deux méthodes sont bien corrélés

linéairement à ceux mesurés par microindentation. Sur les cinq pâtes, cette linéarité est manifestée par l'équation $C_{hom_GMM} = 1,09C_{exp}$ pour les données obtenues de la déconvolution GMM ($R^2 = 0,63$), et par l'équation $C_{hom_Auto-NI-MEB} = 1,01C_{exp}$ ($R^2 = 0,80$) en utilisant les données du couplage, avec un écart moyen de 1,9 GPa. Ces corrélations sont plus fortes sur les pâtes à base de ciment Portland seul (FIGURE 6a), compte-tenu de la microstructure plus complexe en présence de laitier, rendant plus critique la déconvolution GMM et l'analyse des niveaux de gris des images MEB. Le coefficient de 1,01 entre $C_{hom_Auto-NI-MEB}$ et C_{exp} ainsi que l'écart faible aux valeurs expérimentales reflètent bien la qualité des données d'entrée fournies par cette méthode et confirme son potentiel pour une meilleure prédiction de fluage des matériaux cimentaires.

IV. CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Cette recherche montre le potentiel d'une méthode innovante de déconvolution des données de nanoindentation Auto-NI-MEB par rapport à la déconvolution statistique GMM qui est la plus utilisée récemment. Cette méthode couple les résultats de GMM avec ceux de l'analyse d'images en niveaux de gris MEB pour une détermination semi-automatique des propriétés micromécaniques des principales phases des pâtes de ciment ainsi que leurs fractions volumiques. Les principaux résultats peuvent être résumés comme suit :

- L'approche proposée Auto-NI-MEB permet de contourner la limitation rencontrée lors de l'utilisation de GMM liée à la quantification des phases à faible teneur. Il est désormais possible de définir une classe de portlandite comme une phase individuelle, même dans les pâtes à faible rapport E/L, avec des quantités bien corrélées à celles évaluées par analyse thermogravimétrique.
- Auto-NI-MEB permet de réduire l'incertitude sur le calcul du module de fluage des CSH principalement responsables du fluage des matériaux cimentaires.
- Les résultats de l'approche Auto-NI-MEB, notamment les modules de fluage des phases individuelles et leurs fractions volumiques respectives, ont permis une meilleure prédiction du module de fluage à l'échelle de la pâte, comparés à ceux déterminés par GMM, confirmés par les essais de microindentation.

L'application de la méthode Auto-NI-MEB sur les liants bas carbone semble prometteuse compte-tenu des résultats satisfaisants obtenus sur une pâte incorporant 60 % de laitier. Une continuité de ce travail serait d'appliquer l'approche sur des systèmes plus complexes intégrant des additions minérales, afin de déterminer les proportions de certaines phases mineures résultant de l'hydratation de ces additions et de prédire le fluage des liants bas carbone. Un couplage éventuel avec des techniques de segmentation plus avancées, basées sur l'apprentissage profond par exemple, pourrait s'avérer d'une grande utilité.

REFERENCES

- Bekrine, I., Hilloulin, B., Loukili, A., 2023. Multiscale investigation of cement pastes with low and high-grade calcined clays and slag at early and advanced ages. *Journal of Building Engineering* 107570. <https://doi.org/10.1016/j.job.2023.107570>

- Bernard, O., Ulm, F.-J., Lemarchand, E., 2003. A multiscale micromechanics-hydration model for the early-age elastic properties of cement-based materials. *Cement and Concrete Research* 33, 1293–1309. [https://doi.org/10.1016/S0008-8846\(03\)00039-5](https://doi.org/10.1016/S0008-8846(03)00039-5)
- Constantinides, G., Ravi Chandran, K.S., Ulm, F.-J., Van Vliet, K.J., 2006. Grid indentation analysis of composite microstructure and mechanics: Principles and validation. *Materials Science and Engineering: A* 430, 189–202. <https://doi.org/10.1016/j.msea.2006.05.125>
- Hu, C., Li, Z., 2014. Micromechanical investigation of Portland cement paste. *Construction and Building Materials* 71, 44–52. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2014.08.017>
- Krakowiak, K.J., Thomas, J.J., Musso, S., James, S., Akono, A.-T., Ulm, F.-J., 2015. Nano-chemo-mechanical signature of conventional oil-well cement systems: Effects of elevated temperature and curing time. *Cement and Concrete Research* 67, 103–121. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2014.08.008>
- Li, Y., Liu, Y., Wang, Z., Li, H., Mu, J., 2022. Effect of phases on the creep properties of cement paste based on indentation test and homogenization scheme. *Construction and Building Materials* 317, 125957. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2021.125957>
- Marsh, B.K., Day, R.L., 1988. Pozzolanic and cementitious reactions of fly ash in blended cement pastes. *Cement and Concrete Research* 18, 301–310. [https://doi.org/10.1016/0008-8846\(88\)90014-2](https://doi.org/10.1016/0008-8846(88)90014-2)
- Oliver, W.C., Pharr, G.M., 1992. An improved technique for determining hardness and elastic modulus using load and displacement sensing indentation experiments. *Journal of Materials Research* 7, 1564–1583. <https://doi.org/10/bdv47f>
- Scrivener, K.L., Kirkpatrick, R.J., 2008. Innovation in use and research on cementitious material. *Cement and Concrete Research, Special Issue – The 12th International Congress on the Chemistry of Cement*. Montreal, Canada, July 8-13 2007 38, 128–136. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2007.09.025>
- Tavakoli, D., Tarighat, A., 2016. Molecular dynamics study on the mechanical properties of Portland cement clinker phases. *Computational Materials Science* 119, 65–73. <https://doi.org/10.1016/j.commatsci.2016.03.043>
- Wei, Y., 2018. A combined SPM/NI/EDS method to quantify properties of inner and outer C-S-H in OPC and slag-blended cement pastes. *Cement and Concrete Composites* 11. <https://doi.org/10/ghdf8c>
- Wei, Y., Gao, X., Liang, S., 2016. Nanoindentation-based study of the micro-mechanical properties, structure, and hydration degree of slag-blended cementitious materials. *J Mater Sci* 51, 3349–3361. <https://doi.org/10.1007/s10853-015-9650-4>
- Wilson, W., Rivera-Torres, J.M., Sorelli, L., Durán-Herrera, A., Tagnit-Hamou, A., 2017. The micromechanical signature of high-volume natural pozzolan concrete by combined statistical nanoindentation and SEM-EDS analyses. *Cement and Concrete Research* 91, 1–12. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2016.10.004>
- Wong, H.S., Buenfeld, N.R., 2009. Determining the water–cement ratio, cement content, water content and degree of hydration of hardened cement paste: Method development and validation on paste samples. *Cement and Concrete Research* 39, 957–965. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2009.06.013>
- Zhang, Z., Qin, J., Ma, Z., Pang, X., Zhou, Y., 2023. Comparison of three different deconvolution methods for analyzing nanoindentation test data of hydrated cement paste. *Cement and Concrete Composites* 104990. <https://doi.org/10.1016/j.cemconcomp.2023.104990>

Vers un dimensionnement plus robuste des systèmes de maintenance électrochimique

Abdel Razzak EL ZOUBY

Université de Toulouse, UPS, INSA, LMDC 135 avenue de Rangueil, 31077, Toulouse Cedex 4, France

RESUME

La fin de la durée de vie prévue pour de nombreuses constructions en béton armé érigées entre 1950 et 1970 ainsi que la problématique majeure de l'empreinte carbone des nouvelles constructions impose aujourd'hui aux techniques de maintenance et de réhabilitation une performance et une durabilité accrues. Face aux défis posés par la corrosion, la maintenance électrochimique s'impose comme la seule stratégie viable pour prévenir les défaillances structurelles. Cependant, malgré son potentiel, des points essentiels liés à la durabilité de ces systèmes de maintenance restent encore dans l'ombre. Cette étude fournit une analyse approfondie des phénomènes de distribution des lignes de courant dans le béton. La répartition 3D obtenue montre qu'une approche physique globale est nécessaire à l'optimisation de ces techniques électrochimiques. Les aspects évolutifs des mécanismes se produisant aux interfaces électrochimiques sont également étudiés. Une augmentation significative de la résistance de polarisation a été ainsi constatée, à l'interface anodique et cathodique, atteignant 40 % dans certains cas, sans aucune altération de la matrice cimentaire (pas d'acidification ou dégradation).

Mots-clés : béton armé, maintenance électrochimique, courants de polarisation, interfaces électrochimiques, durabilité.

I. INTRODUCTION

Au premier plan de l'infrastructure, les structures en béton armé, qu'il s'agisse d'édifices architecturaux, de réseaux de ponts vitaux ou de constructions diverses, constituent la forme de construction prédominante dans le monde entier (Liberati et al., 2014; Yakut, 2004). Or, une grande partie de ces structures, construite entre les années 1950 et 1970, voit désormais la fin imminente de leurs durées d'exploitation. Couplé aux problématiques de durabilité du béton armé, ce vieillissement représente une préoccupation majeure dans le domaine de l'ingénierie civile (Böhni, 2005; Stratfull, 1957). Ces préoccupations étaient déjà présentes dans les années 90, comme celles mentionnées dans un rapport au gouvernement fédéral en 1993, indiquant que 44% des plus de 500.000 ponts aux Etats-Unis souffraient de problèmes structurels ou devaient être soumis à des limitations de poids (Cramer et al., 2002). La France était également l'un des pays qui a réalisé très tôt que les infrastructures, en particulier celles en béton armé, ont une durée de vie non permanente.

En 2019, la mission d'information du Sénat français sur la sécurité des ponts a constaté que seuls 23,5 % des ponts du réseau routier national (RRN) ont été construits après 1995 (MAUREY et al., 2019). Un quart de ces ponts ont été construits entre 1951 et 1975, et ont donc atteint, ou vont bientôt atteindre, la fin de leur durée d'exploitation. Dans cette optique, des stratégies de maintenance et de réhabilitation doivent être largement généralisées, afin de préserver ces ouvrages, et ainsi atténuer l'empreinte carbone qui serait associée à des projets de démolition et de construction (Bostanci et al., 2018).

Dans le domaine de la corrosion, cause première de défaillance de ces structures (François et al., 2018; Sanchez et al., 2017) et source d'impact économique majeur (Koch et al., 2016), la maintenance électrochimique apparaît comme la seule solution viable afin de préserver les structures existantes ou de prévenir les dommages dans le cas de nouvelles constructions. Trois techniques de maintenance électrochimique se sont ainsi développées : la protection cathodique, la déchloruration et la ré-alcalinisation.

Quelle que soit la technique électrochimique mise en œuvre, le principe de fonctionnement reste similaire et consiste à appliquer un courant à l'armature d'acier (via un système d'anode externe) et, par conséquent, à soumettre le béton à un champ électrique. Bien que massivement déployées dans le monde aujourd'hui, l'efficacité des approches physiques unidimensionnelles utilisées pour dimensionner ces techniques de maintenance reste à démontrer. Le paradigme de l'uniformité dans ce domaine est basé sur plusieurs concepts 1D, incluant l'uniformité des courants de polarisation envoyés de l'anode pour protéger les aciers (Sagues et Kranc, 1992; Sassine et al., 2016). De plus, les réactions d'oxydoréduction qui se produisent aux interfaces électrochimiques conduisent à des interrogations légitimes quant à la pérennité de cette solution technique sur les durées de service visées.

Dans l'approche proposée, la recherche vise à répondre aux aspects décrits précédemment. Elle porte sur l'analyse de la distribution spatiale des courants de polarisation dans les techniques de maintenance électrochimique pour mieux prévoir les niveaux de protection des barres. Ce travail vise également à améliorer notre compréhension du comportement électrochimique dans les milieux cimentaires, notamment en évaluant les interactions des interfaces (électrode/matrice) à long terme. A cet égard, un nouveau dispositif expérimental permettant de réaliser des essais dans des conditions contrôlées devrait être mis en place. La mise en lumière de ces aspects fondamentaux permettra de mieux comprendre les mécanismes impliqués dans la maintenance électrochimique, dans le but d'améliorer la fiabilité de ces systèmes et d'ouvrir la voie à un dimensionnement plus optimisé et soutenable.

II. ETUDE DE LA DISTRIBUTION SPATIALE DES COURANTS DE POLARISATION

Dans cette étude, une campagne de simulation a été réalisée. Elle a été basée sur une représentation réaliste selon l'Eurocode 2 d'un élément structural de base, à savoir une "poutre". Les dimensions de la poutre sont de 600 cm de longueur et de 40 cm x 70 cm de section transversale (largeur x

hauteur), respectivement. Elle est renforcée par huit barres longitudinales d'un diamètre de 20 mm dans les deux lits inférieurs et quatre barres d'un diamètre de 10 mm dans le lit supérieur, formant ainsi un lit d'assemblage. Le renforcement transversal est assuré par deux cadres HA8, avec deux brins chacun. Des approximations sont prises en compte, telles que l'absence de zones de recouvrement et d'ancrage des barres, permettant de considérer que l'on se trouve dans une zone courante. En exploitant les symétries du problème, tenant implicitement la symétrie des champs de chlorure, il est possible de ne simuler qu'un quart du modèle numérique (Fig. 1). Il a été choisi de simuler des anodes supposées inertes, induisant des courants imposés, reproduisant ainsi le cas du titane MMO (Mixed Metal Oxides) le plus utilisé en protection cathodique grâce à sa fiabilité et sa robustesse (Kroon and Ernes, 2007). Ainsi, on considère que les aciers sont passifs, illustrant un cas électrochimique uniforme. En effet, ce dernier peut être observé dans diverses structures soumises à une maintenance électrochimique, y compris la prévention cathodique et d'autres approches visant à contrer les facteurs responsables de la corrosion, tels que les ions chlorures et la carbonatation.

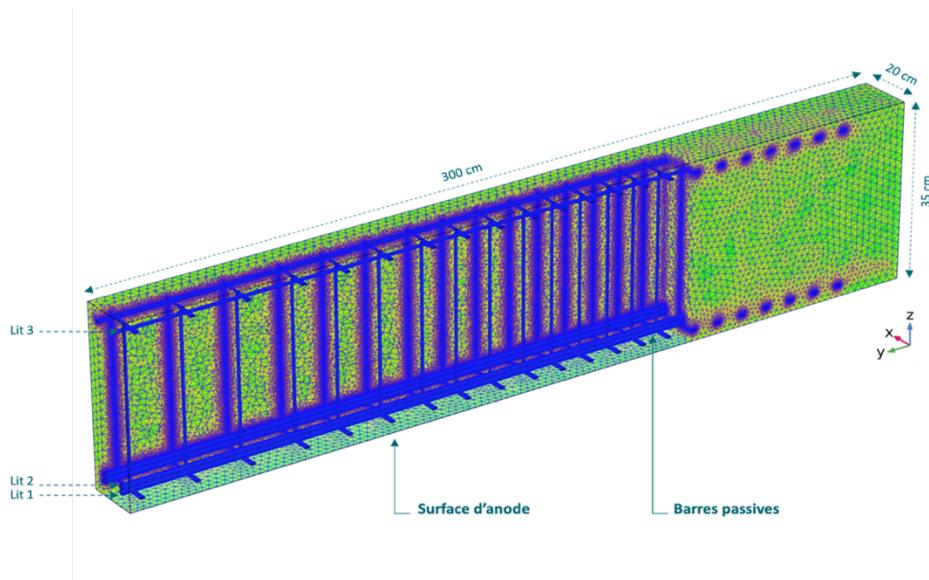


Figure 1. Modèle géométrique simulé (poutre 1/4 - plan de symétrie (x,z) à $y = 300$ cm et (y,z) à $x = 20$ cm) et maillage.

Toutes les simulations ont été effectuées en régime permanent, à l'aide du logiciel d'éléments finis Comsol Multiphysics® en considérant que les phénomènes de transfert de charge électrique dans le volume de béton sont régis par la loi d'Ohm locale (équation 1) et l'équation de conservation de la charge (équation 2).

$$\mathbf{i} = -\frac{1}{\rho} \nabla E \quad (1)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{i} = 0 \quad (2)$$

Où :

\mathbf{i} est le vecteur de densité de courant local (A/m^2),

E est le champ électrique (V/m),

ρ est la résistivité électrique du béton ($\Omega.m$).

Dans cette étude, nous appliquons une densité de courant anodique nécessaire à l'établissement d'une densité de courant cathodique de 20 mA/m^2 d'acier, englobant tous les renforts en acier et les cadres transversaux. Cette valeur a été choisie dans le but de reproduire un cas de figure simulant une protection cathodique. La **Fig. 2** illustre les courants ioniques formés entre la surface anodique inférieure de la poutre et les barres d'acier passives, ainsi que le flux d'électrons implicitement associé. Cette simulation montre de façon notable la non uniformité de la polarisation de l'acier : les armatures inférieures sont presque dix fois plus polarisées cathodiquement que les armatures supérieures. Cette caractéristique s'explique physiquement par la nature tridimensionnelle du problème physique. La géométrie complexe du système entraîne une polarisation plus prononcée en certains points, en particulier ceux qui sont proches de la surface de l'anode. Par conséquent, la densité de courant transportée par les lignes de courant varie entre 10 et 100 mA/m^2 d'acier.

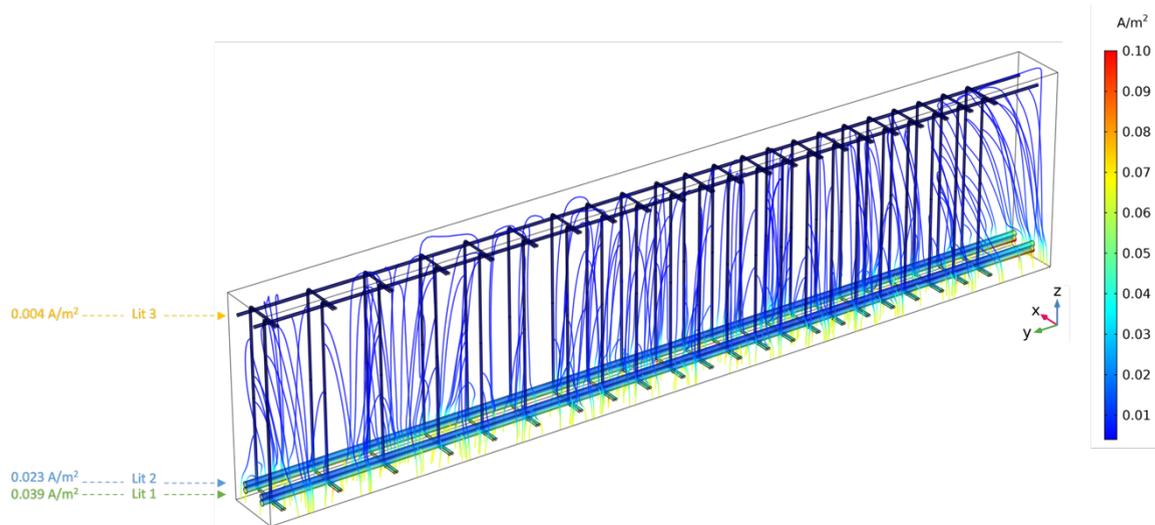


Figure 2. Distribution des densités de courant et des lignes de courant sous polarisation cathodique de l'acier à 20 mA/m^2 .

L'influence de l'intensité du courant sur la distribution spatiale des lignes de courant a également été analysé : cinq valeurs moyennes différentes de densité de courant ont été simulées, de 5 à 2000 mA/m^2 d'acier, en maintenant les mêmes paramètres que précédemment. Les résultats sont présentés sur la **Fig. 3**. Ces derniers indiquent une polarisation non uniforme dans tous les cas, révélant des variations significatives entre les différents lits de renforcement à différentes valeurs de densité de courant. À une densité de courant cathodique de 5 mA/m^2 , le premier lit reçoit en moyenne 150 % de la densité de courant initiale imposée, tandis que le deuxième reçoit 125 % et que le troisième ne reçoit que 45 %. De plus, pour des valeurs de courants plus élevées, on constate que plus le courant imposé est important plus cette différence augmente.

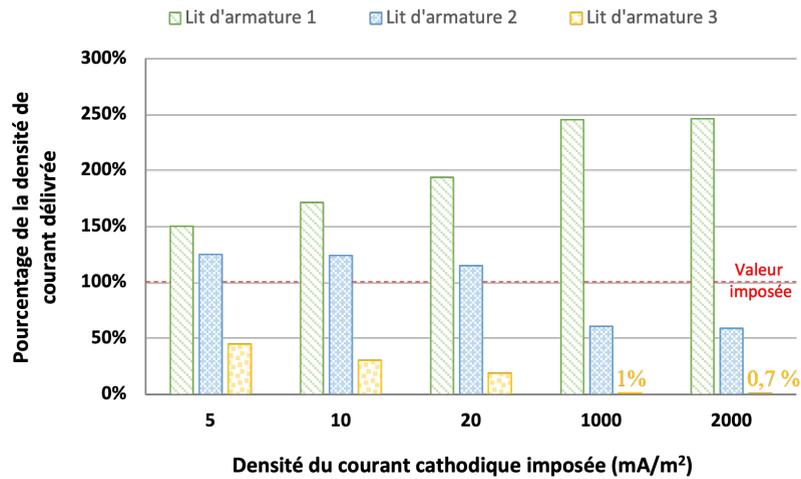


Figure 3. Évaluation du pourcentage de la densité de courant reçue par lit d'armature en fonction de la densité de courant imposée dans la simulation.

Un rapport de trois est observé entre la densité de courant reçue par le premier et le troisième lit d'armature pour le cas de 5mA/m^2 d'acier. Ce rapport atteint 10 pour une densité de courant moyenne de 20 mA/m^2 (représentant un pourcentage variant de 20% à environ 200%) et jusqu'à un rapport de 350 pour la densité de courant de 2000 mA/m^2 . Ce phénomène est dû à la pente du comportement électrochimique du modèle de Butler-Volmer, qui devient plus raide pour des valeurs de courant plus élevées. Par conséquent, cela montre que la prise en compte de la distribution 3D ainsi que les valeurs de courants imposé est cruciale pour concevoir des systèmes de maintenance électrochimique efficaces.

L'utilisation de ces simulations permet d'affiner les stratégies de placement des anodes en fonction des zones spécifiques à protéger. Cette approche nous permet d'optimiser la configuration du système et d'améliorer son efficacité globale en termes de protection contre la corrosion. Elle implique également l'évaluation et l'utilisation d'une gamme de valeurs de densité de courant reçues par les différents lits d'armatures pour des manipulations expérimentales ultérieures. Néanmoins, la compréhension et la maîtrise des techniques de maintenance et de leur durabilité ne se limitent pas à ces considérations. La section suivante se concentre sur l'étude des phénomènes évolutifs se produisant au sein des interfaces électrochimiques (matrice cimentaire/électrode) et de leurs mécanismes réactionnels, qui jouent un rôle clé dans la durabilité des structures en béton armé et l'optimisation des pratiques de maintenance.

III. NOUVEAU PROTOCOLE DE CARACTERISATION DES EVOLUTIONS ELECTROCHIMIQUES AUX INTERFACES

Dans cette section, une attention particulière est portée à l'étude et à la compréhension des phénomènes évolutifs aux interfaces électrochimiques "matrice cimentaire/système anodique" et

"matrice cimentaire/système cathodique". La nature des phénomènes oxydo-réducteurs en jeu à ces interfaces et leur cinétique réactionnelle sont régies par l'intensité du courant appliqué. Des niveaux de courant élevés sont susceptibles de conduire à des dommages locaux dans certaines conditions, et par conséquent, à une défaillance du système de protection. En effet, les phénomènes attendus aux interfaces électrochimiques en fonction des niveaux d'intensité appliqués peuvent induire, selon la littérature existante, une acidification à l'interface béton/anode dans le cas d'une protection cathodique par courant imposé (Hu et al., 2019; Zhang et al., 2018). D'autres phénomènes tels que la migration des ions et l'accumulation d'alcalins peuvent se produire à l'interface béton/cathode et limiter l'application de ces techniques (Page, 1992). Bien que la littérature traite de ces phénomènes, ces études restent limitées et des questions persistent quant à l'influence des facteurs environnementaux et de configuration tels que l'intensité du courant et la durée d'exposition. Il est donc nécessaire d'approfondir notre compréhension scientifique de ces aspects fondamentaux, afin de garantir la viabilité à long terme des systèmes de maintenance électrochimique appliqués au béton armé.

- **Protocole expérimental :**

À cette fin, nous avons conçu un protocole expérimental original. Des échantillons de pâte de ciment, réalisé avec un CEM I ($E/C = 0,5$), d'une épaisseur de 1,5 cm et d'une longueur et d'une largeur respectives de 4,5 cm x 3,5 cm, ont été coulés. Du titane MMO sous forme de grilles a également été coulé de chaque côté de l'échantillon, agissant comme une anode et une cathode (lorsque l'on applique un courant), reproduisant ainsi un cas de maintenance électrochimique unidimensionnelle (Fig. 4).

Après une période de cure humide de 28 jours (à $97\% \pm 3\%$ d'humidité relative), les échantillons ont été placés dans une enceinte hermétique contrôlé en température et en humidité relative ($20\text{ °C} \pm 3\text{ °C}$ et $97\% \pm 3\%$ d'humidité relative) et connectés en série à un générateur de courant. Le schéma de principe du montage expérimentale est présenté sur la Fig. 4. Les densités de courant appliquées étaient de 110, 440 et 880 mA/m² d'anode, sélectionnées selon différents critères. La valeur de 110 mA/m² a été établie comme référence, conformément à la norme européenne ISO EN 12696, qui préconise de ne pas dépasser cette valeur pour éviter une acidification à l'interface de l'anode dans le cadre de la protection cathodique. Les valeurs les plus élevées ont été imposées afin de tenir compte de la surpolarisation qui peut se produire dans certaines zones dans des cas réalistes en raison de la distribution non uniforme du courant (section I). Ces valeurs ont également permis d'explorer la gamme des densités de courants des techniques de déchloruration et de ré-alcalinisation.

Tous les échantillons sont reliés entre eux par des câbles et des connecteurs de sorte qu'un court-circuit est réalisable afin de pouvoir faire des prélèvements d'échantillon pour analyse à différentes échéances sans couper le courant qui circule à travers les autres échantillons. De plus, une centrale d'acquisition de type Keysight DAQ970A a été utilisée pour monitorer en continu les différentes grandeurs électriques des trois montages, telle que la tension totale aux bornes des échantillons.

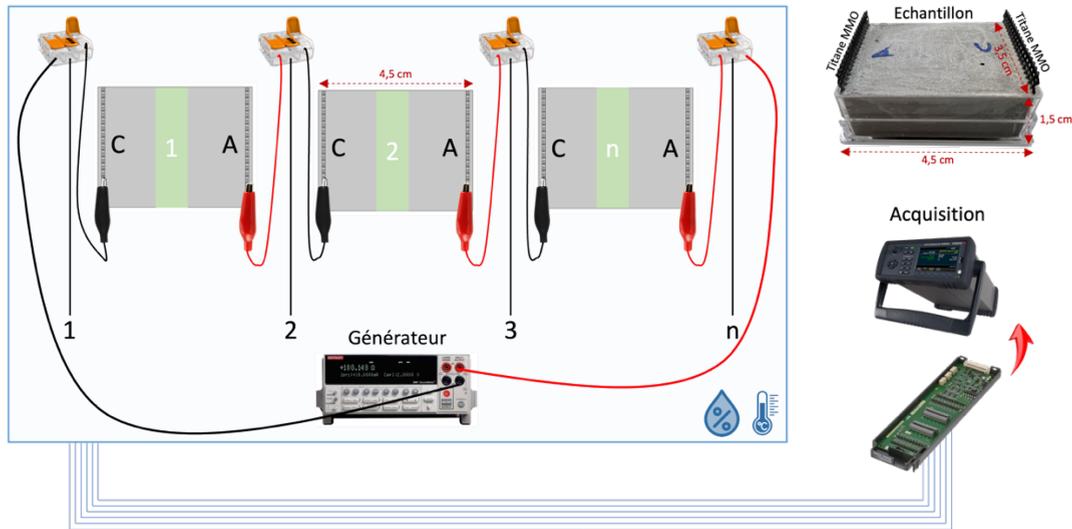


Figure 4. Schéma de principe du montage expérimental soumis à une densité de courant imposée sous conditions environnementales contrôlées.

Des tests de caractérisation ont également été effectués pour évaluer l'impact du courant sur la minéralogie et les propriétés des matériaux (DRX, ATG, MEB/EDS). Les valeurs de la tension totale monitorées représentent la somme de deux composantes distinctes, comme l'explique (Mercado Mendoza, 2012). Une composante correspond à la somme des tensions aux interfaces électrochimiques, attribuées aux résistances de polarisation, tandis que l'autre composante représente la tension de la pâte, également connue sous le nom de résistance de l'électrolyte, comme illustré dans la Fig. 5 (A). L'objectif étant ainsi de dissocier les paramètres électrochimiques impliqués aux interfaces, afin de suivre leur évolution, des paramètres liés uniquement au matériau cimentaire. Nous avons donc développé un protocole de "sauts de courants réguliers" de 0,1 mA, réalisé une fois toutes les deux semaines pour quelques secondes. A l'aide de la centrale d'acquisition, nous enregistrons la réponse instantanée de la tension après chaque saut. La nature résistive de l'électrolyte (pâte de ciment) assure une réponse instantanée, permettant une séparation de la tension de la pâte de la tension totale. La somme des tensions de polarisation aux interfaces est donc la différence entre la tension totale et la tension de la pâte.

Des courbes de polarisation de Butler-Volmer ont également été mesurées sur des échantillons prélevés après 3 mois de branchement, afin d'examiner les évolutions électrochimiques à chaque interface séparément. Plus précisément, ces courbes de polarisation mesurées représentent uniquement la partie anodique pour l'interface "matrice cimentaire/anode" (polarisation anodique) et la partie cathodique pour l'interface "matrice cimentaire/cathode" (polarisation cathodique).

- **Résultats et analyses :**

La Fig. 5 (B) montre l'évolution temporelle de la tension totale observée aux bornes des échantillons monitorés, sur une période d'environ un an. Une augmentation continue de la tension est observée pour les trois courants étudiés, atteignant +700 mV dans la configuration de densité de courant de

880 mA/m². Des chutes de tension ponctuelles se sont produites entre les jours 240 et 280, attribuées à une coupure de courant inévitable. Ces variations de la tension totale reflètent les propriétés sous-jacentes du matériau. En effet, pour une analyse approfondie de ces valeurs et pour distinguer les modifications possibles, il est essentiel d'examiner plus en détail les éléments contribuant à la tension totale (résistances de polarisation et résistance de l'électrolyte).

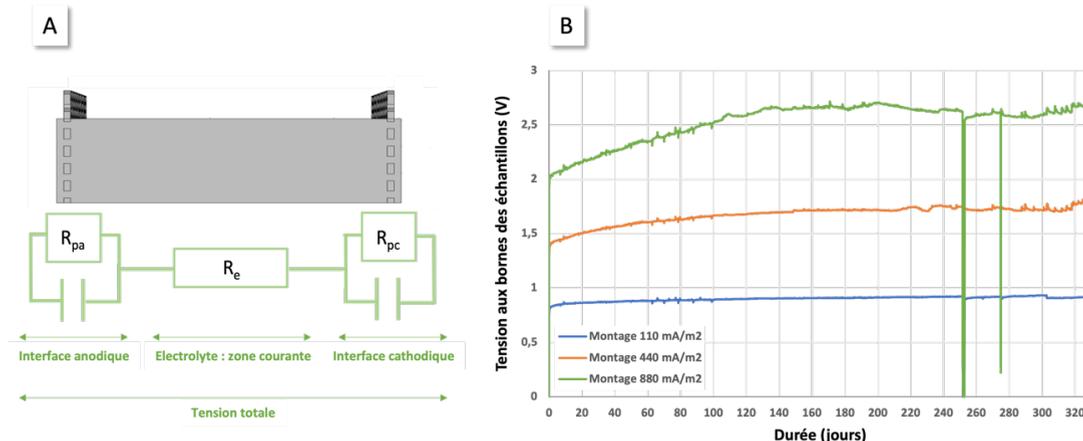


Figure 5. Principe du circuit électrique équivalent (A) et évolution de la tension totale aux bornes des échantillons pour les trois densités de courant étudiées (B).

Une légère augmentation de la résistance de la pâte de ciment a été observée. Néanmoins, le changement le plus important s'est produit au niveau des résistances de polarisation, comme le montre la **Fig. 6 (A)**, avec une augmentation significative de 45 % dans le cas de 880 mA/m². Cette observation suggère des modifications conséquentes aux interfaces électrochimiques. **À l'interface anodique**, la réaction impliquée est la consommation d'ions hydroxydes en oxygènes, ce qui peut conduire à une acidification locale. Cependant, les évaluations effectuées et les mesures des courbes de polarisation (**Fig. 6 (B)**) ont révélé la même tendance dans les trois configurations différentes, à savoir une consommation limitée d'ions hydroxydes se traduisant par un léger déplacement de la partie anodique de la courbe (légère augmentation de la résistance de polarisation anodique). Cette dernière est plus prononcée à des densités de courant plus élevées, mais reste insuffisante pour induire un déplacement notable vers un pH acide. Les tests DRX et MEB-EDS que nous avons réalisés n'ont par ailleurs montré aucune modification de la microstructure. Ce phénomène pourrait s'expliquer par la migration des ions hydroxydes de la cathode vers l'anode sous l'effet du champ électrique ce qui constitue une source d'approvisionnement de ces ions.

A l'interface cathodique, la réaction impliquée est la consommation d'oxygène pour la formation d'ions hydroxydes. La **Fig. 6 (B)** indique que l'augmentation observée des résistances de polarisation provient principalement de modifications du comportement électrochimique cathodique. Cette évolution est probablement associée à une diminution de la disponibilité de l'oxygène à l'interface cathodique et sera à confirmer par modélisation. Lorsque les échantillons approchent de la saturation, la diffusion à travers la matrice cimentaire est lente. Par conséquent, la diminution de

l'apport d'oxygène conduit le système à augmenter la tension, soit à la recherche d'oxygène, soit, dans des situations plus avancées, à la recherche de molécules d'eau.

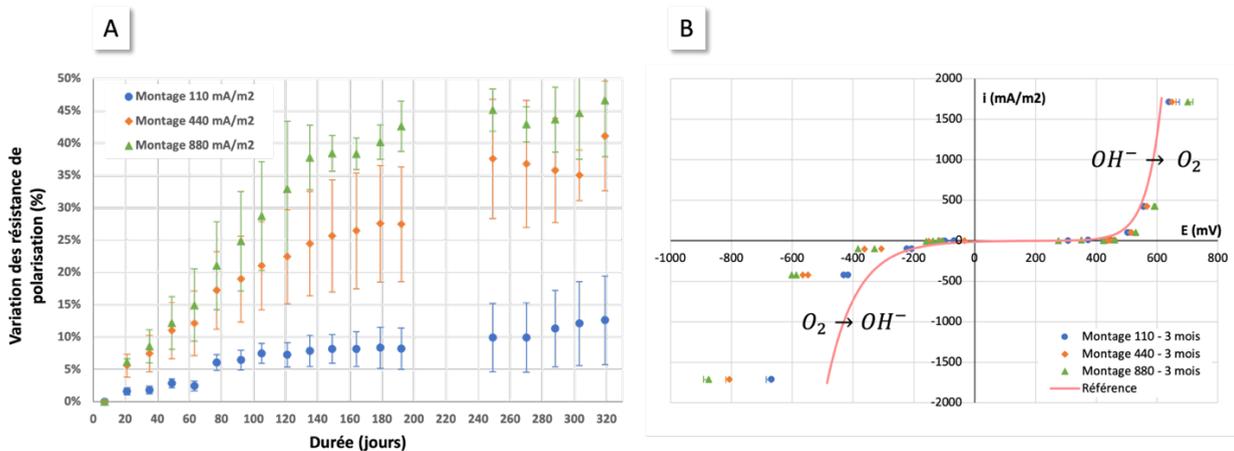


Figure 6. Variation temporelle de la somme des résistances de polarisation (anodique et cathodique) (A), et courbes de polarisation des interfaces électrochimiques des échantillons prélevés après trois mois de branchement (B).

CONCLUSION

Dans cette étude, nous avons mené une exploration de divers aspects liés à la durabilité des systèmes de maintenance électrochimique des structures en béton armé. L'analyse s'est concentrée initialement sur la distribution spatiale des courants de polarisation au sein du volume du béton. Il a été montré que la distribution des lignes de courant dans les structures réelles constitue un problème physique 3D non linéaire. En conséquence, soit des zones de sous-polarisation se forment, soit des zones de concentration de courant conduisant à une surpolarisation. En outre, nous avons constaté que la valeur moyenne de la densité de courant imposée joue un rôle important dans la distribution des lignes de courant, ce qui démontre le caractère unique de chaque cas d'étude. Une approche tridimensionnelle est donc nécessaire afin d'optimiser les systèmes de maintenance électrochimiques.

La deuxième partie de cette étude a examiné les aspects des interfaces qui peuvent également influencer la durabilité des systèmes de maintenance électrochimique. Aucune acidification n'a pu être mise en évidence à l'interface anodique, et ce pour les trois intensités de courant imposées et sur une durée d'exposition d'environ un an. La valeur anodique standard prescrite de 110 mA/m² représentant un seuil limite pour l'acidification de la matrice à l'anode est donc, dans les conditions d'études, remise en question. Parallèlement, cette étude a montré que la tension totale de la cellule électrochimique a augmenté de manière significative sur une période d'un an, introduisant un facteur substantiel, à savoir l'augmentation de la puissance électrique nécessaire pour maintenir les systèmes électrochimiques. Les résultats indiquent également que l'oxygène, agissant du côté de la cathode, joue un rôle essentiel dans l'augmentation de la tension totale des échantillons. Cette contribution de l'oxygène est particulièrement importante dans le cas des échantillons saturés, où la disponibilité de l'oxygène est réduite et sa diffusion est limitée. Le dispositif expérimental mis en place permettra ensuite de tester différentes configurations et d'aider au développement de modèles prédictifs permettant un dimensionnement plus robuste.

REFERENCES

- Böhni, H., 2005. Corrosion in reinforced concrete structures, Elsevier.
- Bostanci, S.C., Limbachiya, M., Kew, H., 2018. Use of recycled aggregates for low carbon and cost-effective concrete construction. *J. Clean. Prod.* 189, 176–196.
- Cramer, S.D., Covino Jr, B.S., Bullard, S.J., Holcomb, G.R., Russell, J.H., Nelson, F.J., Laylor, H.M., Soltesz, S.M., 2002. Corrosion prevention and remediation strategies for reinforced concrete coastal bridges. *Cem. Concr. Compos.* 24, 101–117.
- François, R., Laurens, S., Deby, F., 2018. Corrosion and its consequences for reinforced concrete structures, Elsevier, France.
- Hu, J., Wang, Y., Ma, Y., Wei, J., Yu, Q., 2019. Identification on acidification damage of external anode system induced by impressed current cathodic protection for reinforced concrete. *Math. Biosci. Eng.* 16, 7510–7525.
- Koch, G., Varney, J., Thompson, N., Moghissi, O., Gould, M., Payer, J., 2016. Int. measures of prevention, application, and economics of corrosion technologies study. *NACE Int.* 216, 2–3.
- Kroon, D.H., Ernes, L.M., 2007. MMO coated Titanium anodes for cathodic protection, in: *NACE CORROSION*. NACE, p. NACE-07045.
- Laurens, S., Hénoq, P., Rouleau, N., Deby, F., Samson, E., Marchand, J., Bissonnette, B., 2016. Steady-state polarization response of chloride-induced macrocell corrosion systems in steel reinforced concrete—numerical and experimental investigations. *Cem. Concr. Res.* 79, 272–290.
- Liberati, E.A.P., Leonel, E.D., Nogueira, C.G., 2014. Influence of the reinforcement corrosion on the bending moment capacity of reinforced concrete beams: a structural reliability approach. *Rev. IBRACON Estrut. E Mater.* 7, 379–413.
- MAUREY, H., CHAIZE, P., DAGBERT, M., 2019. Sécurité des ponts : Éviter un drame.
- Mercado Mendoza, H.R., 2012. Transferts aqueux à travers les matériaux cimentaires partiellement saturés (PhD Thesis), Toulouse 3.
- Page, C.L., 1992. Interfacial Effects of Electrochemical Protection Methods Applied to Steel in Concrete, in: *Proc. of Int. Conference on Rehabilitation of Concrete Structures*. pp. 179–187.
- Sagues, A.A., Kranc, S.C., 1992. On the determination of polarization diagrams of reinforcing steel in concrete. *Corrosion* 48, 624–633.
- Saleem, M., Shameem, M., Hussain, S.E., Maslehuddin, M., 1996. Effect of moisture, chloride and sulphate contamination on the electrical resistivity of Portland cement concrete. *Constr. Build. Mater.* 10, 209–214.
- Sanchez, J., Fullea, J., Andrade, C., 2017. Corrosion-induced brittle failure in reinforcing steel. *Theor. Appl. Fract. Mech.* 92, 229–232.
- Sassine, E., Laurens, S., François, R., Ringot, E., Vision, L.R., 2016. Experiments and numerical simulations on Impressed Current Cathodic Protection technique applied to steel reinforced concrete structures, *Proceedings of the EUROCORR 2016*, Montpellier, France.
- Stratfull, R.F., 1957. The corrosion of steel in a reinforced concrete bridge. *Corrosion* 13, 43–48.
- Yakut, A., 2004. Reinforced concrete frame construction. *World Hous. Encycl. Publ.* 9–1.
- Zhang, E.Q., Abbas, Z., Tang, L., 2018. Predicting degradation of the anode–concrete interface for impressed current cathodic protection in concrete. *Constr. Build. Mater.* 185, 57–68.

Hyro-thermal properties of flax fibers-raw earth building materials

Ichrak HAMROUNI

Normandie Université, UNIHAVRE, LOMC, CNRS UMR 6294, Le Havre, France

RESUME

L'objectif de cet article est d'explorer les propriétés hygrothermiques des matériaux composites terre crue-fibres de lin, en tenant compte de l'effet de différents paramètres tels que la teneur en eau, la teneur en fibres, la densité et l'arrangement des fibres. Ce matériau composite est destiné aux BTC (Briques de Terre Compactée). Des essais expérimentaux hygro-thermiques ont été réalisés sur les fibres de lin seules, la terre crue seule et les matériaux composites terre crue-fibres de lin. Les résultats montrent que la conductivité thermique et la capacité thermique des fibres de lin augmentent avec la densité et la teneur en humidité. De plus, quel que soit la densité et l'arrangement des fibres, des relations linéaires ont été trouvées pour la conductivité thermique, la capacité thermique et la perméabilité à la vapeur en fonction de la teneur en eau et la densité respectivement. De plus, l'ajout de fibres de lin a amélioré les propriétés hygrothermiques du matériau composite à base de terre crue.

Mots-clefs : Terre crue, fibres de lin, composite, hygro-thermique.

I. INTRODUCTION

In order to face the environmental and energy challenges, sustainable construction is one of the possible solutions. Sustainable construction requires the use of building materials with low environmental impact. Today, researchers are called upon to find solutions to reduce energy consumption in construction and to improve the hygrothermal comfort of buildings throughout their lifetime. Raw earth is considered as one of the materials to accomplish this challenge. It is an alternative building material that does not consume energy in terms of grey energy, with remarkable mechanical and hygrothermal performances. In this context, hygric and thermal transfers in raw earth materials have been evoked by several researchers. Simons et al (2015) measured the vapor resistance factor of a fiberless soil (0% fibers), with 3% and 6% barley straw. The samples are of densities 1990, 1520 and 1220 kg/m³ respectively. The water vapour resistance factor of these three mixtures is 4.6 for 0% added fibres, 4.7 for 3% added fibres and 6.3 for 6% added fibres. It can be seen that the presence of fibers has a slight influence on the water vapor permeability of the earth-barley straw mix. Phung et al. (2019) evaluated the impact of water and fibers content on the thermal conductivity of different cob formulations. Straw fibers were incorporated into these soils in different amounts, ranging from 0 to 3%. The results revealed that, for both composite materials, the thermal conductivity decreased as the fibers and water contents increased. At 3% fibers content, the thermal conductivity was measured to be 0.65 ± 0.09 W/ (m. K) for the first soil and 0.59 ± 0.05 W/ (m. K) for the second one. Moreover, the water vapor permeability of the first composite raw earth material increased from 2.36×10^{-11} to 2.71×10^{-11} kg/ (m. s. Pa) as the straw content varied from 0 to 3%. Similarly, the second composite material exhibited

an increase in water vapor permeability from 1.90×10^{-11} to 2.05×10^{-11} kg/ (m. s. Pa) when the straw content was varied from 0 to 3%. In addition, [Mazhoud et al \(2021\)](#) studied the effect of adding hemp fibers on the moisture and thermal properties of a clay material. The sorption isotherm, moisture buffering capacity and thermal conductivity were identified. According to their results, the composite material is classified as an excellent moisture and thermal regulator thanks to a range of moisture storage and thermal conductivity values from 2.07 to 2.33 g/ (m². %RH) and 0.089 to 0.12 W/ (m. K) respectively, depending on the hemp fibers content. [Azil et al. \(2022\)](#) conducted a study on the hygrothermal properties of cob and light-earth materials. From the results, the resistance factor to water vapor diffusion values for cob and light-earth are 12.9 and 8.2 respectively. Moreover, they assessed the impact of variations in temperature, relative humidity (RH), and wind velocity on thermal conductivity within a climatic chamber, simulating both winter and summer conditions. The study established a correlation between thermal conductivity, density, and water content. As the water content decreased, the thermal conductivity also decreased, ranging from 1.27 to 0.58 W/ (m. K) during winter and from 1.31 to 0.48 W/ (m. K) during summer for the cob and 0.4 to 0.13 W/ (m. K) during winter and from 0.5 to 0.13 W/ (m. K) during summer for the light-earth. From the results, the evolution of thermal conductivity as a function of density and water content are similar in summer and winter conditions. due to their high fibers content, soil-fibers mixtures present a lower thermal conductivity than Cob or earth bricks.

This study focuses on the hygro-thermal properties of raw earth-flax fibers composite building materials. This material is destined for BTC (Compressed Earth Bricks). First, experimental tests for measuring the thermal conductivity and the heat capacity of flax fibers alone were carried out showing the effect of water content and density on these parameters. Then, these same thermal properties were measured for the composite raw earth-flax fibers, considering separately the influence of the water content and the fibers content. Besides, this paper deals with the hygric characterization of fibers alone and of the composite raw earth-flax fibers. The results have shown that the raw earth-flax fibers composite material has an interesting heat and humidity regulating behavior.

II. Materials and methods

A. Materials

A.1 Flax fibers

The fibers used in this study are quintessential Normandy fibers, measuring 70mm in length. They are characterized by a Young's Modulus ranging from 40 to 80 MPa, an ultimate strain $\epsilon_u = 2.4 - 3.3 \%$ and ultimate stress $\sigma_u = 800 - 2000$ MPa.

B. Silt

The silt used in this study is a local bio-based material from Gonfreville l'Orcher, Le Havre Normandy in France. It is composed of 67% of sand, 25% silt and 8% of gravel. It is classified as a silty sand SL (SM) soil according to the Unified Soil Classification System.

B. Methods

B.1 Samples preparation

B. 1. 1 Flax fibers samples

Flax fibers samples, measuring 40 mm in diameter and 70 mm in length, were putted in a cylindrical PVC tube with the same dimensions. The PVC tube is open at both ends to allow the flux diffusion. The density of flax fibers samples ranges from 100 to 400 kg/m³. This variation in density was investigated to assess its impact on the hygro-thermal properties of the flax fibers.

B. 1. 2 Silt-flax fibers samples

The samples have a diameter of 100 mm and thicknesses of 12 mm and 50 mm for the thermal and hygic tests, respectively. Silt, fibers and water were mixed and then placed in a Proctor mold to be compacted with a static press as shown in FIGURE 1. To investigate the effect of the water content on hydrothermal properties of the raw earth-flax fibers samples, all samples were compacted at $\gamma_d = 17 \text{ kN/m}^3$ and a water content of 14% which are values of the OPN (Normalized Proctor Optimum). Starting from this compaction state, the samples were wetted until full saturation (w_{sat}). Indeed, the fact that γ_d is constant for all the samples, results a constant ratio $\frac{G_s}{e}$ since $G_s = \frac{\gamma_s}{\gamma_w}$ and $e = \frac{\gamma_s}{\gamma_d} - 1$. This constant ratio is included in the equation $S_r = \frac{w \times G_s}{e}$ and it represents the slope of the curve $S_r = f(w)$ (as shown in FIGURE 2). Hence, considering $S_r = 1$, the saturation water content w_{sat} can be determined for a given γ_d . Then the samples were drained (they were placed in the oven at 50°C) until reaching the dry state (when the mass of the sample stabilizes) (FIGURE 3). Throughout these wetting and draining processes, at specific water content levels, the thermal properties of the raw earth-flax fibers samples were measured.

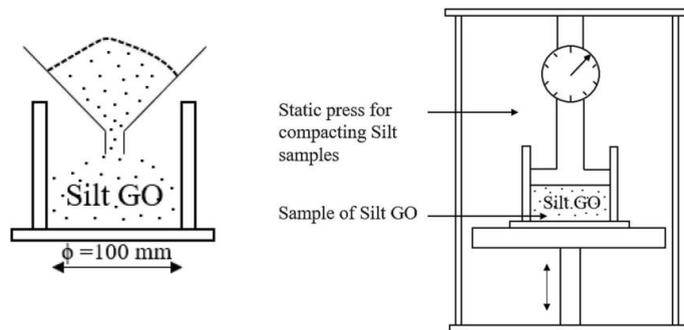


FIGURE 1: (a) Schema of mixed silt with water and versed in a Proctor mold, (b) Schema of sample compacting using a static press [Hamrouni et al., 2023]

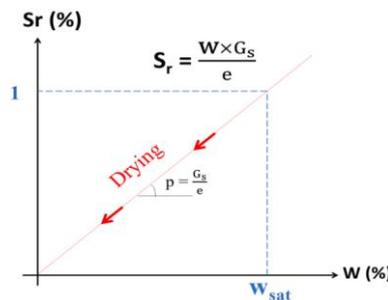


FIGURE 1 : Degree of saturation evolution versus water content [Hamrouni et al., 2024]

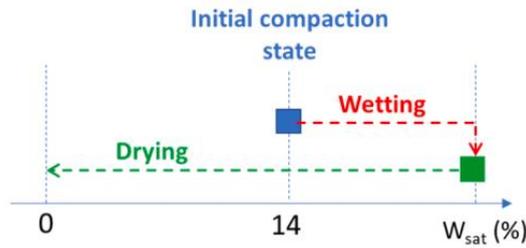


FIGURE 2 : Wetting/Drying processes for varying the water content of raw earth – flax fibers samples [Hamrouni et al., 2024]

B.2 Thermal method

To measure the thermal conductivity and heat capacity of flax fibers individually and raw earth–flax fibers composite samples, the thermal device “Tempos Meter” based on the unsteady state method was used according to the ISO 8894-2 standard. This method consists of introducing a heat source into the sample (either flax fibers or raw earth–flax fibers samples) and then the heat diffusion is recorded by the sensor is both source and sensor of heat. In fact, the temperature measured by the sensor is recorded as a function of time. Then, the thermal conductivity λ [W/ (m. K)] of the sample is calculated from the temperature variation in time and the heat flux:

$$\lambda = \frac{q}{4 \times \pi \times a} \tag{1}$$

- q : Heat flux [W/m]
- λ : Thermal conductivity [W/ (m. K)]
- a : slope of the curve of temperature evolution as a function of $\ln(t)$ [FIGURE 4]

The thermal conductivity is the slope of the temperature evolution as a function of time (FIGURE 3). The “Tempos Meter” device is presented in FIGURE 5.

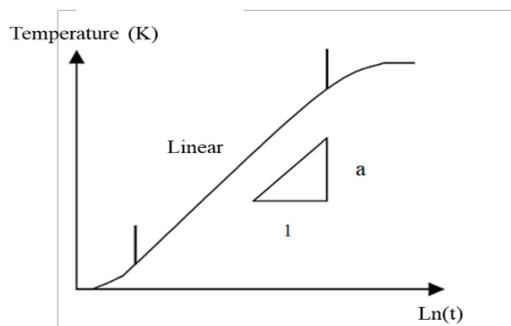


FIGURE 3 : Linear relationship between the temperature and $\ln(t)$

After this, the thermal diffusivity D [m²/s] and the heat capacity c [MJ/ (m³. K)] can be deduced from the equations bellow:

$$\begin{cases} \Delta T = T - T_0 = \left(\frac{q}{4 \pi \lambda}\right) \ln(t) + C \\ c = \frac{\lambda}{D} \end{cases} \tag{2}$$

- T : Temperature [K]

- T_0 : Initial temperature [K]
- t : Time [s]
- $C = -\left(\frac{q}{4\pi\lambda}\right) \left(\gamma + \ln\left(\frac{r^2}{4Dt}\right)\right)$: Constante [K]
- $\gamma = 0.5772$: Euler's constant
- r : Radial distance of heat diffusion [m]

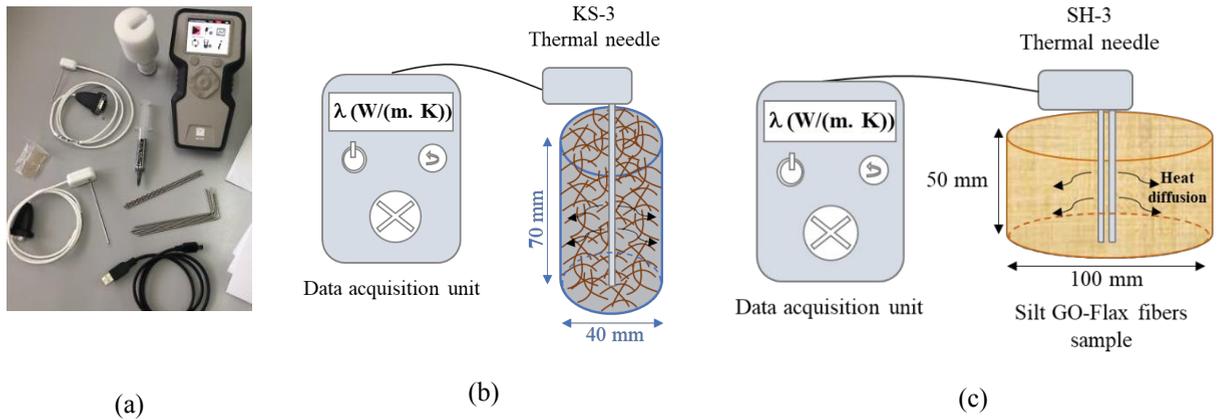


FIGURE 4 : (a) Tempos Meter device, (b) measurement of thermal properties of flax fibers and (c) measurement of thermal properties of raw earth-flax fibers samples

B.3 Hygric method

To measure the water vapor permeability of the raw-earth samples, the Gravitest device were used. The Gravitest is an automated device for measuring water vapor permeability based on the cup method according to the NF EN ISO 12572 standard (FIGURE 6). The principle of this device involves imposing a unidirectional relative humidity gradient under isothermal conditions through a sample. The Gravitest has a capacity for nine cups and represents a climate-controlled chamber in terms of humidity and temperature, with a rotating platform containing the cups. A salt-saturated solution placed at the bottom of the cup allows for imposing a different relative humidity than that of the chamber, leading to a humidity gradient. The tests were carried out using wet cups. At predetermined time intervals, the cups rest on a scale with a precision of 10^{-4} g to measure the variation in vapor mass exchanged during the test. The sample size is 80 mm in diameter and 12 mm in thickness. Recording the curve of vapor mass variation over time allows deducing the vapor permeability δ_v [kg/ (m. s. Pa)] of the sample using Fick's law:

$$\delta_v = e \frac{j_v}{\Delta p_v} = e \frac{j_v}{p_{v2} - p_{v1}} \tag{3}$$

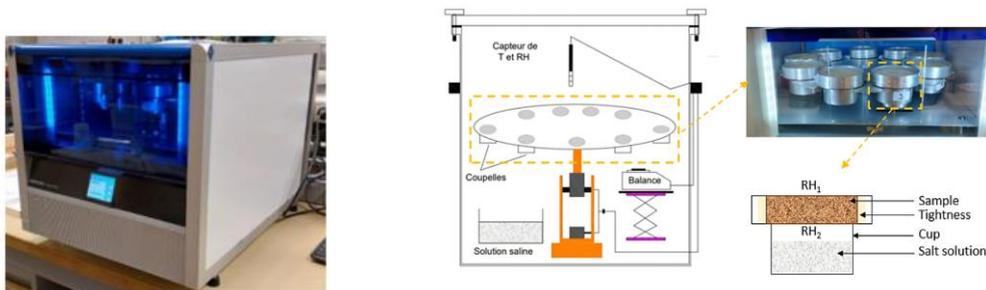


FIGURE 5: Gravitest device

e : sample's thickness [m]

j_v : water vaport flux densité [kg/ (m². s)]

p_v : water vapor pressure [MPa]

III. Results and discussions

A. Thermal results

A. 1 Flax fibers

The effect of water content and fibers density on the thermal conductivity λ [W/ (m. K)] and heat capacity c [MJ/ (m³. K)] of flax fibers was studied using the unsteady state method. For this, the fibers were firstly saturated with water, then, they were putted in centrifuge controlled in speed to vary the water content from saturation to the dry state. FIGURE 7 illustrates the results of thermal conductivity evolution as a function of water content for different densities. The thermal conductivity increases linearly with water content, regardless of the fibers density. As an example, for fibers with a density of 400 kg/m³, the thermal conductivity increases from 0.067 W/ (m. K) to 0.36 W/ (m. K). Indeed, the observed phenomenon can be due to the high heat-diffusing capacity of water, as highlighted by Kallel (2016). The more humid the fibers become, the greater their ability to conduct heat. Moreover, for a given water content, more the density increases, more the fibers conduct the heat. For $w \approx 60\%$, the thermal conductivity varies from 0.058 to 0.24 W/ (m. K). This phenomenon occurs because the increase in density leads to a reduction in the amount of air between the fibers. As air is a better insulator ($\lambda = 0.025$ W/ (m. K), Kallel, 2016) compared to flax fibers, the denser fibers become more efficient in conducting heat.

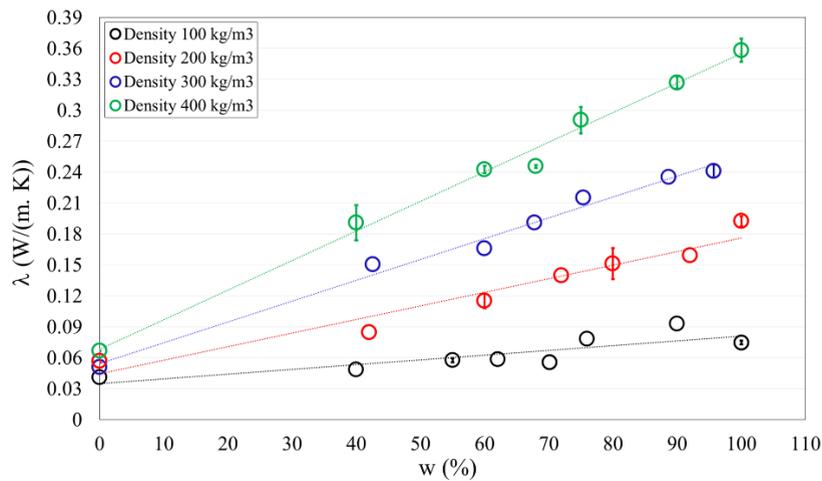


FIGURE 6 : Flax fibers thermal conductivity evolution as a function of water content

The same samples were used to measure their heat capacity using the Tempos Meter device. The results illustrated in FIGURE 8 A linear relationship between heat capacity and water content were observed. For a density of 400 kg/m³, the heat capacity rises from 0.57 to 3,63 MJ/ (m³. K) when water content increases from 0 to 100%. Furthermore, as the density of the samples increases, there is a proportional increase in heat capacity.

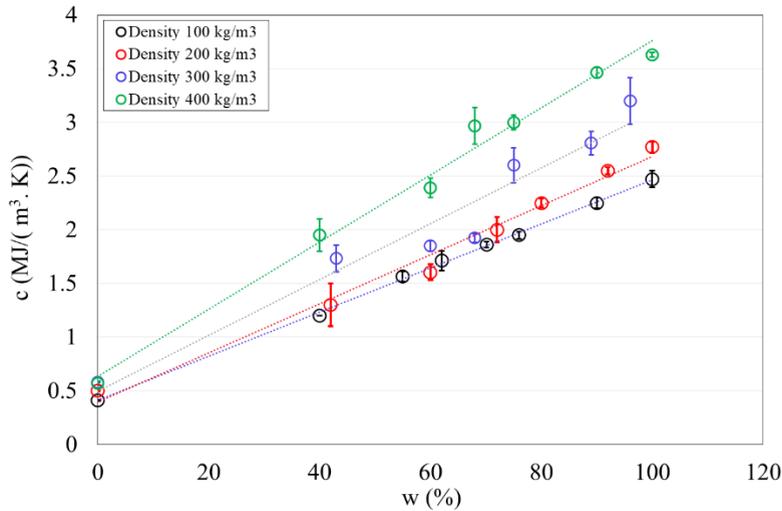


FIGURE 7 : Flax fibers heat capacity evolution as a function of water content

A. 2 Silt-flax fibers composite material

In this section, the effect of the water content on the thermal conductivity of the composite silt-flax fibers were studied for 0%, 1% and 3% of fibers contents. The samples density increases from 17 to 15.6 kN/m³ when the fibers content in the raw earth samples increases from 0 to 3%. The increase of the thermal conductivity as a function of water content was observed, as shown in FIGURE 9. In the case of silt reinforced with 3% of flax fibers for example, the thermal conductivity increases from 0.6 W/ (m. K) to 1.85 W/ (m. K) when the water content increases from 0 to $w_{sat} = 26\%$. This is explained by the significant difference between the thermal conductivities of water and of air. In fact, for water $\lambda = 0.62$ W/ (m. K) whereas the thermal conductivity of air is $\lambda = 0.025$ W/ (m. K) (Kallel, 2016).

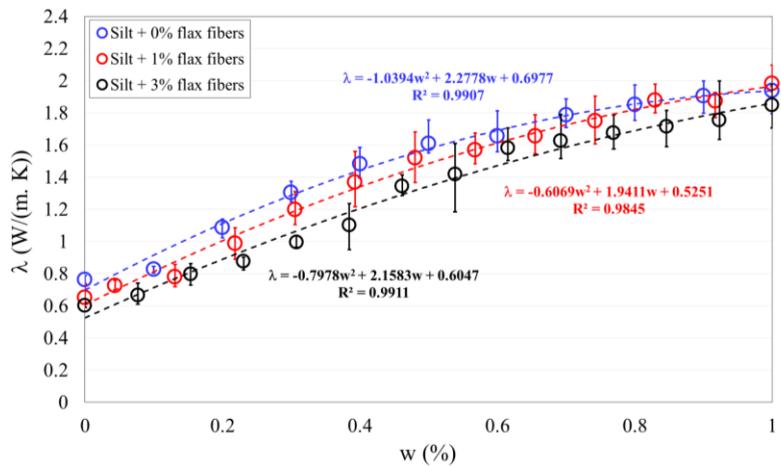


FIGURE 8 : Raw earth-flax fibers thermal conductivity evolution as a function of water content

FIGURE 10 shows the evolution of the heat capacity as a function of water content for fibers contents. Initially, it was anticipated that an increase in fibers content would lead to an improvement in heat storage capacity with an increase in saturation. However, based on the limited range of three considered fibers contents, the expected conclusion does not seem to be definitively supported. In fact, in the case of a 1% fibers content, the heat capacity increases from 1.47 to 3.08

MJ/ (m³. K) when the water content ranges from 0 to w_{sat} = 20%, whereas, when the fibers content is 3%, the heat capacity increases from 1.39 to 2.69 MJ/ (m³. K).

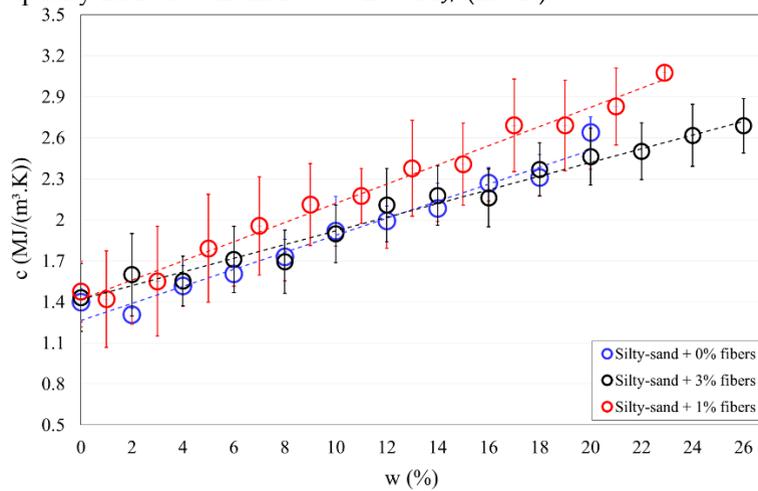


FIGURE 10 : Raw earth-flax fibers heat capacity evolution as a function of water content

B. Hygric results

B. 1 Flax fibers

In order to evaluate the anisotropy of the capacity of flax fibers to diffuse vapor, the water vapor permeability of flax fibres was evaluated for different directions (longitudinal, transversal and random) and densities (100, 200, 300, 400 and 700 kg/ m³). The results showed in FIGURE 11 reveal that as the density of fibers increases, the water vapor permeability decreases. In the case of longitudinal fibers (aligned with the direction of vapor flow), the permeability ranges from 1.11×10⁻¹⁰ to 6.4×10⁻¹¹ kg/ (m. s. Pa) across a density range of 100 to 700 kg/m³. A more significant reduction is observed for transverse fibers (perpendicular to the direction of vapor flow), where permeability decreases from 6.83×10⁻¹¹ to 3.9×10⁻¹¹ kg/ (m. s. Pa). Regarding random fibers, vapor permeability varies from 1.06×10⁻¹⁰ to 4.95×10⁻¹¹ kg/ (m. s. Pa) within the same density range. Additionally, the results underscore the influence of fibers orientation on their ability to allow the passage of water vapor. Fibers aligned with the vapor flow exhibit higher permeability to water vapor (Hamrouni et al., 2023).

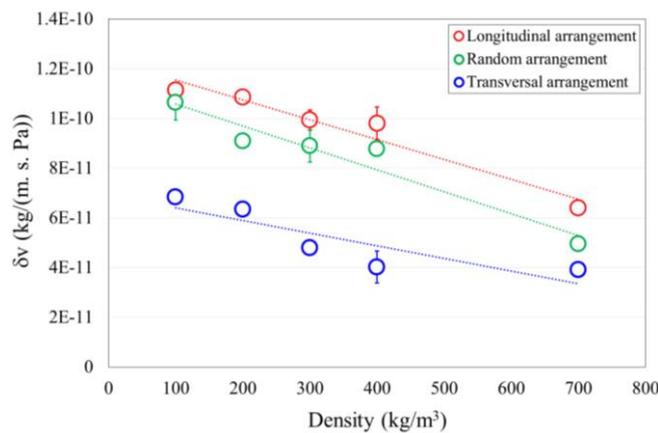


FIGURE 11 : Flax fibers water vapor permeability evolution as a function of density for different arrangements

B. 2 Silt-flax fibers composite material

The water vapor permeability of silt GO reinforced with random flax fibers is determined for different percentages of fibers and arrangements. FIGURE 12 illustrates the results and show that the water vapor permeability of raw earth-flax fibers composite materials increases with fibers content. It increases from 2.73×10^{-11} to 3.9×10^{-11} kg/ (m. s. Pa) when the fibers content ranges from 1 to 5%. These results can be explained by the decrease of the composite raw earth-flax fibers density with the increase of added fibers content which makes the composite more breathable regardless the water vapor.

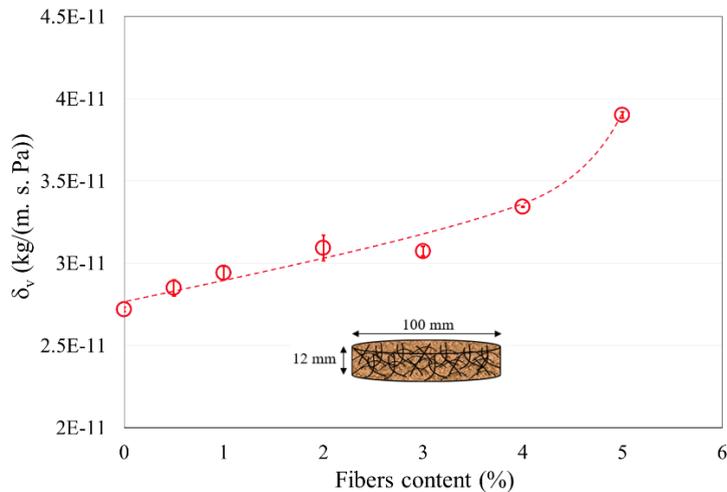


FIGURE 12 : Flax fibers water vapor permeability evolution as a function of density for different arrangements

IV. CONCLUSION

The results obtained in this study show that:

- The thermal conductivity and the heat capacity of flax fibers alone exhibit a linear relationship as a function of water content, regardless of sample density,
- The water vapor permeability of flax fibers decreases with increasing of density regardless of their arrangement (transversal, longitudinal or random). Besides, they highlighted the effect of the arrangement on the ability of fibers to diffuse the vapor.
- The thermal conductivity of the composite increases with the increase of the water content whatever the percentage of added fibers,
- The effect of flax fibers on the heat capacity of the raw earth-flax fibers is no significant,
- The addition of random flax fibers to the raw earth material improves the ability of the material to diffuse the water vapor. In fact, the water vapor permeability of the composite material silt-flax fibers increases with the increasing of fibers content,
- The hygrothermal properties of flax fibers are very interesting and allowing a good hygrothermal comfort,

- The composite of raw earth and flax fibers exhibits significant hygrothermal behavior due to its insulating and breathable properties.
- The mechanical behavior of the composite material remains to be studied in the future.

REFERENCES

- A. Simons, A. Laborel-Préneron, A. Bertron, J-E. Aubert, C. Magniont, C. Roux & C. Roques. (2015). Development of bio-based earth products for healthy and sustainable buildings: characterization of microbiological, mechanical and hygrothermal properties. *Matériaux & Techniques* 103, 206. DOI : <https://doi.org/10.1051/mattech/2015011>,
- B. Mazhoud, F. Collet, S. Pretot & C. Lanos. (2021). Effect of hemp content and clay stabilization on hygric and thermal properties of hemp-clay composites. *Construction and Building Materials*, 300, 123878. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2021.123878>,
- H. Cagnon, J-E. Aubert, M. Coutand, & C. Magniont. (2014). Hygrothermal properties of earth bricks. *Energy Buildings*, 80, 208–217, DOI: [10.1016/j.enbuild.2014.05.024](https://doi.org/10.1016/j.enbuild.2014.05.024),
- R. Allam, N. Issaadi, R. Belarbi, M. El-Meligy, & A. Altahrany. (2018). Hygrothermal behavior for a clay brick wall. *Heat and Mass Transfer/Waerme- Und Stoffuebertragung*, 54(6), 1579–1591. DOI : [10.1007/s00231-017-2271-5](https://doi.org/10.1007/s00231-017-2271-5),
- H. Kallel. (2016). Influence de la température et de l'hygrométrie sur le comportement instantané du béton [Influence de la température et de l'hygrométrie sur le comportement instantané du béton], Université of Pau et des Pays de l'Adour, Pau, France, PhD Thesis,
- I. Hamrouni, T. Ouahbi, A. El Hajjar, S. Taibi, M. Jamei, & H. Zenzri. (2023). Water vapor permeability of flax fibers reinforced raw earth: Experimental and micro-macro modelling. *European Journal of Environmental and Civil Engineering*, DOI:[10.1080/19648189.2022.2123857](https://doi.org/10.1080/19648189.2022.2123857),
- I. Hamrouni, H. Jalili, T. Ouahbi, S. Taibi, M. Jamei, & A. Mabrouk. (2024). Thermal properties of a raw earth-flax fibers building material. *Construction and Building Materials*, 423, 135828, <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2024.135828>
- O. Azil, K. Touati, N. Sebaibi, M. Le Guern, F. Streiff, S. Goodhew, M. Gomina, & Boutouil M. (2022). Monitoring of drying kinetics evolution and hygrothermal properties of new earth-based materials using climatic chamber simulation. *Case Studies in Construction Materials* 18 e01798, DOI: [10.1016/j.cscm.2022.e01798](https://doi.org/10.1016/j.cscm.2022.e01798),
- T-A. Phung, M. Le Guern, M. Boutouil, & H. Louahlia. (2019). Hygrothermal Behaviour of Cob Material. *Earthen Dwellings and Structures, Springer Transactions in Civil and Environmental Engineering*, DOI: [10.1007/978-981-13-5883-8_30](https://doi.org/10.1007/978-981-13-5883-8_30),

Modeling and experimental investigations of hydration and physical properties of slag blended cement after long curing period

Mohamad Ali Ahmad

Nantes Université, Ecole Centrale Nantes, CNRS, GeM, UMR 6183 F-44600 Saint-Nazaire, France

RESUME Le laitier de haut fourneau, un sous-produit du processus de fabrication de l'acier, peut être utilisé comme addition minérale dans les ciments composés. Outre la réduction des émissions de CO₂ dans la construction des ouvrages en béton, l'utilisation du laitier dans les matériaux cimentaires peut aussi contribuer à améliorer leurs propriétés de durabilité. Malgré de nombreuses études sur les propriétés d'hydratation des ciments à base de laitier, certains aspects, tels que l'influence du taux de substitution en laitier sur la cinétique d'hydratation, sur et sur les propriétés microstructurales restent encore mal compris. Cette étude est une contribution à une meilleure compréhension de l'hydratation des ciments au laitier à travers la mise en œuvre d'un modèle d'hydratation intégrant à la fois cinétique et réactions chimiques. Les données d'entrée requises sont les paramètres de formulation (rapport eau/liant, taux de substitution du clinker par le laitier) et le type de cure. Le modèle reproduit bien les évolutions du degré d'hydratation, les quantités d'hydrates ainsi que des densités sèches issues de la littérature ou mesurées expérimentalement sur des formulations de pâtes de ciment contenant respectivement 0%, 30%, 50% et 80% de laitier.

Mots-clefs Ciment à base du laitier de haut fourneau, degré d'hydratation, microstructure, modèle d'hydratation.

I. INTRODUCTION

In a world moving towards more eco-friendly construction, one of the primary challenges in terms of ecological sustainability for the coming decades is to design and produce concretes with less clinker and lower CO₂ emissions while ensuring enhanced durability. Blast Furnace Slag (BFS), a non-metallic mineral by-product of iron production, is widely used in the cement due to its advantageous properties. Studies have explored blending Portland cement with BFS to enhance overall structural performance. Benefits include low heat of hydration (Ben Fraj et al., 2019; Özbay et al., 2016), high chloride resistance (Ben Fraj et al., 2012; Touil et al., 2022), improved compressive strength, and durability (Dhir et al., 1996; Luo et al., 2003).

Knowing that the chemical composition of BFS is closely to that of Ordinary Portland Cement (OPC), its activation typically requires a basic agent, like alkaline (sodium or calcium), sulfatic (gypsum), sulfate-calcium, or sulfate-sodium activation (Cheng et al., 2005; Hadj-sadok et al., 2011; Shi-Ping and Grandet, 1989). This study considers calcium activation using Portlandite Ca(OH)₂ generated during clinker hydration.

Despite numerous studies on slag-blended cement hydration processes, understanding the effects of clinker substitution rates by slag on kinetics, mechanisms, and microstructural properties

remains incomplete. The present study aims at filling this gap by involving hydration model that takes both kinetic and chemical aspects into account.

Various approaches for predicting hydration kinetics have been developed in the literature, including analytical and numerical methods. Analytical models, such as those proposed by (Knudsen, 1984; Merzouki et al., 2013), accurately simulate the kinetics evolutions of low slag substitutions but underestimate for higher amounts. Numerical models, like those by (Kolani et al., 2012; Kolani, 2012; Wang, 2021; Wang et al., 2010), use mass and heat balance equations coupled with thermodynamic calculations (Elakneswaran et al., 2016) but referring to the authors themselves, it may overestimate hydration degrees for high slag replacements.

Chemical reaction descriptions have been approached stoichiometrically, but some models lack consideration for hydration evolution over time. Multi-component hydration models, such as (Jennings and Johnson, 1986), HydratiCA (Bullard, 2007), and CEMHYD3D (Bentz and Bentz, 2000), use geochemical approaches with different discretization methods. These models are considered as time consuming.

It is worth noting that this article is a part of my thesis research, which involves developing a comprehensive model starting by exploring the hydration process, continues with an analysis of microstructure, and further investigates transport properties like gas permeability and chloride diffusion. These aspects will be integrated with the chloride fixation isotherm to form a complete and comprehensive coupled model to understand the initiation of corrosion within a blended cement, particularly in a tidal bed, while considering different tidal cycles (Reuge et al., 2023).

In this regard, this study aims at achieving a better comprehension of the long-term characteristics of BFS-blended cement through the development of a hydration model considering both kinetics and chemical reactions with few input data. Through this objective, the study aims to contribute valuable insights into the long-term performance of BFS-blended cement by integrating hydration kinetics, chemical reactions, and physical property estimation. Analytical models are proposed for predicting hydration kinetics, validated and calibrated through experimental results from Thermal Gravimetric Analysis (TGA). TGA is used to estimate the hydration degree of cement paste incorporating various slag rates at different ages. A modified version of the stoichiometric model proposed by (Kolani et al., 2012), allowing to predict the consumed Portlandite content without the passing through a numerical resolution of a system of equations of mass and heat balances is used to describe the chemical reactions during the hydration process. The output data of the model includes hydrated and anhydrous phases and dry densities. The approach is validated experimentally and based on literature findings of different formulations. The proposed model is able to predict the properties of any BFS blended formulations even at long-term.

II. Hydration model

a. Kinetic model:

In the literature (Deboucha et al., 2017; Lang et al., 2019; Stephant et al., 2014), the mean hydration degree (α) of a slag-blended cement is calculated as a weighted average of clinker and slag hydration degrees, denoted as f_c and f_s , respectively, in Equation 1. As already mentioned previously, α is estimated through the TGA method based on prior research conducted in the laboratory.

$$\alpha = f_c \times \alpha_c + f_s \times \alpha_s \quad \text{Equation 1}$$

For predicting the hydration degrees of clinker and slag, the Avrami exponential-type function (Avrami, 1941, 1940, 1939) is chosen due to its suitability for describing nucleation and growth reactions. This model is expressed in Equation 2, where α_i represents clinker or slag, $\alpha_{i,\max}$ is the ultimate hydration degree, S_i is a rate constant, and n_i is an exponent combining time dependencies.

$$\alpha_i = \alpha_{i,\max} \times [1 - \exp(-S_i \times (t)^{n_i})] \quad (i = c \text{ for clinker or } s \text{ for slag}) \quad \text{Equation 2}$$

The ultimate hydration of clinker ($\alpha_{c,\max}$) is determined using a relationship proposed by (Waller, 1999) (Equation 3).

$$\alpha_{c,\max} = 1 - \exp(-D \times (W/C)) \quad \text{Equation 3}$$

In parallel, the evolution of $\alpha_{s,\max}$ with respect to the substitution rate of clinker by slag is not clearly established in the literature; hence, a linear evolution is proposed. Once the two ultimate hydration degrees are determined, the two parameters S_i and n_i , for both clinker and slag, can be calibrated and are assumed to vary following a linear regression with respect to the slag content as demonstrated in (Ali Ahmad et al., 2024) by minimizing squared deviations between predicted and estimated values of α at different ages from TGA on the various cement paste formulations.

b. Chemical model:

The study utilizes stoichiometric calculations developed by (Kolani et al., 2012; Kolani, 2012) to describe chemical reactions during the hydration of slag-blended cements. The calculations consider two categories of hydrates formed during clinker and slag hydration. The concentrations of hydrated and anhydrous phases are expressed as functions of time, allowing for the determination of mass and volume of these phases. The study decouples kinetics and chemical aspects for simplified analytical resolution, different from the coupled approach by Kolani.

$$m_{i,\text{hydrated}} = \alpha_i \times m_{i0} \quad \text{Equation 4}$$

$$m_{i,\text{non-hydrated}} = (1 - \alpha_i) \times m_{i0} \quad \text{Equation 5}$$

where $m_{i,0}$ represents the initial mass introduced in the mixture for each component i (clinker or slag). Depending on the chemical composition of cement and slag, the amounts of hydrated oxides are calculated using the following equation:

$$[j]_{\text{hydrated},i} = m_{i,\text{hydrated}} \times F_{j,i} / M_j \quad \text{Equation 6}$$

where j represents the different oxides in the anhydrous phases. $[j]_{\text{hydrated},i}$ is the molar concentration (mol/g) of the hydrated oxide j in the initial introduced mass of component m_{i0} ; $F_{j,i}$, and M_j represent the percentage of the oxide j in the binder i , and the molar mass of j (g/mol), respectively. The stoichiometric equations are detailed in Kolani's thesis (Kolani, 2012). For clinker, the hydration results various hydrates such as calcium silicate hydrates (CSH), Portlandite (CH), Ettringite (AFt), and Monosulfoaluminate (AFm). The hydration of slag consumes a part of this produced CH, however this quantity cannot be determined. In this regard, we simplify the estimation of remaining Portlandite ($[CH]_{c,\text{remaining}}$) by assuming it is proportional to the already estimated Portlandite reported in (Kolani, 2012) and noted as $[CH]_{c,\text{formed}}(t)$.

$$[CH]_{c,\text{remaining}}(t) = \lambda \times [CH]_{c,\text{formed}}(t) \quad \text{Equation 7}$$

The coefficient of proportionality (λ) is determined by comparing available CH levels from TGA and model predictions (Figure 1), resulting in a found value of λ equal to 0.8. A lower λ is expected, indicating that only 20% of Portlandite generated by clinker hydration is assumed to be consumed by slag hydration. This may be due to the potential underestimation of CH formation during clinker hydration, which relies solely on the chemical composition of the clinker. The influence of slag is

considered through the substitution rate, but the complex interactions between clinker and slag will be considered in future studies.

The evolution of slag hydrates, including calcium aluminate silicate hydrates (CASH), Hydrotalcite (HT), Ettringite (Aft), and Hydrogarnet (AH), is also calculated following the stoichiometric equations reported in (Kolani, 2012) and depending on many ratio; where $(A/S)_{sc}$ represents the molar ratio A/S formed by the slag in the presence of clinker. It is estimated by (Richardson, 1999) by the following relationship:

$$(A/S)_{sc} = (1/4.732) \times [1 - 0.4277 \times (C/S)_s] \quad \text{Equation 8}$$

Based on the findings of (Adenot, 1992) and (Brouwers, 2004) which are adopted by (Kolani et al., 2012) the following relation is considered: $(C/S)_s = (H/S)_s = 1.14$. Knowing that $(H/S)_s$ is the water demand of the CASH of the slag alone. The knowledge of this parameter allows quantifying the reacted water with the CASH. The quantification of the reacted water with all the hydrates leads to the identification of the free water quantity available at each time, allowing further prediction of the porosity. In the case of BFS-blended cement, the water demand of CASH formed by the hydration of the slag in the presence of the OPC is evaluated by a linear interpolation between the water demand of CSH_c of the OPC and that of $CASH_s$ of the BFS.

$$(H/S)_{sc}(t) = (C/S)_{sc}(t) + 1.45 \times ((C/S)_{sc}(t) - (H/S)_s(t)) \quad \text{Equation 9}$$

where the $(C/S)_{sc}$ takes into consideration both hydrates, CSH and CASH, as follows:

$$(C/S)_{sc}(t) = (C/S)_c \times k_c(t) + (C/S)_s \times k_s(t) \quad \text{Equation 10}$$

It is important to clarify that the formation of the CASH requires the presence of a source of calcium. In the studied formulation, the two sources are the $[CH]_{c, \text{remaining}}$, and $[C]_{\text{hydrated},s}$. It is worth noting that (Kolani et al., 2012; Kolani, 2012) considered these two equations related directly to the remaining quantity of Portlandite and calcium oxide in the slag. However, as the proportions of Portlandite and calcium in hydrated slag are simply identified with time in this study, k_c and k_s are proposed to satisfy the calcium demand of slag hydrates, to consume the necessary calcium, in proportion to the quantities available in each source as follows:

$$k_c(t) = [CH]_{\text{consumed}}(t) / ([CH]_{\text{consumed}}(t) + [C]_{\text{hydrated},s}(t)) \quad \text{Equation 11}$$

$$k_s(t) = [C]_{\text{hydrated},s}(t) / ([CH]_{\text{consumed}}(t) + [C]_{\text{hydrated},s}(t)) \quad \text{Equation 12}$$

Finally, the mass and volume of the hydrates are calculated by multiplying the molar content by either the molar mass or the molar volume, respectively, as shown in the following equations:

$$m_{h,i}(t) = M_h \times [h]_i(t) \quad \text{Equation 13}$$

$$V_{h,i}(t) = V_{m,h} \times [h]_i(t) \quad \text{Equation 14}$$

where h , $[h]_i$, M_h , and $V_{m,h}$ are the hydrates, the content of this hydrate h in the component i , the molar mass and the molar volume of the hydrate h respectively. The evolution of the remaining Portlandite with respect to the solid mass available at time t is also taken into consideration, to be compared at a later stage to the results of the TGA measurements. In order to estimate it, the following equation is proposed:

$$\%m_{CH_{\text{remaining}}}(t) = m_{CH_{\text{remaining}}}(t) / [\sum(m_{i,\text{hydrated}}(t) + m_{i,\text{non-hydrated}}(t) - m_{(rw)_i}(t))] \quad \text{Equation 15}$$

where $m_{rw,i}$ represents the mass of the reacted water of each hydrate of the binder i at time t . It can be calculated from the quantity of the reacted water in moles per mole of hydrate " $n_{(rw)_h}$ " in each binder, which can be identified from the chemical formula of the hydrate. Then the sum of the reacted water at time t can be given as follow:

$$\sum m(\text{rw})_i(t) = n(\text{rw})_h \times [h]_i(t) \times M_{\text{H}_2\text{O}} \quad \text{Equation 16}$$

where $M_{\text{H}_2\text{O}}$ is the molar mass of water (18 g/mol).

Concerning the dry density, which represents the mass of solid phases corresponding to a given volume, it can also be estimated with the model using the following equation:

$$Q_{\text{dry}}(t) = \sum (m_{h,i}(t) + m_{i,\text{non-hydrated}}(t)) / (V_{\text{total}}) \quad \text{Equation 17}$$

For the estimation of the capillary porosity, the calculation of the capillary pores volume is required and given in the following equation:

$$V_{\text{cap pores}} = \sum (V_{i0} + V_{\text{entrapped air}}) - (V_{h,i}(t) + V_{i,\text{non-hydrated}}(t)) \quad \text{Equation 18}$$

where V_{i0} , $V_{i,\text{non-hydrated}}$, and $V_{\text{entrapped air}}$ are the initially introduced volume, the volume of the non-hydrated phases of the binder i , and the volume of the entrapped air, respectively.

$$V_{i0} = m_{i0} / Q_i \quad \text{Equation 19}$$

$$V_{i,\text{non-hydrated}}(t) = m_{i,\text{non-hydrated}}(t) / Q_i \quad \text{Equation 20}$$

$V_{\text{entrapped air}}$ is measured experimentally and is found varying around 3.57% of the initially introduced volume V_{i0} . The capillary porosity can then be written as follow:

$$\Phi_{\text{cap}}(t) = V_{\text{cap pores}} / (V_{i0} + V_{\text{entrapped air}}) \quad \text{Equation 21}$$

The study provides equations for calculating the mass and volume of hydrates, remaining Portlandite, dry density, and capillary porosity over time in slag-blended cement. The model's parameters are derived from experimental data and calibrated to match TGA results.

III. Experimental procedure and characterization methods

a. Materials

The experimental campaign involves studying slag-based cement pastes with different substitution rates by mass of clinker (CEM I 52.5 N SR5 PM-CP2 HTS cement by Lafarge from Le Teil (France), with a density of 3.17 g/cm³), by BFS (Produced by Ecocem in Dunkerque, France with a density of 2.9 g/cm³): 0% (P0), 30% (P30), 50% (P50), and 80% (P80). A constant water-to-binder ratio (W/B) of 0.5 is maintained for all formulations, enabling comparisons with a normalized mortar. The four cement paste mixtures were cast into 40*40*160 mm³ molds according to the standard (NF EN 196-3, 2017). After casting, plastic films were placed over the molds for 24 hours to reduce water evaporation. Following the demolding process, the samples were immersed in water to achieve saturation, hence enhancing the hydration reactions.

b. Thermogravimetric Analysis

TGA allows both the calibration of kinetic model parameters and the validation through the quantification of certain phases such as Portlandite; it is conducted on ground powder having a particle size lower than 0.4 μm in a nitrogen atmosphere. The apparatus used is a TG/DSC-1, STARE Software 9.30, Mettler-Toledo, with a balanced accuracy of 0.1 μg. All the samples are decomposed during a dynamic heating ramp ranging between 20 and 1025 °C at a rate of 5°C/min. The powder was not dried prior to TG tests to avoid hydrate instability (Baroghel-Bouny, 2004; Deboucha et al., 2017; Taylor, 1997).

The decomposition of cement hydrates is observed during TGA by decreased endothermic peaks on the derivative TGA. The cement hydrate decomposition may be divided into three stages:

- between 25 and 400 °C:
 - Removal of the evaporable water (25 to 105°C)
 - dehydration reaction of CSH and CASH noted as "Ldh" (105 to 400 °C)

- between 400 and 600 °C: dehydroxylation of Portlandite, noted as “Ldx”
- between 600 and 800 °C: decarbonation of CaCO₃, noted as “Ldc”

Furthermore, the temperature ranges of each phase vary from one author to another, with low differences depending on the machine used (Bhatty, 1986; Deboucha et al., 2017; Monteagudo et al., 2014). Based on TG results, a method developed by (Monteagudo et al., 2014) and recently improved by (Deboucha et al., 2017) is used to estimate the mean value of hydration degree. Such a method is based on a measurement of the chemically bound water of mineral additions blended into cement paste at time t “W_B(t)” with respect to the ultimate chemically bound water (W_{B∞}) and mass of equivalent binder (L_{eq}) in the sample as described in Equation 22.

$$\alpha = (W_B(t)) / (W_{B\infty} \times L_{eq}) \quad \text{Equation 22}$$

W_{B∞} (g) is considered equal to 0.24, as assumed by several authors (Deboucha et al., 2017; Monteagudo et al., 2014). The mass of equivalent binder L_{eq} (g) is calculated as Equation 23 by introducing the activity coefficient K = 0.9 for the studied slag according to EN NF 206-1 and NF P18-305 standards (EN NF 206-1, 2004; NF P18-305, 1996).

$$L_{eq} = m_c + K \times m_s \quad \text{Equation 23}$$

The calculation methods for m_c and m_s are given in Equation 24 & Equation 25.

$$m_c = [m_{\text{sample}} - m_B \times (f_s + W/B)] / [(1 + LOI_c)] \quad \text{Equation 24}$$

$$m_s = [m_{\text{sample}} - m_B \times ((1 - f_s) + W/B)] / [(1 + LOI_s)] \quad \text{Equation 25}$$

where m_B, f_s, W/B, and LOI represent: the binder mass (g), the replacement rate of OPC by slag, the water/binder ratio, and the loss on ignition, respectively. W_B can be calculated as follows:

$$W_B(t) = L_{dh} + L_{dx} + 0.41(L_{dc} - L_{dcs}) - (m_c \times LOI_{cc} + m_s \times LOI_{sc}) + m_d \quad \text{Equation 26}$$

where L_{dcs}, LOI_{ic}, and m_d are the relative mass losses during the decarbonation phase (between 600 and 1000°C) of the anhydrous material, the loss on ignition of anhydrous powder mass, and the device’s drift, which is the mass variation of an empty crucible (g) subjected to a high temperature, respectively. The constant “0.41” represents the conversion factor, which allows assuming the bound water is derived from carbonated Portlandite (Deboucha et al., 2017).

The determination of the experimental content of Portlandite at a given period of time t with respect to the dry mass is also possible. It is given by following the equation, based on TGA:

$$\%Ca(OH)_2(t) = (L_{dx} \times M_{Ca(OH)_2}) / (m_{600^\circ C} \times M_{H_2O}) \quad \text{Equation 27}$$

c. Dry density and porosity

The dry density and the water porosity are assessed following the procedure outlined in the French standard (AFNOR, 2022) and calculated using the formula:

$$\Phi = (m_{\text{sat}} - m_{\text{dry}}) / (m_{\text{sat}} - m_{\text{hydro}}) \quad \text{Equation 28}$$

$$q_{\text{dry}} = (m_{\text{dry}}) / (m_{\text{sat}} - m_{\text{hydro}}) \quad \text{Equation 29}$$

where Φ, m_{sat}, m_{dry}, m_{hydro} and q_{dry} are the porosity, sample saturated mass, the dry mass measured after drying at 105°C, the hydrostatic mass and the dry density respectively.

IV. Results and discussion

a. Hydration kinetics

In general, the hydration kinetics of BFS is slower than that of OPC. Figure 1 illustrates the hydration kinetics for four cement paste formulations (P0, P30, P50, and P80) over 960 days. The initial dilution effect of slag is evident, with lower hydration degrees at 7 days (0.67, 0.54, 0.53, and

0.38 for P0, P30, P50, and P80, respectively). Despite increased values between 7 and 360 days (0.91, 0.83, 0.73, and 0.49); the dilution effect persists, as indicated by the stable CH amount.

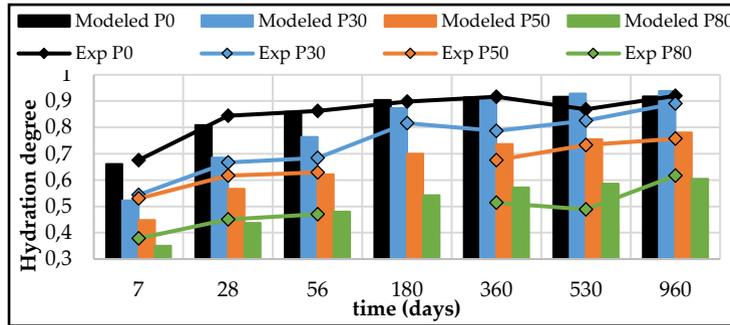


Figure 1. Hydration degree based on TGA used to calibrate the model

At 530 days, hydration degrees for slag-blended cement pastes, especially P30, notably increase, becoming comparable to P0. The hydration degrees at 530 days are 0.87, 0.89, 0.76, and 0.62 for P0, P30, P50, and P80, respectively. Beyond this point, P0 and P30 exhibit similar hydration degrees, while P50 and P80 remain lower. After 960 days, the hydration degrees for P0, P50, and P80 are 0.92, 0.90, 0.73, and 0.53, respectively. The decrease reported for P80 between 530 and 960 days may be due to measurement uncertainty, though it suggests stabilization. Hydration kinetics reveal that P0 reaches a hydration degree of 0.86 at 90 days, slowly increasing to 0.9 at 180 days before stabilizing. Slag-blended cement shows a steep increase until 90 days, with a slower rate after 90 days, indicating prolonged hydration up to 960 days. The kinetics shift, highlighting increased slag hydration over time.

Calibrating parameters, reported in details in (Ali Ahmad et al., 2024), for clinker and slag hydration kinetics are achieved using experimental results. For clinker, coefficients a_{nc} , b_{nc} , a_{sc} , and b_{sc} are determined from P0 results. The dilution effect is consistent with increased accessibility of water for clinker hydration with higher BFS content. Parameters n_c , S_c , and $\alpha_{c,max}$ are calibrated using P0, while coefficients a_{ns} , b_{ns} , a_{ss} , b_{ss} , $a_{\alpha s}$, and $b_{\alpha s}$ are calibrated from P30, P50, and P80 results. These coefficients show significant variations with slag content, representing complex physico-chemical mechanisms.

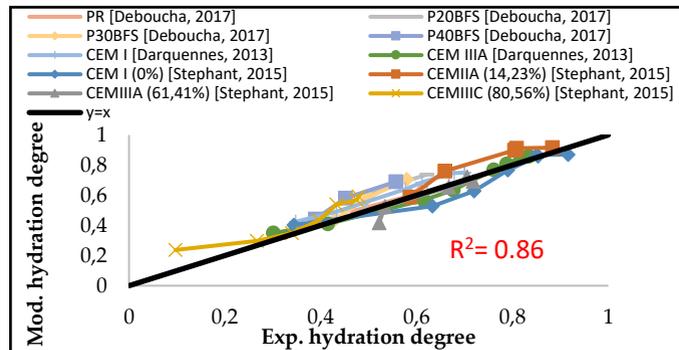


Figure 2. Model validation based on experimental hydration degrees from literature

In order to validate the hydration kinetic models proposed in this study, a comparison between experimental data reported from the literature and the predicted ones was made and presented in

Figure 2. The various tested mixes in terms of W/B ratio, curing type and duration, binder compositions, and BFS content, are recorded in TABLE 1.

TABLE 1. Parameters used in the literature

Reference	W/B	Cure time (days)	Cure type	BFS content (%)
(Stephant et al., 2014)	0.41 and 0.43	1; 3; 7; 28; 180; 360; 730	Water	0; 14.26; 61.41; 80.56
(Darquennes et al., 2013)	0.45	0.5; 2; 5; 21; 42; 215; 420; 1970; 4090	Air	0; 42
(Deboucha et al., 2017)	0.35	7; 28; 90	Air	0; 20; 30; 40

b. Hydrates content and model's validation

In the initial phase, the study focuses on the evolution of CH in various cement paste mixes, as depicted in Figure 3. The measurements based on TGA results, reveal interesting patterns.

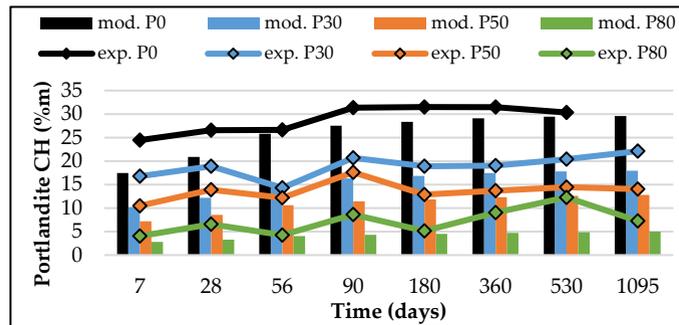


Figure 3. Experimental and modeled CH content used to calibrate (P80) and validate the model (P30 & P50)

For the P0 formulation, CH content increases from 23.40% to 30.15% at 7, 56, and 90 days, stabilizing thereafter. Typically, completely hydrated OPC generates around 20 to 25 wt.% Ca(OH)₂. However, this weight percentage is relative to the binder mass. The introduction of slag results in a drop in generated Portlandite due to the early-age slag dilution effect, as observed in P30, P50, and P80 formulations (Figure 3). Available Portlandite content increases for all formulations up to around 90 days, aligning with hydration degree evolution. The stabilization of available CH over time suggests a constant ratio between CH formed by clinker hydration and the remaining ratio after slag hydration, supporting the proportionality assumption in Equation 7, where the coefficient of proportionality (λ) is calibrated using P80 formulation. It is then validated against P30 and P50 formulations, along with 86 literature results with BFS content ranging from 0 to 80.56%, (Ali Ahmad et al., 2024). However, it is acknowledged that Equation 7 may not perfectly capture short-term slag-based cement hydration, as some studies report CH content increasing and then decreasing at early ages, a trend not precisely described in the model. Despite this, it effectively reproduces the overall trend of experimentally measured Portlandite evolution, particularly at long-term intervals.

Additionally, given its ability to calculate the amount of both hydrated and anhydrous phases, the hydration model can estimate the dry density as described in Equation 17. It is important to highlight that the accurate prediction of dry densities, as demonstrated in Figure 4, serves as an additional validation of the calculations of anhydrous phases and hydrates, beyond just Portlandite. These include hydrates like CASH or Aft, which might pose challenges when it comes to experimental quantification. Figure 4 highlights that increasing slag content leads to a decrease in dry density due to higher amounts of anhydrous phases. Such result is expected since they are consistent with lower hydration degrees previously shown in Figure 1, leading to a higher

anhydrous phases. The dry density of P0 formulation increases significantly until 28 days and then tends to stabilize while a slower but progressive increase is observed for cement pastes formulated with slag. This is attributed to the formation of new hydrates able to fill the existent pores, leading to a decrease in the void ratio and then an enhancement in density, as reported in (Song et al., 2000).

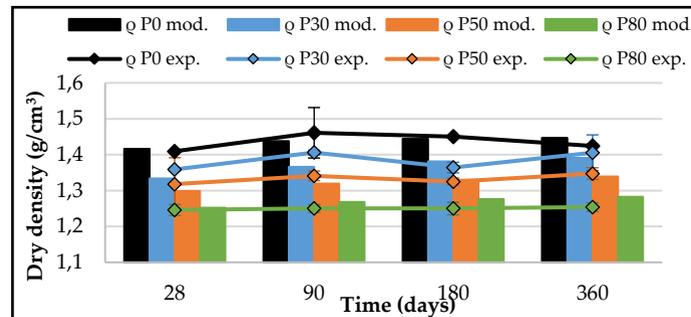


Figure 4. Comparison between experimental and modeled dry density (model validation)

Finally, concerning the porosity, the prediction of capillary porosity ((Equation 21) is discussed in relation to hydration, emphasizing the challenge of accurately estimating total porosity due to the influence of slag on intra-hydrate porosity of CSH and CASH. Contradictory information about CASH porosity in the literature leads to the consideration of only capillary porosity in this model, in this regard, deeper investigations taking into account the effect of slag on the intra-hydrates porosity are being conducted and will be considered during the oral presentation and published in further works.

V. Conclusion

This study enhances our understanding of BFS-blended cement hydration mechanisms by developing a comprehensive model that considers both kinetics and chemical reactions. The proposed approach requires minimal parameters associated with formulation characteristics. The key findings include the description of hydration kinetics using adapted Avrami's exponential models, chemical reactions using a modified version of Kolani's stoichiometric model, and successful calibration based on experimental data from various slag ratios.

The model reproduces essential output data, such as hydration degree evolution, hydrated phases, and dry densities. Further investigation is needed to understand the impact of different slag ratios on the porous structure of CSH and CASH. Future studies may explore combining this model with thermodynamic approaches for a detailed understanding of slag hydration activation and concrete early age cracking risk quantification.

VI. Acknowledgments

I would like to explicitly thank the Association Universitaire de Génie Civil (AUGC) for their support of my mobility, as well as the Unité de Technologie et de Recherche en Ingénierie Verte (UTR INGVER) of the GeM laboratory.

VII. REFERENCES

- Adenot, F., 1992. Durabilité du béton : caractérisation et modélisation des processus physiques et chimiques de dégradation du ciment (thesis). <http://www.theses.fr>. Orléans.
- AFNOR, 2022. Essai Pour Béton Durci—Essai de Porosité et de Masse Volumique—NF P18-459.

- Ali Ahmad, M., Ranaivomanana, H., Bonnet, S., Buttin, P., L'Hostis, V., 2024. Contribution to a better understanding of long-term hydration, structuration and mechanical properties of slag based cementitious materials: Experimental and modeling approaches. *Construction and Building Materials* 411, 134664. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2023.134664>
- Avrami, M., 1941. Granulation, Phase Change, and Microstructure Kinetics of Phase Change. III. *The Journal of Chemical Physics* 9, 177–184. <https://doi.org/10.1063/1.1750872>
- Avrami, M., 1940. Kinetics of Phase Change. II Transformation-Time Relations for Random Distribution of Nuclei. *The Journal of Chemical Physics* 8, 212–224. <https://doi.org/10.1063/1.1750631>
- Avrami, M., 1939. Kinetics of phase change. I General theory. *The Journal of chemical physics* 7, 1103–1112.
- Baroghel-Bouny, V., 2004. Which toolkit for durability evaluation as regards chloride ingress into concrete? Part II: Development of a performance approach based on durability indicators and monitoring parameters, in: *Third International RILEM Workshop on Testing and Modeling Chloride Ingress into Concrete*. pp. 137–163.
- Ben Fraj, A., Bonnet, S., Khelidj, A., 2012. New approach for coupled chloride/moisture transport in non-saturated concrete with and without slag. *Construction and Building Materials* 35, 761–771. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2012.04.106>
- Ben Fraj, A., Bonnet, S., Leklou, N., Khelidj, A., 2019. Investigating the early-age diffusion of chloride ions in hardening slag-blended mortars on the light of their hydration progress. *Construction and Building Materials* 225, 485–495. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2019.07.185>
- Bentz, D.P., Bentz, D.P., 2000. CEMHYD3D: A three-dimensional cement hydration and microstructure development modelling package. Version 2.0. US Department of Commerce, National Institute of Standards and Technology.
- Bhatty, J.I., 1986. Hydration versus strength in a portland cement developed from domestic mineral wastes — a comparative study. *Thermochimica Acta* 106, 93–103. [https://doi.org/10.1016/0040-6031\(86\)85120-6](https://doi.org/10.1016/0040-6031(86)85120-6)
- Brouwers, H.J.H., 2004. The work of Powers and Brownard revisited: Part 1. *Cement and Concrete Research* 34, 1697–1716. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2004.05.031>
- Bullard, J.W., 2007. A three-dimensional microstructural model of reactions and transport in aqueous mineral systems. *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering* 15, 711.
- Cheng, A., Huang, R., Wu, J.-K., Chen, C.-H., 2005. Influence of GGBS on durability and corrosion behavior of reinforced concrete. *Materials Chemistry and Physics* 93, 404–411. <https://doi.org/10.1016/j.matchemphys.2005.03.043>
- Darquennes, A., Espion, B., Staquet, S., 2013. How to assess the hydration of slag cement concretes? *Construction and Building Materials* 40, 1012–1020. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2012.09.087>
- Deboucha, W., Leklou, N., Khelidj, A., Oudjit, M.N., 2017. Hydration development of mineral additives blended cement using thermogravimetric analysis (TGA): Methodology of calculating the degree of hydration. *Construction and Building Materials* 146, 687–701. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2017.04.132>
- Dhir, R.K., El-Mohr, M.A.K., Dyer, T.D., 1996. Chloride binding in GGBS concrete. *Cement and Concrete Research* 26, 1767–1773.
- Elakneswaran, Y., Owaki, E., Miyahara, S., Ogino, M., Maruya, T., Nawa, T., 2016. Hydration study of slag-blended cement based on thermodynamic considerations. *Construction and Building Materials* 124, 615–625. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2016.07.138>
- EN NF 206-1, 2004. Concrete - Part 1: Specification, performance, production and conformity.
- Hadj-sadok, A., Kenai, S., Courard, L., Darimont, A., 2011. Microstructure and durability of mortars modified with medium active blast furnace slag. *Construction and Building Materials* 25, 1018–1025. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2010.06.077>
- Jennings, H.M., Johnson, S.K., 1986. Simulation of microstructure development during the hydration of a cement compound. *Journal of the American Ceramic Society* 69, 790–795.
- Knudsen, T., 1984. The dispersion model for hydration of Portland cement I. General concepts. *Cement and concrete research* 14, 622–630.
- Kolani, B., Buffo-Lacarrière, L., Sellier, A., Escadeillas, G., Boutillon, L., Linger, L., 2012. Hydration of slag-blended cements. *Cement and concrete composites* 34, 1009–1018.
- Kolani, L., Batian ; Escadeillas, Gilles ; Sellier, Alain ; Lacarrière, 2012. Comportement au jeune âge des structures en béton armé à base de liants composés aux laitiers (PhD Thesis).
- Lang, W., Liping, Z., Jian, T., 2019. Hydration Kinetics Model of Slag-blended Cement System. *IOP Conference Series: Earth and Environmental Science* 242, 062074. <https://doi.org/10.1088/1755-1315/242/6/062074>
- Luo, R., Cai, Y., Wang, C., Huang, X., 2003. Study of chloride binding and diffusion in GGBS concrete. *Cement and Concrete Research* 33, 1–7.
- Merzouki, T., Bouasker, M., Khalifa, N.E.H., Mounanga, P., 2013. Contribution to the modeling of hydration and chemical shrinkage of slag-blended cement at early age. *Construction and Building Materials* 44, 368–380. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2013.02.022>
- Monteagudo, S.M., Moragues, A., Gálvez, J.C., Casati, M.J., Reyes, E., 2014. The degree of hydration assessment of blended cement pastes by differential thermal and thermogravimetric analysis. Morphological evolution of the solid phases. *Thermochimica Acta* 592, 37–51. <https://doi.org/10.1016/j.tca.2014.08.008>
- NF EN 196-3, 2017. Méthodes d'essai des ciments — Partie 3 : Détermination du temps de prise et de la stabilité.
- NF P18-305, 1996. Ready-mixed concrete.
- Özbay, E., Erdemir, M., Durmuş, H.I., 2016. Utilization and efficiency of ground granulated blast furnace slag on concrete properties – A review. *Construction and Building Materials* 105, 423–434. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2015.12.153>
- Reuge, N., Bignonnet, F., Bonnet, S., 2023. Sensitivity analysis of a physicochemical model of chloride ingress into real concrete structures subjected to long-term exposure to tidal cycles. *Applied Ocean Research* 138, 103622. <https://doi.org/10.1016/j.apor.2023.103622>
- Richardson, I.G., 1999. The nature of C-S-H in hardened cements. *Cement and Concrete Research* 29, 1131–1147. [https://doi.org/10.1016/S0008-8846\(99\)00168-4](https://doi.org/10.1016/S0008-8846(99)00168-4)
- Shi-Ping, J., Grandet, J., 1989. Evolution comparée des porosites des mortiers de ciment au laitier et des mortiers de ciment portland. *Cement and Concrete Research* 19, 487–496. [https://doi.org/10.1016/0008-8846\(89\)90037-9](https://doi.org/10.1016/0008-8846(89)90037-9)
- Song, S., Sohn, D., Jennings, H., Mason, T., 2000. Hydration of Alkali-Activated Ground Granulated Blast Furnace Slag. *Journal of Materials Science* 35, 249–257. <https://doi.org/10.1023/A:1004742027117>
- Stephant, S., Chomat, L., Nonat, A., Charpentier, T., 2014. Study of the hydration of cement with high slag content. Presented at the 34th annual cement and concrete science conference.

- Taylor, H.F.W., 1997. Cement chemistry, 2nd edition.
- Touil, B., Ghomari, F., Khelidj, A., Bonnet, S., Amiri, O., 2022. Durability assessment of the oldest concrete structure in the Mediterranean coastline: The Ghazaouet harbour. *Marine Structures* 81, 103121. <https://doi.org/10.1016/j.marstruc.2021.103121>
- Waller, V., 1999. Relations entre composition des betons, exothermie en cours de prise et resistance en compression (PhD Thesis).
- Wang, X.-Y., 2021. Analysis of hydration kinetics and strength progress in cement–slag binary composites. *Journal of Building Engineering* 35, 101810.
- Wang, X.-Y., Lee, H.-S., Park, K.-B., Kim, J.-J., Golden, J.S., 2010. A multi-phase kinetic model to simulate hydration of slag–cement blends. *Cement and Concrete Composites* 32, 468–477. <https://doi.org/10.1016/j.cemconcomp.2010.03.006>

Évaluation probabiliste du risque d'inondation dans les zones urbaines protégées par des digues

Florence MAINGUENAUD

INRAE, RECOVER, Aix-Marseille Université ; Lasonde School of Engineering, York University

RESUME

Une amélioration du système d'évaluation du risque d'inondation peut s'articuler autour de 2 éléments : (i) l'évaluation de la fiabilité des digues en considérant les multiples mécanismes de rupture potentiels, et (ii) la considération de multiples scénarios de brèches dans les digues. Les mécanismes de défaillance de surverse et d'érosion régressive sont considérés, prenant en compte la variabilité des propriétés géotechniques, pour plusieurs intensités de crues. La méthode proposée se base sur des simulations pour aboutir aux courbes de fragilité des digues. Des simulations hydrauliques reproduisant de multiples scénarios d'inondation et de rupture de digue permettent par une analyse statistique et probabiliste des paramètres d'inondation (profondeur d'eau et vitesse du flux) de générer une représentation spatialisée et probabilisée de l'aléa d'inondation. Les cartes d'inondation permettent l'évaluation de la probabilité d'occurrence de l'inondation et leur combinaison résulte en une représentation probabiliste de l'aléa d'inondation où, pour chaque point de la zone protégée, la distribution probabiliste des paramètres de l'inondation est obtenue. Le risque d'inondation pourra alors être évalué en combinant l'aléa inondation, les enjeux exposés à l'inondation et leur niveau de vulnérabilité.

Mots-clefs Digues, Risque probabiliste d'inondation, Spatialisation, Brèches

I. INTRODUCTION

Every year, floods affect social life and the economy all over the world. Some famous floods include Hurricane Katrina in 2004 (ASCE, 2007), Storm Xynthia in 2010 (Kolen et al., 2013), and the floods in Southern Alberta in 2013 (Pomeroy et al., 2016), which had terrible consequences for human life and assets. The International Panel on Climate Change projected increase of sea level rise and more frequent heavy precipitations throughout the 21st century, which should increase adverse impacts as seen in major floods. To which Field et al. (2014) added that if levee structures are to be a reliable, they can only be effective if they are regularly operated and maintained. In fact, a breach in a levee system may cause more damage due to the flood wave than a gradual rise in water. The International Levee Handbook from CIRIA et al. (2013) identified and explain each step of the process to flood risk assessment. Its main steps are event probability estimation, inundation modeling, analysis of levee system failure, exposure and vulnerability estimation, estimation of level of risk, risk attribution, and assessment of remaining gaps in knowledge. We focus on levee failure and probabilistic flood hazard assessment. Levee system failure is defined as the inability to achieve a defined performance threshold (Allsop et al., 2007, Simm et al., 2012). According to CIRIA

et al. (2013), there are 3 types of levee failure mechanisms: external erosion, internal erosions, and slope instability. Levee performance can be conducted through quantitative methods using expert judgment, index based methods, mathematical models based on physical, or empirical equations. Those methods are usually an adaptation or a direct usage of methods developed for dams (e.g. Foster et al., 2000, ICOLD, 2017). We focus on urban fluvial levee structures subject to overflowing and backward erosion as the main failure mechanisms (Mainguenaud et al., 2023).

Studies based on the Netherland's flood risk assessment integrated approach (Van Alphen., 2015) assess flooding while considering potential levee failures. However, their study considers one failure mechanism at a time for one flood event. On the other hand, Maranzoni et al., 2022 consider the probabilistic flood hazard for multiple levee breaches during a single flood event. Maranzoni et al., 2023 provide a review of flood hazard assessment methods dividing them into heuristic, conceptual, and empirical approaches, while flood maps can be either deterministic or probabilistic. To be able to combine both flood hazard and levee failure, we chose a probabilistic approach to flood hazard.

We propose a method to assess levee failure probabilities resulting in a fragility curve for each failure mechanism. Then, assess probabilistic flood hazard considering levee failures for several failure mechanisms and several flood events. The flood probability is combined with levee failure probabilities to provide a flood exceedance probability for every scenario. This study enables the identification of the levee most vulnerable locations.

II. METHODS

A. Levee failure probability assessment for overflowing mechanism

By overflowing failure, is meant the external erosion of the levee crest due to water level until a breach occurs. In contrast to overtopping, where the water flow is perpendicular to the levee structure, overflowing does not consider erosion due to waves. Overflowing is a time dependent mechanism that Visser et al., 1995 describe overflowing in 3 phases: the beginning of the erosion due to overflow, the progression of the erosion, and the collapse of the structure. We chose to consider that failure by overflowing is equivalent to the beginning of a severe erosion of the hydraulic structure for hydraulic peak conditions (i.e. the end of the progression phase). Estimation of overflowing probability based on expert judgement required a group of specialist engineers including at least one specialized in risk analysis. In addition to this condition, each expert in the panel must have knowledge of the geotechnical or hydraulic fields. Each expert independently provided an expert judgement of the probability of failure considering the water level, the soil type, the geometry, the mechanical parameters, and the overflow duration of the levee segment. They estimated the failure probability due to overflow on a qualitative scale from "not probable" to "almost certain probability" (7 grades). Then, a group discussion followed, where misunderstanding of questions and biases were addressed, and the experts selected together in a consensual way the final qualitative scale of failure. Finally, we transposed the qualitative assessment to a quantitative scale using the approach defined by Peyras et al., 2010.

B. Levee failure probability assessment for internal erosion mechanism

Among the different mechanisms of internal erosion (e.g. backward erosion, concentrated leak erosion, contact erosion, suffusion), backward erosion is commonly used as the design criteria for levees (CIRIA et al., 2013). Due to the lack of model for the progression of backward erosion, we consider backward erosion initiation criterion as backward erosion failure. The resulting probability of failure corresponds to the probability of erosion initiation, which is a safe approximation, as erosion does not always lead to failure such as when the process is interrupted. To assess backward erosion, we compare local hydraulic gradients (obtained from a finite element model) with the critical gradient of Terzaghi (Terzaghi, 1943). We evaluate the probability of failure as the probability that the critical gradient is less than the hydraulic gradient obtained by the numerical seepage analysis model. Initiation of backward erosion occurs at the foot of the levee, therefore we select the maximum hydraulic gradients considered to assess backward erosion failure in this area. The evaluation of hydraulic gradients is a source of uncertainty related to the type of hydraulic modeling (e.g. steady state or transient model), numerical aspects (e.g. mesh size, location of hydraulic gradients), and soil parameters for the geotechnical model (e.g. porosity, specific gravity). We consider geotechnical uncertainty by modelling the critical gradient as a random variable normally distributed and defined the distribution parameters from expert judgement and literature (Mainguenaud et al., 2023).

C. Levee breaching model

We used the parametric breach model with Froehlich, 1995 empirical equations to estimate breach final width, slopes, and time of breach opening. We did not consider simultaneous or successive breach failures within a scenario as we assumed that when a breach occurs, it liberates some of the pressure forces on the structure and should be less likely to breach on nearby downstream segments. However, the consideration of multiple breach is relevant for long levees of several kms (Maranzoni et al., 2022).

D. Probabilistic assessment of flood hazard for multiple flood event and breach scenarios

Probabilistic flood hazard is assessed by a cumulative flood exceedance probability curve for every location of the flooded area. First, we compute the probability of the scenario conditional on the flood ($P_{\text{scenario} | \text{flood}}$): the levee failure probability (P_{breach} , extracted from fragility curves) weighted by the number of levee segments where the breach can be located and by the number of failure mechanisms considered. For every flood of return period (T in years), the sum of the probabilities of the scenarios conditional on the flood is equal to 1. Then, we compute the scenario probability (P_{scenario}) as Equation 1.

$$P_{\text{scenario}} = P_{\text{flood}} \cdot P_{\text{scenario} | \text{flood}} \quad (1)$$

For every flood scenario, we have a probability of occurrence associated with the maximum depth or velocity map. We cumulate flood exceedance probabilities for each flood parameter (depth, velocity) to obtain this cumulative flood exceedance probability curve.

III. CASE STUDY : ETOBICOKE CREEK

A. Location and hydrology

The Etobicoke Creek watersheds and the study area located in Meadowland Park in Brampton, Ontario, Canada. Toronto Region Conservation Area, 2023 identified the study area as one of the flood vulnerable clusters. Water Office historical database (Government of Canada, 2023) provides water levels and flow values. The hydraulic station 02HC017 is located in our study area provided the data for the flood frequency analysis which determined peak flow values, ranging from 85 to 530 m³.s⁻¹. We simulated flood events associated with return periods 100, 200, 350, 500, 750, and 1 000-yr. The levee is located approximately 80 m away from the river stream steep vegetated banks, creating a flood mitigation floodplain.

B. Geotechnical data for the levee

The levee is approximately 60-year old with a homogeneous silty embankment (Terraprobe, 2023), 2 m high throughout the 500 m of length. The levee slopes are fairly consistent throughout the levee length and consist of 3:1(horizontal:vertical) for the water side, 2:1 for the protected area side of the levee (Figure 1) and covered in grass. Topography and geometry of the levee were the decisive factors for the levee segmentation (5 segments in total in Figure 2). We assumed a constant failure probability through each levee segment.

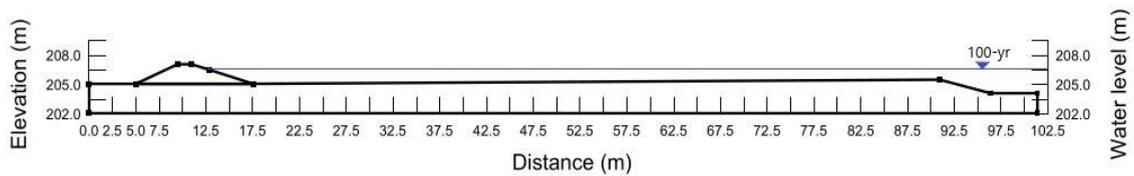


FIGURE 1. Etobicoke Creek levee cross-section (located on segment 3, see Figure 2)



FIGURE 2. Etobicoke Creek levee segments numbered 1 to 5 ; in blue Etobicoke Creek flowing southward ; in green the hydraulic model cross-sections

To assess levee failure probabilities, we used soil parameters based on a geotechnical assessment (Terraprobe, 2023) performed by Terraprobe for the Toronto and Region Conservation Authority (TRCA). The geotechnical assessment indicated a globally homogeneous, slightly plastic, sand and silty soil (gravel 10%, sand 41%, silt 31%, clay 18% as per MIT soil classification), 11% water content,

10^{-8} m.s^{-1} levee permeability, 10^{-6} m.s^{-1} foundation permeability. The earth fill estimated cohesion is 15 kPa and the angle of internal friction to 28° . To compute a critical gradient, we used values based on expert judgment and technical literature: porosity $n \in [0.3; 0.45]$ (Hough, 1969), the solid particle density $\gamma_s \in [2,600; 2,800] \text{ kg.m}^{-3}$, and water density $\gamma_w=1,000 \text{ kg.m}^{-3}$. The computed critical gradient follows a normal distribution $N(1.06 ; 0.27)$, taking into account the range of values found in literature. Therefore, the levee model is a homogeneous soil of permeability 10^{-8} m.s^{-1} , only the shape of the levee changes depending on the levee segment considered.

C. Hydraulic data for the levee and breaching model

The seepage analysis was performed with a numerical model based on the finite elements method to model hydraulic gradients for the backward erosion failure probability. We assumed steady-state flow conditions, as prolonged exposure to the maximum water level creates conditions for the worst case effects on the levee. The levee was designed to withstand a 100-year flood return period. The HEC-RAS software has 2 breaching mechanism options: (i) piping or (ii) overtopping (Hydrologic Engineering Center, 2023). The piping breach option (i) opens from the bottom of the levee, and the erosion will begin on the protected side of the levee because of seepage flow carrying soil particles. As the pipe grows larger, material will detach and fall into the moving water slowly resulting in an open breach. The overtopping breach erosion option (ii) starts on the downstream side of the levee, and was deemed satisfying to model the overflow failure mechanism. We consider the piping option to model backward erosion and the overtopping option to model overflow.

E. Flood propagation model and scenario probabilities

For the case study, we use a High Resolution Digital Elevation Model derived from LiDAR data and satellite imagery provides a Digital Terrain Model (DTM) of 1 m spatial resolution. The corresponding survey 'York 2019' is sourced from National Resource Canada. We use HEC-RAS's 1D/2D model to compute the river water surface for a subcritical flow regime in the 1D area, and Shallow Water Equations (SWE) to propagate the water in the 2D area based on theoretical triangular hydrographs. Therefore, we assumed incompressible flow and negligible vertical velocity. For each simulation, we stored a map of the highest depth and velocity values reached during the flood event. Every flood scenario is associated with a flood scenario exceedance probability conditional on a flood. The cumulative flood exceedance probability curve is computed as described in section II.D.

IV. RESULTS

A. Levee fragility curves

We plotted overflowing and backward erosion fragility curves versus flood return periods (associated with peak water levels) in Figures 3 and 4. There is a fragility curve for every levee segment. We observed an increase of backward erosion failure probabilities after the 350-year return period and only segment 3 (BXS3) shows a steep increase of backward erosion failure probability. On the other hand, overflow probabilities showed a steep increase from the beginning, especially for the middle segments 2, 3, and 4.

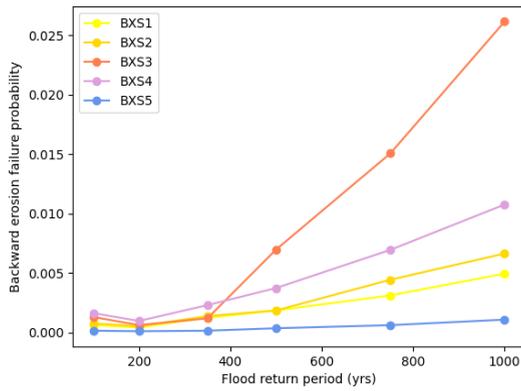


FIGURE 3. Backward erosion fragility curves for Etobicoke Creek

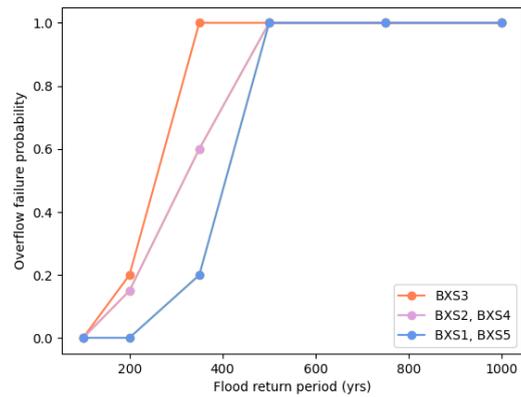


FIGURE 4. Overflow fragility curves for Etobicoke Creek

In this case study, the levee has a high reliability and is not likely to fail. However, this method shows which critical failure mechanism to focus on and which levee segment to pay attention.

B. Probabilistic flood hazard

We compute cumulative flood exceedance probability for depth and velocity. To present the result, we chose 5 locations (Figure 5): point a located in the residential neighborhood, points b and c behind the levee respectively at segment 3 and 4, point d is located on the parking lot, and point e on the main road downstream of the levee.

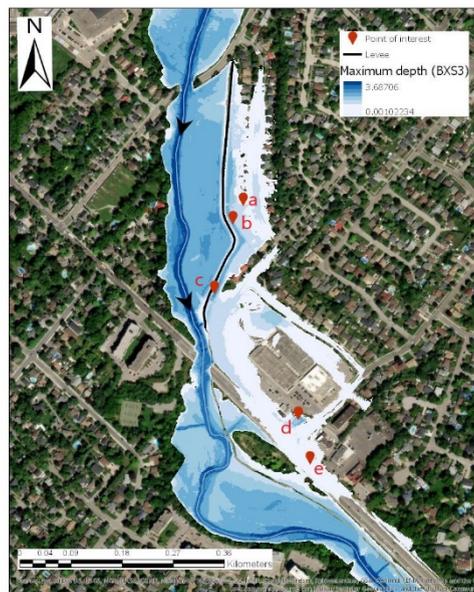


FIGURE 5. Locations to present the results point a (residential neighborhood), points b&c (behind the levee), point d (parking), and point e (road)

Cumulative flood exceedance probabilities shown in Figure 6 for which each graph take into consideration every breaching scenario (no breach and breaching of every levee segment by overtopping and piping), and every flood (return periods range from 100-year to 1,000-yr).

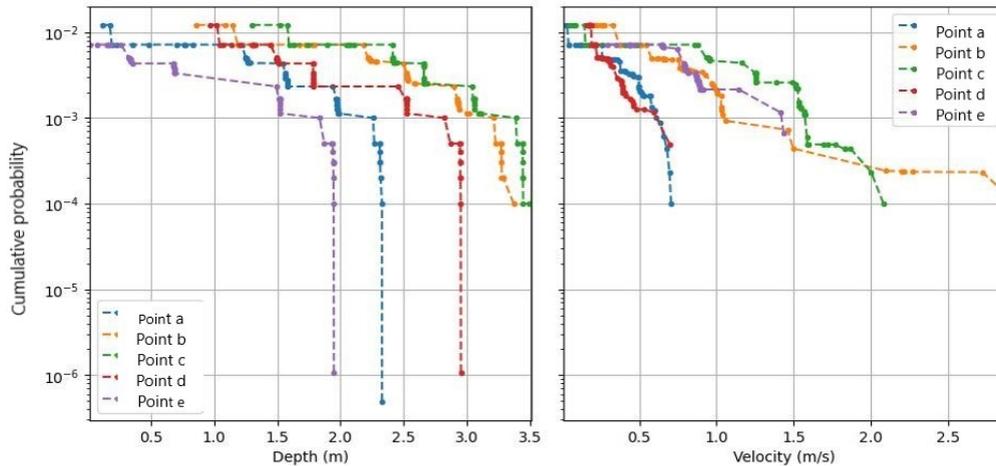


FIGURE 6. Cumulative flood exceedance probabilities for depth and velocity for point a (residential neighborhood), points b&c (behind the levee), point d (parking), and point e (road).

With the aggregated results obtained for backward erosion and overflow failure mechanism, we are able to distinguish various levels of flood hazard in a protected area. For this case study, the level of depth hazard from highest to lowest is locations c, b, d, a, and e (Figure 6, depth graph). The level of velocity hazard depends on the velocity value but in general, ranks from highest to lowest in the following order: location c, b, e, a, and d (Figure 6, velocity graph).

V. DISCUSSIONS

A. Limitation of fragility curve assessments

The assessment of backward erosion failure probabilities proposed has some limitations associated with the use of the critical gradient of Terzaghi defined for cohesionless soils in steady-state conditions. For cohesionless soils, another approach to compute a critical hydraulic gradient was proposed by Indraratna and Radampola (2002). An alternative approach could be to compute the hydraulic shear stress and compare it with a critical hydraulic shear stress value measured from a Jet Erosion Test (JET). If no JET data is available, Regazzoni and Marot (2011) also proposed an estimation of the erosion index based physical parameters proposed by Wan and Fell (2004).

Internal erosion is a time dependent mechanism, however the current model does not account for this. Using an energy approach such as the one proposed by Marot et al. (2011) based on an erosion resistance index could be a suitable approach to assess backward erosion failure probabilities as this index is determined from the whole evolution of the process and not just its initiation.

Contributing factors to backward erosion initiation such as animal burrows, vegetation roots, pipes, or other structures going through the levee are not accounted for either, which could balance our previous statement as such actors may increase backward erosion failure probabilities. Additional work to include contributing factors to backward erosion would improve the fragility curve accuracy. The overflowing assessment method is highly dependent on water levels and overflow duration applied to the levee. Moreover, expert judgement is prone to over- and underestimation of failure probabilities as shown in Hathout et al., 2019, which may explain why the overflowing fragility curve has the steepest increase in this case study.

B. Influence of the distance to the levee on depth and velocity

In general, the higher the water depth, the closer to a breach we are located. However, for the present case study, it seems there is no correlation between depth and distance to the levee. Instead, it shows that topography has a big impact on depth. On the other hand, velocity values lower the further we go from the breach location. In our case study, there is one exception: location e (road) is obstacle free due to straight and flat terrain conditions offered by the asphalt road. With few obstacles to slow water propagation, location e shows similar probabilities to location b (close to the levee). Cumulative probabilities provide maximum depth values, and velocity evolution curve which help choosing appropriate mitigation measures based on which level of hazard one is willing to accept. For example on Figure 6, the water depth of location a (the residential area) does not exceed 2.4 m. Considering depth and velocity probabilities is necessary as both point to different protected areas to focus on. In particular, velocity probabilities should be considered near levee breaches because the values are high.

VI. CONCLUSIONS

A flood risk assessment accuracy relies on each of its component. To improve flood risk assessments, we propose a method to improve flood hazard by considering levee failures. Our approach consists in multiple levee breaching scenarios for various flood intensities. We conduct a levee reliability study for homogeneous levee segments for backward erosion and overflow failure mechanisms, then propagate the flood in the river and through the levee breach, statistically analyzing depth and velocity flood parameters located in the protected area. We propose a new approach to probabilistic flood hazard mapping for flood hazard assessments by developing a probabilistic assessment method of levee failure probabilities able to integrate multiple failure mechanisms. The selection of failure mechanisms (backward erosion, overflowing) must be tailored to the levee studied. We propose a method with an accuracy level meant for city scale and present a case study on Etobicoke Creek, located in the Greater Toronto Area, Canada. The levee shows a high reliability (withstand a 100-yr return period). This method provides information on which critical failure mechanism to focus on for the flood hazard assessment and the maintenance of the levee. Making use of established fragility curves from the levee reliability study, we developed a probabilistic flood hazard assessment method considering various levee failure mechanisms triggered by different flood intensities. The flood propagation in the river and through the levee breach provides flood depth and velocity maps to analyse. We propose a new approach to probabilistic flood hazard mapping, providing cumulative probabilities of every flood and levee breaching scenario. This case study showcases the method ability to identify of the most hazardous location with a probabilistic flood exceedance curve. Moreover, once the hydraulic model is defined properly and run, the next flood propagation simulations will need a shorter running time due to locally saved terrain and other input data. For large scale areas, the post-processing of flood hazard maps would be more efficient if it was integrated in a software but as a first approach, coding is sufficient.

We proposed a methodological framework for systematic levee failure integration to flood hazard studies. Levee failure impact on flood hazard highlights the importance of pursuing regular levee

maintenance and include levee reliability into flood assessment routine. This probabilistic flood hazard can then be used as an input to a flood risk assessment.

REFERENCES

Allsop, W., Kortenhaus, A., & Morris, M. (2007). Failure mechanisms for flood defence structures (T04-06-01). *FLOODsite*.
<https://www.researchgate.net/publication/307476514> Failure Mechanisms for Flood Defence Structures

ASCE. (2007). The New Orleans hurricane protection system: what went wrong and why. *ASCE Hurricane Katrina External Review Panel*. Reston VA, USA. isbn : 978-0-78440-893-3

CIRIA, Ministry of Ecology, & USACE. (2013). The International Levee Handbook. *CIRIA*.
<https://www.ciria.org/ItemDetail?iProductCode=C731F&Category=FREEPUBS>

Field, C.B., Barros, V., Dokken, D., Mach, K., Mastrandrea, M., Bilir, T., Chatterjee, M., Ebi, K., Estrada, Y., Genova, R., Girma, B., Kissel, E., Levy, A., MacCracken, S., Mastrandrea, P., & White, L. (2014). *Climate change 2014: impacts, adaptation, and vulnerability*. Cambridge University Press.

Foster, M., Fell, R., & Spannagle, M. (2000). A method for assessing the relative likelihood of failure of embankment dams by piping. *Canadian Geotechnical Journal*, 37(5), 1025-1061.
<https://doi.org/10.1139/t00-029>

Froehlich, D. C. (1995). Embankment dam breach parameters revisited. *ASCE Conference on Water Resources Engineering*, New York, 887–891

Government of Canada. (2023). Real-time hydrometric data graph for Etobicoke Creek at Brampton, station 02HC017. https://eau.ec.gc.ca/report/real_time_f.html?stn=02HC017

Hathout, M., Vuillet, M., Carvajal, C., Peyras, L., & Diab, Y. (2019). Expert judgment calibration and combination for assessment of river levee failure probability. *Reliability Engineering and System Safety*, 188, 377–392.

Hough, B. (1969). *Basic soil engineering*. Ronald Press Company. New York

Hydrologic Engineering Center. (2023). HEC-RAS technical reference manual. Version 1.5.
<https://www.hec.usace.army.mil/confluence/rasdocs/ras1dtechref/latest/performing-a-dam-break-study-with-hec-ras/estimating-dam-breach-parameters/estimating-breach-parameters>

ICOLD. (2017). Internal erosion of existing dams, levees and dikes, and their foundations (Bulletin 164). ICOLD and CIGB.

Kolen, B., Slomp, R., & Jonkman, S. N. (2013). The impacts of storm xynthia february 27-28, 2010 in france: lessons for flood risk management. *Journal of Flood Risk Management*, 6(3), 261–278. <https://doi.org/10.1111/jfr3.12011>

Mainguenaud, F., Peyras, L., Khan, U. T., Carvajal, C., Sharma, J., & Beullac, B. (2023). A probabilistic approach to levee reliability based on sliding, backward erosion and overflowing

mechanisms: application to an inspired Canadian case study. *Journal of Flood Risk Management*, e12921. <https://doi.org/10.1111/jfr3.12921>

Maranzoni, A., D’Oria, M., & Mazzoleni, M. (2022). Probabilistic flood hazard mapping considering multiple levee breaches. *Water Resources Research*, 58(4), e2021WR030874. <https://doi.org/10.1029/2021WR030874>

Maranzoni, A., D’Oria, M., & Rizzo, C. (2023). Quantitative flood hazard assessment methods: a review. *Journal of Flood Risk Management*, 16(1), e12855. <https://doi.org/10.1111/jfr3.12855>

Marot D., Regazzoni P.-L., Wahl T. (2011). Energy based method for providing soil surface erodibility rankings. *Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering (ASCE)*, 137(12), 1290-1293. [https://doi.org/10.1061\(ASCE\)GT.1943-5606.0000538](https://doi.org/10.1061(ASCE)GT.1943-5606.0000538)

Peyras, L., Boissier, D., Carvajal, C., Bacconnet, C., Royet, P., Bécue, J., Gaillard, T., & Talon, A. (2010). Analyse de risques et fiabilité des barrages. application aux barrages-poids en béton. Editions Universitaires Européennes.

Pomeroy, J. W., Stewart, R. E., & Whitfield, P. H. (2016). The 2013 flood event in the south saskatchewan and elk river basins: causes, assessment and damages. *Canadian Water Resources Journal/Revue Canadienne des Ressources Hydriquesydriques*, 41(1-2), 105–117. <https://doi.org/10.1080/07011784.2015.1089190>

Regazzoni, P.L. & Marot, D. (2011). Investigation of interface erosion rate by Jet Erosion Test and statistical analysis. *European Journal of Environmental and Civil Engineering*, 15(8), 1167-1185. <https://doi.org/10.3166/EJECE.15.1167-1185>

Simm, J., Wallis, M., Smith, P., Tourment, R., Veylon, G., Deniaud, Y., Durand, E., McVicker, J., & Hersh-Burdick, R. (2012). The significance of failure modes in the design and management of levees. a perspective from the international levee handbook team. *Proceedings of the 2nd European Conference on Flood Risk Management*

Terraprobe Inc. (2023). Geotechnical assessment Etobicoke dike (1-22-0506). Toronto and Region Conservation Authority (TRCA). City of Brampton, Ontario.

Terzaghi, K. (1943). Theoretical soil mechanics. John Wiley & Sons.

Toronto Region Conservation Area. (2023). Etobicoke Creek watershed plan 2024-2034. Toronto city, Peel region, Mississauga, Brampton city, Pearson, TRCA, Caledon, and Mississauga of the credit first nation.

Van Alphen, J. (2015). The delta programme and updated flood risk management policies in the Netherlands. *6th International Conference on Flood risk Management (ICFM6)*.

Visser, P. J., Kraak, A. W., Bakker, W. T., Smit, M. J., Snip, D. W., Steetzel, H. J., & van de Graaff, J. (1995). A large-scale experiment on breaching in sand-dikes. *Coastal dynamics’95 Proceedings of the International Conference on Coastal Research in Terms of Large Scale Experiments*, 583–594

Wan C. F. & Fell R. (2004). Investigation of rate of erosion of soils in embankment dams, *Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering*, 130(4), 373-380

Etude expérimentale et numérique des propriétés mécaniques et thermiques de bétons de co-produits coquilliers

Camille Martin--Cavaillé¹

¹Université Paris-Saclay, CentraleSupélec, ENS Paris-Saclay, CNRS, LMPS - Laboratoire de Mécanique Paris-Saclay, 91190, Gif-sur-Yvette, France

RESUME Dans le but de limiter l'impact environnemental des constructions, des sous-produits d'autres industries peuvent être incorporés au béton. En particulier, les déchets coquilliers de l'aquaculture peuvent être utilisés en remplacement des granulats. Les recherches menées jusqu'à présent ont montré que ces nouveaux bétons peuvent atteindre des propriétés mécaniques suffisantes pour être porteurs mais leurs propriétés élastiques et thermiques ont été peu étudiées et peu modélisées. Cette étude vise à mieux comprendre le comportement mécanique et thermique des bétons de co-produits coquilliers afin de tendre vers une optimisation des formulations. Pour cela, des bétons ayant un taux de substitution volumique de 50 % des gravillons par des coquilles d'huitres concassées ont été formulés et étudiés. Dans le but d'expliquer leurs comportements, une campagne expérimentale a été menée pour obtenir les paramètres d'élasticité et de thermiques des granulats et des coquilles d'huitres. Puis une homogénéisation a été faite par la méthode de Mori-Tanaka. Les résultats montrent que le comportement élastique des bétons est principalement dicté par la phase poreuse des coquilles et que le comportement thermique est meilleur à cause d'une plus faible conductivité thermique des coquilles.

Mots-clefs Co-produits coquilliers, Conductivité thermique, Eco-matériaux, Homogénéisation, Nano-indentation

I. INTRODUCTION

Dans le monde, 5,1 millions de tonnes d'huitres sont produites chaque année dont 80 000 tonnes en France (Agreste, 2021). Une fois consommées, les coquilles constituent des déchets calcaires qu'il est possible de valoriser dans les bétons. Les premiers résultats montrent que l'utilisation de ces co-produits en granulats dans les bétons conduit à de bonnes propriétés mécaniques (Eo et Yi, 2015), suffisantes pour formuler un béton porteur jusqu'à 50 % de taux de substitution volumique. De plus, les coquilles sont constituées d'un assemblage de couches denses et poreuses superposées les unes aux autres, les phases poreuses représentant environ 30 % du volume total des coquilles (Martin--Cavaillé *et al.*, 2022). Cette porosité additionnelle pourrait mener à de meilleures propriétés isolantes. Cependant, les recherches réalisées se concentrent souvent sur la résistance mécanique des bétons, leur comportement mécanique et hygrothermique ayant été peu étudié (Mo *et al.*, 2018). L'objectif de cette étude est de comprendre le comportement mécanique et thermique des bétons de co-produits coquilliers afin de tendre vers une optimisation des formulations. Les

propriétés élastiques et thermiques intrinsèques des coquilles et des granulats naturels ont d’abord été mesurées. Puis, des bétons ayant un taux de substitution volumique de 50 % des gravillons par des coquilles d’huitres ont été formulés. Enfin, une homogénéisation a été effectuée grâce à la méthode de Mori-Tanaka. La Fig.1 présente le schéma de principe de l’étude.

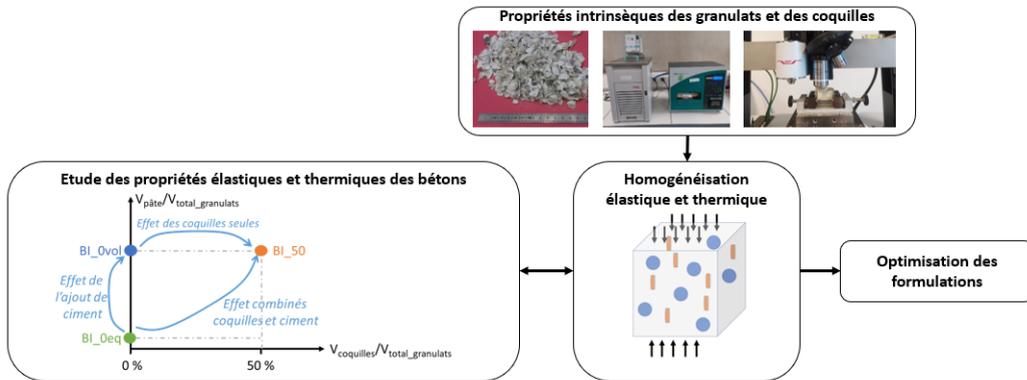


FIGURE 1. Schéma de principe de l’étude réalisée

II. MATERIAUX ET METHODES

A. Matériaux bruts

Les matériaux bruts utilisés dans cette étude sont du ciment CEM I 52,5N, du sable silico-calcaire, des granulats naturels roulés silico-calcaires (GN) et des coquilles d’huitres concassées (GH). Les propriétés physiques des granulats sont présentées dans le tableau 1. Les coquilles (Fig. 2-a) ont une forme particulière en forme d’ellipse aplatie par rapport aux granulats GN (Fig. 2-b). Afin de mieux connaître la granulométrie des GN et GH, trois mesures ont été effectuées : l’une par tamisage classique (NF 933-1), la deuxième selon la RILEM TC 236-BBM (Amziane *et al.* 2017) et la troisième par mesure au pied à coulisse des trois dimensions caractéristiques des GH. Les résultats présentés en Fig. 2-c montrent tout d’abord qu’en utilisant la méthode de tamisage classique, les granulats GN et GH ont apparemment la même granulométrie 4/10 mm. Cependant, l’étude au pied à coulisse a mis en avant les trois dimensions caractéristiques de GH : une longueur d’environ 10.5 mm, une largeur d’environ 9 mm et une épaisseur d’environ 2 mm. Le diamètre équivalent à l’aire (EAD) est bien inclus entre la largeur et la longueur.



FIGURE 2. Présentation des granulats utilisés. a/ Coquilles d’huitres concassées (GH), b/ Granulats classiques (GN), c/ Etude granulométrique comparative de GH et GN

TABLEAU 1. Propriétés physiques des granulats de référence GN et des coquilles GH

	Granulométrie (mm)	Masse volumique en vrac (kg/m ³)	Masse volumique absolue (kg/m ³)	Coefficient d'absorption (%)
Norme	NF EN 933-1	NF EN 1097-3	NF EN 1097-6	NF EN 1097-6
Sable	0/2	1464	2625	1,79
GN	4/10	1531	2677	2,85
GH	4/10	809	2512	6,20

B. Formulations des bétons

Un premier béton utilisant 50 % de GH à la place des GN (noté BI_50) ainsi qu'un béton équivalent sans coquilles (noté BI_0eq) ont été formulés avec une résistance mécanique visée de 33 MPa à 28 jours et un affaissement visé de 11 cm. Ceci a conduit à augmenter le ratio Volume de pâte/Volume de granulats ($V_{pâte}/V_{gra}$) dans BI_50 par rapport à la référence BI_0eq. Ainsi, pour pouvoir distinguer l'effet des coquilles et l'effet de l'ajout de pâte de ciment, une référence volumique BI_0vol dans laquelle le ratio $V_{pâte}/V_{gra}$ est gardé constant a été formulée. Les bétons BI_50 et BI_0vol partagent donc le même mortier noté MI_vol. Dans toutes les formulations, l'impact de l'absorption d'eau par les granulats GN, GH et par le sable ont été compensés. Les formulations ainsi que les propriétés à l'état frais des bétons sont présentées en tableau 2. La compacité de l'arrangement granulaire des bétons prenant en compte uniquement les granulats GR, GH et le sable et mesurée selon la méthode LCPC 61 y est également présentée. Des éprouvettes Ø11x22 cm et 7x7x28 cm ont été fabriquées, démoulées à 3 jours et conservées en conditions endogènes.

TABLEAU 2. Formulations des bétons

Formulation (kg/m ³)	BI_0eq	BI_0vol	BI_50
Ciment CEM I	350	366	366
Granulats de référence (GN)	1013	988	494
Granulats d'huitre (GH)	0	0	464
Sable	718	701	701
Eau_efficace E_{eff}	209	218	218
E_{eff}/C	0,6	0,6	0,6
$V_{pâte} / V_{granulats(GN+GH)}$	0,92	0,98	0,98
Affaissement (cm)	11,3	16,50	11,1
Air occlus (%)	2,2	1,5	4,5
Compacité de l'arrangement granulaire (%)	65	65	76

À l'état frais, BI_0eq et BI_50 ont bien un affaissement similaire autour de 11 cm, ce qui correspond au cahier des charges. En revanche BI_0vol a un affaissement beaucoup plus élevé : ainsi la présence de coquilles d'huitres tend à diminuer l'affaissement des formulations de béton. Cela peut s'expliquer par un effet combiné de la forme des granulats et par une augmentation de la friction dû à l'état de surface des GH (Mo et al., 2018). De plus, la quantité d'air occlus augmente dans BI_50 ainsi que la compacité de l'arrangement granulaire (ce qui signifie que l'arrangement granulaire est moins compact). Cette augmentation du pourcentage d'air occlus peut s'expliquer en partie par cette augmentation de compacité mais aussi par un potentiel effet entraîneur d'air des coquilles.

C. Méthodes de mesures des propriétés intrinsèques des granulats de référence et des coquilles

Afin d'expliquer les propriétés des bétons observées, les propriétés intrinsèques élastiques et thermiques des granulats et des coquilles ont été mesurées.

Nano-indentation. Le module d'Young des granulats GN et GH a été mesuré à l'aide d'un nano-indenteur Antoon Paar muni d'une pointe Berkovitch. Les granulats ont été polis puis 50 points de mesure ont été pris dans la phase poreuse des GH, la phase dense des GH et dans les GN. Pour chaque point, la pointe a été enfoncée d'environ 1 μm avec un effort de 10 à 20mN.

Mesure de conductivité thermique sur granulats. Une mesure de conductivité thermique apparente des GN et GH a été effectuée dans un Fluxmètre Lambda HFM 446. Le dispositif expérimental est présenté en Fig. 3. Les granulats sont placés en vrac dans un moule en polystyrène (14x14x5 cm). Deux mesures sont effectuées : une sur granulats secs et l'autre pour une teneur en eau de 2,5% (mesurée par une balance dessiccateur Proviteq MB25 avant et après l'essai) afin de quantifier l'impact de la teneur en eau sur la conductivité thermique des granulats.



FIGURE 3. Dispositif de mesure de la conductivité thermique des granulats en vrac.
a/ Mise en place des granulats dans le moule, b/ Fluxmètre Lambda HFM 446

Deux méthodes d'homogénéisation ont été utilisées pour remonter à la conductivité thermique intrinsèque des granulats λ_{gra} à partir de la conductivité thermique mesurée en vrac λ_{vrac} en prenant en compte la conductivité thermique de l'air λ_{air} , la fraction volumique de granulats f_{gra} et d'air f_{air} . La première méthode (équation (1)) utilise la moyenne des bornes d'Hashin-Shtrikman (HS) (Hashin and Shtrikman, 1963). La deuxième méthode (équation (2)) utilise un modèle auto-cohérent (AC) qui convient à l'étude des granulats désordonnés (Mercier and Molinari, 2009). Dans les deux cas, les granulats sont assimilés à des sphères isotropes dans un milieu continu isotrope. Lorsque les granulats ne sont pas à l'état sec, la conductivité thermique du granulat incluant l'effet de l'eau absorbée est calculée en supposant qu'il n'y a pas d'eau entre les granulats.

$$\lambda_{\text{vrac}}^{\text{HS}} = \frac{\lambda_{\text{inf}} + \lambda_{\text{sup}}}{2}, \lambda_{\text{sup}} = \lambda_{\text{gra}} + \frac{3 f_{\text{air}} \lambda_{\text{gra}} (\lambda_{\text{air}} - \lambda_{\text{gra}})}{3 \lambda_{\text{gra}} + f_{\text{gra}} (\lambda_{\text{air}} - \lambda_{\text{gra}})}, \lambda_{\text{inf}} = \lambda_{\text{air}} + \frac{3 f_{\text{gra}} \lambda_{\text{air}} (\lambda_{\text{gra}} - \lambda_{\text{air}})}{3 \lambda_{\text{air}} + f_{\text{air}} (\lambda_{\text{gra}} - \lambda_{\text{air}})} \quad (1)$$

$$\lambda_{\text{vrac}}^{\text{AC}} = \lambda_{\text{gra}} \left(1 + \frac{\theta}{\frac{1-\theta}{3} + \left(\frac{\lambda_{\text{air}}}{\lambda_{\text{gra}}} - 1 \right)^{-1}} \right), \theta = 1 - f_{\text{gra}} \quad (2)$$

D. Méthodes de caractérisation des bétons

Propriétés mécaniques. La résistance en compression, le module d'Young et le coefficient de Poisson des bétons ont été obtenus par compression de trois éprouvettes $\varnothing 11 \times 22$ cm à l'aide d'une cage extensométrique (avec des extensomètres verticaux et horizontaux) et d'une MTS 500 kN (NF-

EN-12390-3 et NF-EN-12390-13). Leur résistance en traction a été obtenue par essai de flexion 3 points sur trois éprouvettes 7x7x28 cm à l'aide d'une Instron 50 kN. Les essais ont été réalisés après 7, 28, 90 et 180 jours de cure endogène.

Propriétés thermiques. Les conductivités thermiques des bétons ont été mesurées à l'aide d'un Lambda HFM 436 par méthode fluxmétrique sur des éprouvettes 30x30x7 cm. Les essais ont été réalisés après 6 mois de cure endogène dans deux conditions : après un stockage à 20 °C/50%HR et après séchage jusqu'à masse constante.

E. Homogénéisation du comportement mécanique et thermique des bétons

Les paramètres intrinsèques mesurés sur granulats ont été utilisés comme paramètres d'entrée pour modéliser le comportement élastique et thermique des bétons formulés à l'aide du schéma d'homogénéisation de Mori-Tanaka (Mori and Tanaka, 1973) qui convient à l'étude des matériaux composites dont l'une des phases peut être clairement identifiée comme la matrice (Mercier and Molinari, 2009). Dans ce modèle, la matrice (le mortier) et les inclusions (les granulats GH et GN) sont considérés comme isotropes. Les GN sont considérés sphériques et les GH sont considérés sphériques dans un premier temps puis ayant une forme de palets ayant tous la même orientation. La prise en compte de cette forme intervient à travers les tenseurs d'Eshelby S_i^E et de dépolarisation S_i qui ne dépendent que de la forme de l'inclusion et des propriétés de la matrice (Mura, 1987) (Huang *et al.*, 2022).

Homogénéisation des propriétés élastiques. Le tenseur de rigidité C_{hom} homogénéisé d'un matériau avec une matrice (de tenseur de rigidité C_M et fraction volumique f_M) et des inclusions i (de tenseur de rigidité C_i et fraction volumique f_i) est calculé selon les équations (3) et (4).

$$C_{hom} = C_M + \sum_{i=1}^N f_i (C_i - C_M) \cdot A_i^{MT} \quad (3)$$

$$A_i^{MT} = [I + P_i : (C_i - C_M)]^{-1} : [f_M I + \sum_{i=1}^N f_i [I + P_i : (C_i - C_M)]]^{-1} \text{ avec } P_i = S_i^E : C_M \quad (4)$$

Homogénéisation des propriétés thermiques. De même, le tenseur de conductivité thermique λ_{hom} d'un matériau contenant une matrice (de conductivité thermique $\lambda_M = \lambda_0$ et fraction volumique $f_M = f_0$) et des inclusions i (de conductivité thermique λ_i et fraction volumique f_i) est calculé selon les équations (5) et (6).

$$\lambda_{hom} = \sum_{i=0}^N f_i \lambda_i A_i^{MT} \quad (5)$$

$$A_i^{MT} = [I + P_i (\lambda_i - \lambda_0)]^{-1} \cdot (\sum_{i=0}^N f_i [I + P_i (\lambda_i - \lambda_0)]^{-1})^{-1} \text{ avec } P_i = S_i : \lambda_M^{-1} \quad (4)$$

III. PROPRIETES INTRINSEQUES DES GRANULATS ET DES COQUILLES

A. Propriétés élastiques mesurées par nano-indentation

Les résultats de nano-indentation sont présentés en Fig. 4-a : ils montrent que le module d'Young de GH dépend fortement de la phase testée : le module d'Young de la phase dense est en moyenne de 45 GPa contre 15 GPa dans la phase poreuse. Ceci s'explique par la plus faible quantité de matière présente dans la phase poreuse car les deux phases sont constituées du même matériau. En revanche, le module d'Young des granulats a été mesuré aux alentours de 55 GPa soit plus élevé que la phase dense des coquilles. Les résultats présentent tout de même une grande variabilité.

B. Conductivité thermique

La Fig. 4-b présente les résultats de conductivité thermique intrinsèque des granulats après identification par le schéma d'Hashin-Shtrikman (HS) et le schéma auto-cohérent (AC) en fonction de la teneur en eau des granulats. Les résultats montrent que les coquilles GH ont une conductivité thermique 30% plus faible que celle des granulats. Les résultats montrent également une grande importance de la teneur en eau car une variation de la teneur en eau de 2,5 % mène à des variations de conductivité thermique de 37 % à 43 % sur les conductivités thermiques des granulats. Les deux schémas d'homogénéisation conduisent à des écarts dans l'estimation de la conductivité thermique des granulats pouvant aller jusqu'à 45%. Le schéma AC conduit à estimer de plus faibles conductivités thermiques des granulats par rapport au schéma HS. Le choix du schéma le plus adapté sera fait grâce aux résultats d'homogénéisation.

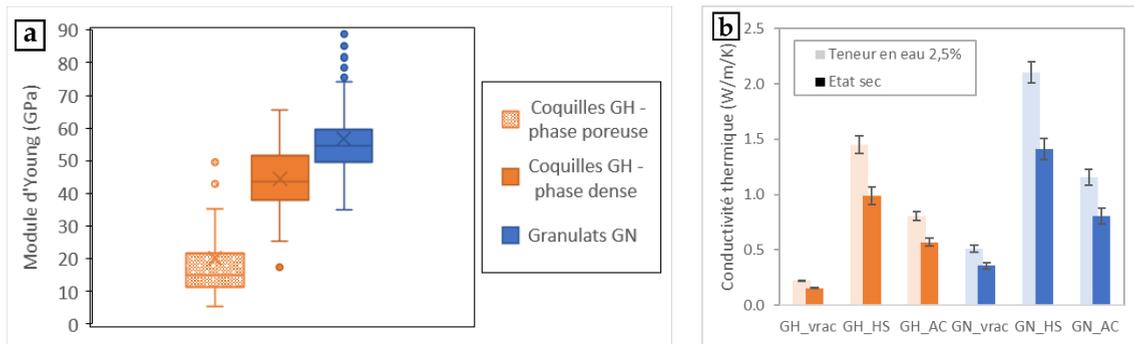


FIGURE 4. Propriétés intrinsèques des GN et GH. a/ Module d'Young obtenus par nano-indentation, b/ Conductivité thermique identifiée par la méthode d'Hashin Strikman (HS) et Autocoherente (AC)

IV. ETUDE EXPERIMENTALE DU COMPORTEMENT DES BETONS DE COQUILLES

A. Propriétés mécaniques

L'évolution des propriétés mécaniques des bétons est présentée en Fig. 5. La présence de 50 % de coquilles fait diminuer la résistance en compression de BI_0vol de 9 % pour un ratio V_{pate}/V_{gra} fixé. BI_50 semble suivre la même évolution que BI_0vol et BI_0eq : il n'y a donc pas d'effet retard dû à la présence de coquilles. La résistance en traction par flexion est similaire entre BI_0eq et BI_0vol mais diminue entre 6 % et 20 % dans BI_50 par rapport à BI_0vol. Les écarts-types de mesure sont d'environ 10 %, donc ces résultats sont à relativiser. La présence de coquilles fait diminuer le coefficient de Poisson entre 4 % à 20 %. La diminution des résistances mécaniques peut être due à la différence entre les résistances des GN et des GH ou à une plus faible cohésion entre les coquilles et la matrice cimentaire. Les observations de (Bourdot *et al.*, 2021) semblaient montrer une bonne cohésion apparente entre la matrice et les coquilles mais les propriétés d'interface peuvent diminuer. Pour le module d'Young, BI_0eq et BI_0vol ont des modules similaires alors que celui de BI_50 a diminué de 35 %. Cette diminution est cohérente avec les résultats obtenus montrant que les GH ont un plus faible module d'Young que les GN. Cependant d'autres facteurs pourraient également intervenir comme le fait que les GH aient une forme différente des GN et que celles-ci peuvent s'arranger différemment dans les bétons. Une modélisation est nécessaire pour réussir à distinguer ces différentes hypothèses.

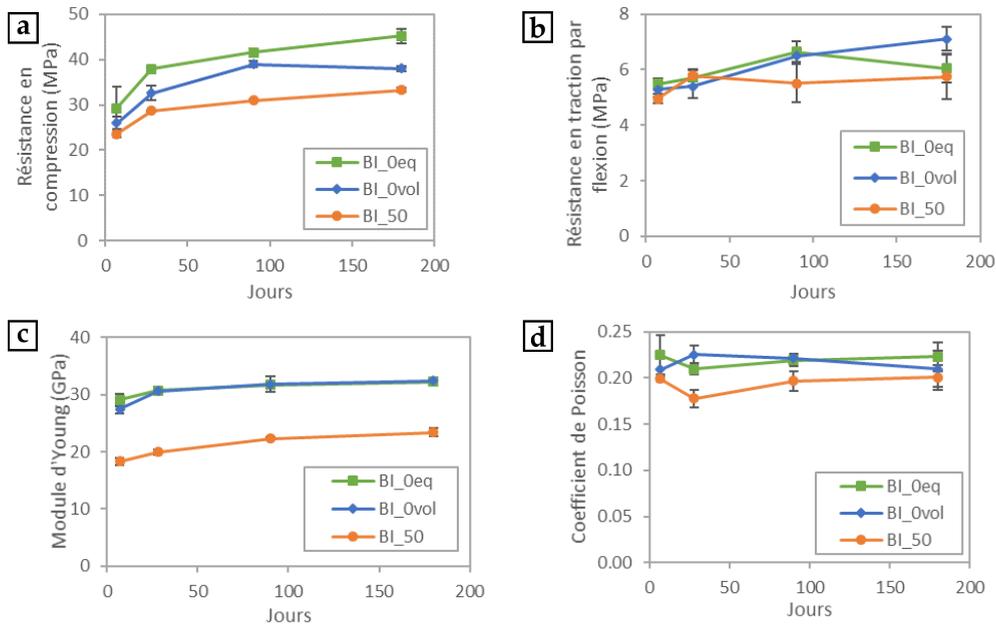


FIGURE 5. Evolution des propriétés mécaniques des bétons au cours du temps. a/ Résistance en compression, b/ Résistance en traction par flexion, c/ Module d'Young, d/ Coefficient de Poisson

B. Thermique

Le tableau 3 présente un résumé des mesures de conductivité thermique des bétons (à 20°C/50%HR et à l'état sec) et des granulats en lien avec leur masse volumique à l'état sec. Les résultats montrent bien que les conductivités thermiques des bétons augmentent en présence d'eau. A l'état sec, la conductivité thermique de BI_50 diminue de 25 % par rapport à BI_0vol. En revanche, la conductivité thermique de BI_0vol augmente de 7 % par rapport à celle de BI_0eq. Cela peut être dû à l'augmentation de la quantité de mortier entre les deux formulations. L'augmentation de la conductivité thermique entre le mortier et BI_0vol fait penser que les granulats GN doivent avoir une conductivité thermique supérieure à celle du mortier et la diminution de la conductivité thermique de BI_50 fait penser que les coquilles GH doivent avoir une conductivité thermique inférieure. Cependant, les résultats obtenus sur GH et GN montrent que la conductivité thermique des GN est probablement sous-estimée par la méthode de mesure. En effet, la masse volumique des GN est 20% plus grande que celle de MVI_vol mais sa conductivité thermique estimée est 4% plus faible. La répétition des mesures sur deux éprouvettes de BI_50 a aussi permis de montrer que l'écart-type de mesure pour une même formulation était de 0.08 W/m/K. Pour vérifier que cette différence de conductivité thermique sur les bétons est bien dû à la différence de conductivités thermiques sur les granulats une modélisation est nécessaire.

TABLEAU 3. Conductivités thermiques et masses volumiques des matériaux. Les masses volumiques de GH et GN sont obtenues par la NF EN 1907-6 et leurs conductivités thermiques par le schéma HS.

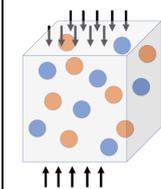
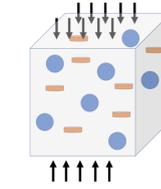
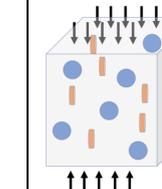
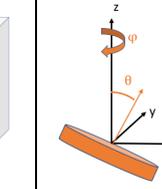
	BI_0eq	BI_0vol	BI_50	MI_vol	GN	GH
Conductivité th. - 20°C, 50% (W/m/K)	1.96	2.11	1.57	1.88	/	/
Conductivité th. - Etat sec (W/m/K)	1.81	1.70	1.34	1.47	1.41	0.99
Masse volumique – Etat sec (kg/m ³)	2130	2079	1951	1946	2477	2092

V. HOMOGENEISATION DU COMPORTEMENT DES BETONS COQUILLIERS

A. Comportement élastique

Les paramètres variables de simulation choisis sont présentés dans le tableau 4 : il s'agit du module d'Young de GH, de la forme de GH et de l'orientation de GH. L'ordre de grandeur du module d'Young du mortier a été identifié en fonction du module d'Young de BI_0vol à 24 GPa. La mesure expérimentale sur éprouvette 4x4x16 cm a donné un module d'Young pour MI_vol de 44 GPa. Cette différence peut être expliquée car la mesure sur éprouvette 4x4x16 cm ne respecte pas la théorie des poutres d'Euler-Bernoulli et le module d'Young est alors surestimé d'un facteur 2 environ.

TABLEAU 4. Paramètres variables pour GH et schémas des géométries associées (GN bleu, GH orange)

Paramètre variable pour GH	E_{GH}	Forme de GH et Orientation de GH		
Forme GN	Sphère	Sphère	Sphère	Sphère
Forme GH	Sphère	Palet	Palet	Palet
Orientation	/	Perpendiculaire	Parallèle	Tous angles
E_{GN} (GPa)	55	55	55	55
E_{GH} (GPa)	15 ou 45	55 ou 15	55 ou 15	15
Schéma				

Les résultats sont présentés en Fig. 6 : ils montrent que le facteur le plus influent sur le module d'Young des bétons est le module d'Young des coquilles. Ainsi, le module d'Young de BI_50 diminue de 22 % par rapport à BI_0vol en supposant que le module d'Young des GH est de 15 GPa. L'impact de la forme des GH est très faible (environ 1 %). De même, l'impact de l'orientation de GH sur le module d'Young est très faible : environ 0,1 % en supposant que toutes les GH ont la même orientation dans le béton. Or dans le béton, les GH prennent en réalité toutes les orientations possibles. Ainsi si la répartition de l'orientation est aléatoire, le module d'Young obtenu sera borné par les cas extrêmes (palets parallèles ou perpendiculaires) ce qui diminuera davantage l'impact de l'orientation des palets sur le module d'Young des bétons. Ces résultats sont compatibles avec ceux de (Beddaa *et al.*, 2022) qui avaient montré que si l'on ne considère pas de zone d'interface entre les granulats et la pâte de ciment, l'impact de la forme des granulats est très réduit. Les résultats semblent indiquer que lorsqu'une coquille est sollicitée, la sollicitation des phases poreuses contrôle la réponse globale de la coquille à cause de la différence de raideur entre les phases denses et les phases poreuses. De plus, les déformations dans les bétons testés au pic sont d'environ 0,3 % alors que 30% des coquilles sont constituées de phases poreuses. Cependant, même en considérant que toute la coquille réagit comme si son module d'Young était celui de la phase poreuse, cela ne suffit pas à atteindre le point expérimental. Pour expliquer cela, il pourrait exister une zone d'interface entre les coquilles et la pâte cimentaire avec des propriétés mécaniques plus faibles et le module d'Young de la phase poreuse pourrait aussi être surestimé par nano-indentation.

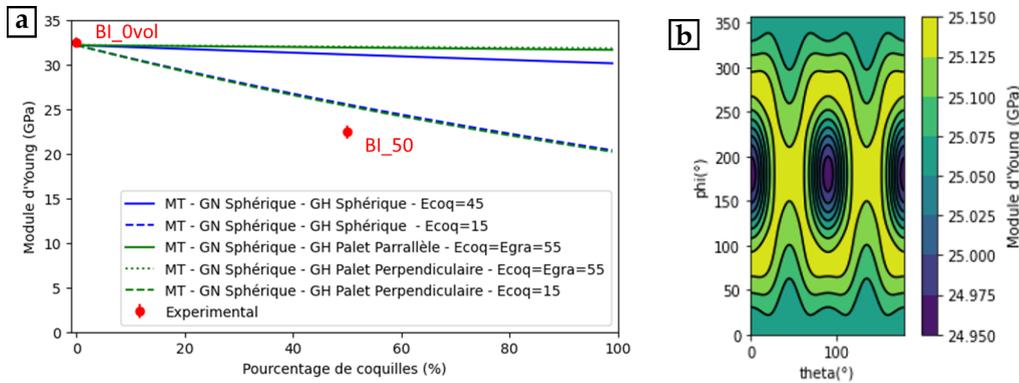


FIGURE 6. Impact des coquilles sur le module d'Young des bétons. a/ Impact des paramètres de simulation, b/ Impact de l'orientation des palets pour 50 % des GN remplacés par GH

B. Homogénéisation des conductivités thermiques des bétons

L'homogénéisation des conductivités thermiques des bétons est effectuée en supposant que tous les constituants sont secs. La Fig. 7 présente les résultats obtenus par homogénéisation en faisant varier à la fois la conductivité thermique des GH et GN (calculés selon le schéma HS ou AC) et la forme des coquilles ainsi que leur orientation. Les calculs sont tout d'abord effectués à partir des résultats expérimentaux. Puis une simulation a été faite en recalant la valeur de la conductivité thermique des granulats pour coller aux résultats expérimentaux.

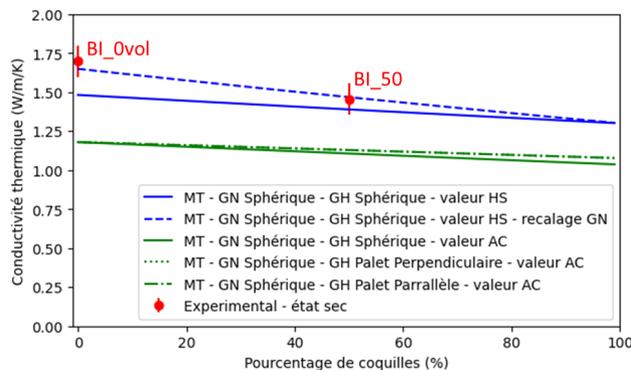


FIGURE 7. Conductivités thermiques des bétons en fonction de la forme des GH et du schéma utilisé pour calculer les propriétés intrinsèques de GH et GN (HS=Hashin-Shtrikman et AC=auto-cohérent)

Les résultats montrent que les valeurs de conductivité thermique calculées par le schéma HS permettent d'obtenir des résultats par homogénéisation plus proches des résultats expérimentaux que celles obtenues par le schéma AC. Ce résultat semble cohérent avec les masses volumiques des matériaux obtenues. Les résultats montrent aussi que l'impact de la forme des GH ou de leur orientation sur la conductivité thermique des bétons est très faible (moins de 1 %). Afin de recalibrer les résultats de modélisation avec les résultats expérimentaux, la conductivité thermique des GN à l'état sec a été estimée à 2,4 W/m/K. Ainsi, la diminution de la conductivité des bétons en présence de coquilles peut-être en partie expliquée par la plus faible conductivité des GH. En revanche, à cause des incertitudes de mesure il n'est pas possible de savoir ici si d'autres facteurs comme un potentiel effet entraîneur d'air dû à la forme des coquilles interviennent.

VI. CONCLUSION ET PERSPECTIVES

L'étude présentée a permis de comprendre le comportement élastique et thermique des bétons incorporant des co-produits coquilliers grâce à une campagne expérimentale et numérique. La mesure des paramètres intrinsèques des granulats a permis de fournir des données d'entrée pour une modélisation par homogénéisation. Il a été montré que le comportement élastique des bétons coquilliers dépend fortement du comportement de la phase poreuse des coquilles. Le comportement thermique des bétons est en grande partie dû aux propriétés thermiques des coquilles mais la modélisation n'a pas permis de savoir si un autre facteur intervenait.

Ce travail pourrait être complété en prenant en compte l'effet de la zone interfaciale autour des granulats et des coquilles avec la pâte cimentaire. L'objectif, ensuite, serait de modéliser d'autres paramètres comme la résistance mécanique des bétons de coquilles, leurs propriétés hygriques et leurs propriétés de durabilité pour aller vers une optimisation des formulations.

REFERENCES

- Agreste (Ed.), 2021. Enquête Aquaculture 2020 | Agreste, la statistique agricole. SSP - Bureau des statistiques structurelles, environnementales et forestières.
- Beddaa, H., Lavergne, F., Ben Fraj, A., Barthélémy, J.-F., Torrenti, J.-M., 2022. Experimental investigation and micromechanical modeling of mechanical and durability properties of concrete based on shells from sediments. *Cement and Concrete Composites* 133, 104684. <https://doi.org/10.1016/j.cemconcomp.2022.104684>
- Bourdot, A., Martin--Cavaillé, C., Vachet, M., Honorio, T., Sebaibi, N., Bennacer, R., 2021. Microstructure and durability properties of concretes based on oyster shell co-products. Presented at the 75th Rilem Annual Week, Merida, Mexico.
- Eo, S.-H., Yi, S.-T., 2015. Effect of oyster shell as an aggregate replacement on the characteristics of concrete. *Magazine of Concrete Research* 67, 833–842. doi.org/10.1680/mac.14.00383
- Hashin, Z., Shtrikman, S., 1963. A variational approach to the theory of the elastic behaviour of multiphase materials. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 11, 127–140. [https://doi.org/10.1016/0022-5096\(63\)90060-7](https://doi.org/10.1016/0022-5096(63)90060-7)
- Huang, G., Abou-Chakra, A., Absi, J., Geoffroy, S., 2022. Optimization of mechanical properties in anisotropic bio-based building materials by a multiscale homogenization model. *Journal of Building Engineering* 57, 104890. <https://doi.org/10.1016/j.job.2022.104890>
- Martin--Cavaillé, C., Bourdot, A., Sebaibi, N., Bennacer, R., 2022. Microscopic and chemical characterization of seashell co-products for valorization in cementitious materials, in: 40ème Rencontres Universitaires de Génie Civil, Lille, France, pp. 383–386.
- Mercier, S., Molinari, A., 2009. Homogenization of elastic–viscoplastic heterogeneous materials: Self-consistent and Mori-Tanaka schemes. *International Journal of Plasticity* 25, 1024–1048. <https://doi.org/10.1016/j.ijplas.2008.08.006>
- Mo, K.H., Alengaram, U.J., Jumaat, M.Z., Lee, S.C., Goh, W.I., Yuen, C.W., 2018. Recycling of seashell waste in concrete: A review. *Construction and Building Materials* 162, 751–764. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2017.12.009>
- Mori, T., Tanaka, K., 1973. Average stress in matrix and average elastic energy of materials with misfitting inclusions. *Acta Metallurgica* 21, 571–574. [/10.1016/0001-6160\(73\)90064-3](https://doi.org/10.1016/0001-6160(73)90064-3)
- Mura, T., 1987. *Micromechanics of Defects in Solids*. Springer Netherlands.

Des bactéries au service de la durabilité des structures en béton armé en environnement marin

Julie Dubuit ^{1,2,3}

¹ LMDC, Université de Toulouse, UPS, INSA, 135 avenue de Rangueil, 31077, Toulouse Cedex 4, France

² Laboratoire de Génie Chimique, Université de Toulouse, CNRS, INPT, UPS, Toulouse, France

³ CORROHM, 815 La Pyrénéenne, 31670, Labège, France

RESUME La gestion de la corrosion dans les structures en béton armé (BA) revêt une importance capitale en matière d'impact environnemental, de sécurité des usagers et de coûts financiers. Ce constat est particulièrement vrai pour les structures BA en environnement marin, plus gravement touchées du fait de l'agressivité de l'eau de mer. L'objectif de ce travail de recherche est d'étudier une nouvelle biotechnologie dédiée à l'anticorrosion des structures maritimes en BA : la protection cathodique biogalvanique (PCBG). Il s'agit d'une solution innovante et respectueuse de l'environnement inspirée des piles à combustible microbiennes benthiques. Des micro-organismes électro-actifs, naturellement présents dans les sédiments marins, peuvent former des biofilms à la surface de matériaux conducteurs (électrodes). Le complexe électrode-biofilm forme une bioanode capable de générer des électrons par le biais d'un processus bactérien naturel d'oxydation de matières organiques présentes dans les sédiments. Les bioanodes peuvent alors fournir spontanément un courant de protection cathodique à une structure BA située dans son environnement immédiat. Des essais en laboratoire et in situ ont permis de confirmer la faisabilité de cette nouvelle solution de maintenance bio-électrochimique.

Mots-clés Béton armé, Corrosion, Protection Cathodique, Environnement marin, Anode microbienne

I. INTRODUCTION

Les objectifs de développement durable de l'ONU (Nations Unies, 2020) visent à répondre au défi environnemental et climatique à relever collectivement et soulignent l'importance de mettre en place des actions à l'échelle industrielle. En effet, l'impact environnemental des différents secteurs industriels (transports, agriculture, industrie manufacturière, construction) est colossal. En particulier, le secteur de la construction représenterait 18% des émissions de gaz à effet en France, correspondant à 78 Mt CO₂ eq (notre-environnement.gouv.fr). Il est donc essentiel d'inscrire l'industrie de la construction, et plus particulièrement du béton armé, dans une logique plus durable, en réduisant ses émissions de CO₂, sa consommation d'énergie et de ressources, ainsi qu'en minimisant la production de déchets.

Le béton est le matériau le plus utilisé par l'Homme après l'eau (Gagg, 2014). La production de ciment à elle seule représente 8,6% des émissions totales anthropogènes de CO₂ (Miller et al., 2016), majoritairement du fait de la calcination du clinker. Afin de s'orienter vers une industrie de la construction bas carbone, différents leviers d'action sont possibles, comme la diminution de

L'utilisation de ressources naturelles, la réduction des émissions de gaz à effet de serre, la réduction de la consommation d'énergie ou encore l'augmentation de la durée de vie des structures. Parmi les différents leviers d'action, les travaux de recherche présentés ci-après portent en particulier sur l'augmentation du cycle de vie des structures existantes. La préservation et la maintenance du patrimoine bâti peut grandement contribuer à réduire l'impact environnemental de l'industrie de la construction. La lutte contre la corrosion des aciers dans les bétons s'inscrit donc dans une logique globale de construction bas carbone. En effet, de nombreuses structures en béton armé (BA) sont aujourd'hui affectées par la corrosion, principale cause de leur vieillissement prématuré (François et al., 2018). La pathologie a un impact significatif en termes d'environnement, de sécurité des utilisateurs et de coûts financiers (Angst, 2018). Les coûts totaux associés à la corrosion des infrastructures représentent environ 4% du PIB des pays industrialisés chaque année (Koch, 2017).

Pour lutter contre la corrosion, des technologies de maintenance électrochimique connaissent un essor très important ces dernières années. C'est le cas de la protection cathodique (PC) et de la prévention cathodique (Pedefferri, 1996), qui permettent de ralentir l'évolution de la pathologie, voire de la stopper. Ces technologies de maintenance électrochimique présentent cependant certains inconvénients présentés ci-après.

Les travaux de recherche présentés dans cet article portent sur le développement d'une technologie plus vertueuse de maintenance préventive des structures BA contre la corrosion en environnement marin : la Protection Cathodique BioGalvanique (PCBG), dont la preuve de concept a été établie dans le cadre d'une étude précédente (Dubuit et al., 2023). La PCBG est dérivée de la technologie des piles à combustible microbiennes benthiques (PCMB) - le terme benthique référant à ce qui vit au fond des eaux - qui constituent une source d'énergie électrique renouvelable (Zabihallahpoor et al., 2015).

II. CORROSION ET PROTECTION CATHODIQUE DES STRUCTURES EN BETON ARME

A. Le phénomène de corrosion des aciers dans le béton

Plongé dans le béton, l'acier se passive du fait de la forte alcalinité de la solution porale (pH élevé). La passivation est générée par la formation d'une couche d'oxydes fine et dense, qui forme une barrière protectrice entre l'acier et le béton d'enrobage. Cependant, l'équilibre de la couche passive peut être perturbé soit par :

- une acidification de la solution porale du béton du fait de la carbonatation, qui provoque la dissolution de la couche de passivation,
- une attaque par des agents agressifs comme les ions chlorures, qui, en quantité suffisante, peuvent localement détruire la couche passive.

L'endommagement du film passif mène alors à la formation d'un site de corrosion. Au niveau du site de corrosion, l'acier est dit actif tandis que le reste de l'acier demeure à l'état passif. Un courant circule alors entre le site de corrosion (acier actif) et les zones d'acier passif qui l'entourent. Il y a oxydation du fer au niveau du site actif (Equation (1)) qui perd alors des électrons. Ces électrons sont ensuite consommés dans une réaction de réduction du dioxygène (Equation (2)) en surface des sites passifs (Fig. 1).



L'acier est principalement composé d'atomes de fer spatialement structurés, i.e. formant un réseau cristallin. La cohésion de ce réseau est assurée par la mise en commun des électrons de la couche externe de chaque atome de fer. Ces électrons forment ainsi un gaz d'électrons libres (principe de la liaison métallique). Lorsque la couche passive est détruite localement, les propriétés électrochimiques de l'acier sont modifiées au niveau du site actif. En particulier, une différence de potentiel s'établit entre le site actif et les sites passifs environnants. La dépassivation entraîne alors une force électromotrice (différence de potentiel = tension électrique) qui tend à déplacer les électrons libres du site actif vers les sites passifs à l'intérieur de l'acier. La zone active subit ainsi une perte d'électrons, lesquels sont forcés à migrer vers les sites passifs sous l'effet du champ électrique (tension). Ce phénomène entraîne l'affaiblissement de la liaison métallique au niveau du site actif et, subséquemment, la dissolution locale du métal. De manière métaphorique, on peut considérer la corrosion d'une zone d'acier actif comme une hémorragie locale d'électrons.

Les environnements marins sont particulièrement agressifs pour les structures en BA en raison de la présence d'ions chlorure, qui favorisent la dépassivation locale des aciers et l'accélération des cinétiques de corrosion par leur effet sur la résistivité électrique du béton. S'en suit généralement une détérioration rapide du béton d'enrobage du fait de la formation d'oxydes expansifs. Le phénomène est aggravé en zone de marnage du fait de l'alternance de cycles d'humidification-séchage qui favorisent le transport du dioxygène et des ions chlorure vers les aciers d'armature (Abd El Fattah et al., 2018; Costa and Appleton, 2002).

Il existe des techniques de maintenance électrochimique permettant de prolonger significativement la durée de vie des ouvrages en BA sujets à la corrosion des aciers. C'est le cas de la protection cathodique (PC) et de la prévention cathodique (Pedefferri, 1996). Le principe fondamental de la protection cathodique est simple : pour lutter contre une hémorragie d'électrons, la structure est placée sous perfusion d'électrons.

B. La protection cathodique, une technologie de maintenance électrochimique pour lutter contre la corrosion

La protection cathodique est une technique de maintenance électrochimique permettant de lutter contre la corrosion. Elle regroupe aujourd'hui deux technologies ayant prouvé leur efficacité : la protection cathodique par courant imposé (PCCI) et la protection cathodique par courant galvanique (PCCG) (Bertolini et al., 1998). L'objectif de la PC consiste à fournir des électrons en quantité suffisante à la structure corrodée au moyen d'un système anodique, afin de stopper les échanges entre les sites actifs et passifs (Fig. 1). Son application est encadrée par la norme ISO 12696:2022 ("ISO 12696: 2022 - Protection cathodique de l'acier dans le béton," 2022).

La PCCI est basée sur l'utilisation d'anodes inertes, généralement en titane revêtu d'oxydes métalliques mixtes, et connectées à un générateur de courant. Ce dernier force la génération d'électrons en surface de l'anode par l'oxydation de l'eau ou des ions hydroxyles selon le pH de l'électrolyte (Zhang et al., 2018). Dans le cas des structures précontraintes, cette technologie doit être déployée avec prudence car elle s'accompagne d'un risque de sur-polarisation des aciers pouvant mener à un dégagement d'hydrogène et, subséquemment, à une rupture fragile des aciers à haute limite d'élasticité (fragilisation par l'hydrogène). Il existe aussi un risque d'acidification en

zone anodique qui peut affecter négativement les performances de la protection (Hu et al., 2019). Enfin, n'étant pas autonome, la PCCI requiert une connexion permanente au réseau de distribution électrique, entraînant une consommation énergétique pendant toute la durée de vie de la structure. Dans le contexte énergétique actuel, l'augmentation forte des projets de PCCI attendue au cours des prochaines années viendra s'ajouter aux besoins toujours croissants en électricité.

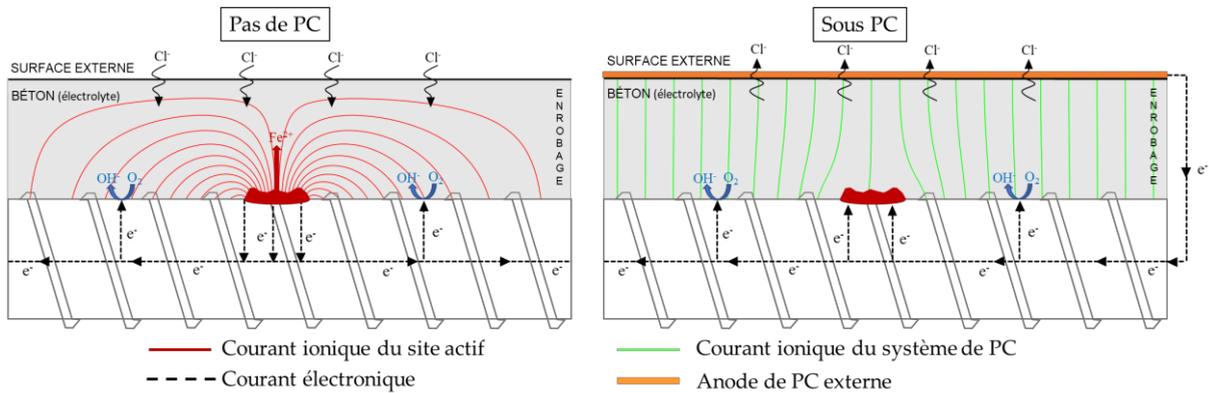


Figure 1. Représentation schématique de la corrosion et de la protection cathodique, illustrant les échanges de courant impliqués (courants électroniques dans l'acier et ioniques dans le béton). La migration des ions chlorures ainsi que l'oxydation du fer et la réduction du dioxygène sont également représentées.

La PCCG est basée sur l'utilisation d'anodes galvaniques composées d'un métal ou alliage dont le potentiel électrochimique est plus électronégatif que celui de l'acier à protéger. On parle d'anodes sacrificielles. Dans le cas de la PC des structures en BA, le zinc ou des alliages de zinc sont utilisés. La différence de potentiel entre le zinc et les aciers conduit à une polarisation anodique du zinc qui s'oxyde et fournit ainsi naturellement des électrons aux armatures. La consommation du zinc conduit cependant au relargage d'oxydes métalliques dans l'environnement. Lorsque la structure est en contact avec l'eau, comme dans les environnements marins, les ions relargués présentent un caractère toxique pour la faune et la flore locales (Imbert-Auvray et al., 2023). De plus, la pérennité des anodes galvaniques est limitée. De par leur rôle sacrificiel, elles doivent être remplacées à échéances régulières selon l'intensité du courant échangé (entre 10 et 25 ans), afin d'assurer la protection de la structure. Le renouvellement régulier des anodes galvaniques nécessite donc l'utilisation de quantités non négligeables de métaux dont la disponibilité est limitée, et implique des processus industriels délétères en matière d'environnement.

II. DES PILES MICROBIENNES BENTHIQUES A LA PROTECTION CATHODIQUE BIOGALVANIQUE

A. Principe de fonctionnement des piles à combustible microbiennes benthiques

Les PCMB permettent d'extraire de l'énergie des fonds marins grâce à des micro-organismes électro-actifs. Grâce à leur métabolisme, ces derniers convertissent l'énergie chimique de leur environnement en énergie électrique (Reimers et al., 2001).

Le principe des PCMB repose sur l'existence d'un gradient de potentiel naturel (spontané) entre des électrodes placées dans des sédiments anoxiques et des électrodes placées dans l'eau de

mer (milieu oxygène). Aujourd'hui, leur fonction consiste généralement à alimenter des systèmes métrologiques situés dans des environnements marins isolés, où l'accès aux sources d'énergie traditionnelles est impossible. Ces systèmes de capteurs sont dédiés à l'acquisition de données environnementales comme la température ou la concentration en dioxygène dissous (Reimers and Wolf, 2018).

Pour réaliser l'anode de la PCMB, une électrode à base d'un matériau conducteur (souvent carboné car inerte) est enfouie dans les sédiments marins où elle est colonisée par des micro-organismes, qui forment spontanément un biofilm à sa surface. Le complexe ainsi formé (électrode + biofilm) est qualifié d'anode microbienne ou bioanode. Ces micro-organismes expriment des propriétés électro-actives (Erable et al., 2010; Lovley, 2006) qui leur permettent de générer des électrons en consommant la matière organique (MO) et divers substrats présents naturellement dans les sédiments. L'anode microbienne est connectée à une cathode constituée d'une autre électrode mise en place dans l'eau de mer. La différence de potentiel spontanée entre ces 2 électrodes situées respectivement en zones anoxique et oxygène permet de générer un courant électrique entre l'anode microbienne et la cathode, courant utilisé pour alimenter le système métrologique isolé (capteurs).

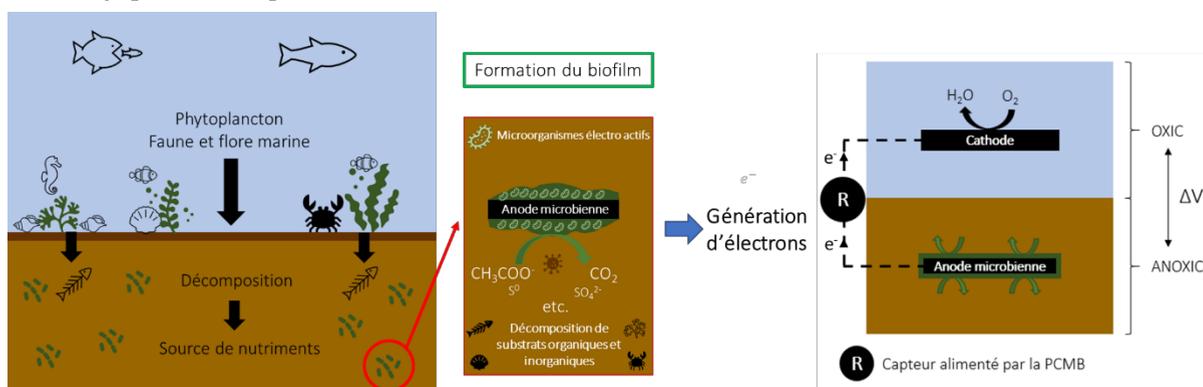


Figure 2. Schématisation du principe de fonctionnement des anodes microbiennes et des piles à combustible microbiennes benthiques.

B. Des piles à combustible microbiennes benthiques à la protection cathodique biogalvanique

La protection cathodique biogalvanique (PCBG) s'inspire de la technologie des PCMB. L'objectif est de générer une PCMB dans laquelle la cathode est constituée par les aciers d'armature de la structure à protéger contre la corrosion.

A l'instar des PCMB, les électrons nécessaires à la maintenance préventive des infrastructures sont fournis par un processus bactérien naturel d'oxydation se développant dans les sédiments marins et qui confère à cette nouvelle technologie un caractère autonome, durable et écologique.

Les espèces chimiques oxydées par les micro-organismes électro-actifs sont des composés inorganiques ou organiques réduits issus des cycles biogéochimiques du soufre et du carbone (Lowy et al., 2006). Ces composés sont le « carburant » de la PCMB. En effet, leur décomposition bio-électrochimique (Rimboud et al., 2014) conduit à la génération d'un flux d'électrons collectés par les anodes, à l'origine d'un courant électrique (Fig. 4). Ces courants électriques sont durables

car le « carburant » nécessaire est continuellement régénéré par des processus naturels dans les sédiments, du fait de la biodégradation des macro- et micro-organismes, de la décomposition des plantes, des algues, etc. Plusieurs PCMB ont produit de l'électricité en continu pendant plus d'un an (Reimers et al., 2022; Reimers and Wolf, 2018).

La PCBG constitue ainsi une alternative ou un complément aux technologies actuelles de protection cathodique. Son intérêt repose sur le caractère renouvelable à l'infini, gratuit et éco-responsable de l'énergie électrique produite par le système bactérien, nécessaire pour protéger la structure contre la corrosion. Cette nouvelle technologie se pose ainsi comme l'une des nombreuses réponses à apporter aux différents défis de l'industrie de la construction. Elle permet d'agir sur la réduction de la consommation d'énergie et de ressources naturelles en augmentant la durée de vie des ouvrages et s'affranchit des désavantages de la PCCI et la PCCG.

III. ETUDE EXPERIMENTALE DE LA PCBG SUR UN PILOTE DE LABORATOIRE

Les potentialités de la PCBG ont été étudiées à l'aide d'un pilote de laboratoire (Fig. 3). Une pile en béton de 3 mètres a été conçue et immergée dans un réservoir contenant 60 cm de sédiments marins naturels (Gruissan, France) et de l'eau de mer naturelle sur une hauteur d'un mètre environ. Le dispositif expérimental vise à répliquer les conditions d'exposition d'une structure en BA semi-immersée en environnement marin. Des anodes microbiennes ont été enfouies dans les sédiments puis connectées aux aciers présents dans la pile. Le pilote est instrumenté au moyen d'une centrale d'acquisition (Keysight) afin de mesurer le courant échangé entre les anodes microbiennes et le réseau d'aciers.

De manière à pouvoir observer la distribution du courant de protection vers les aciers dans la hauteur de la pile, les armatures ont été discrétisées en segments disjoints. Ainsi, les segments d'acier sont répartis sur la hauteur de la pile en 20 niveaux et en 4 colonnes. La continuité du réseau d'armatures a été rétablie extérieurement via des câbles électriques connectés aux segments d'acier et permettant de mesurer les courants reçus par chaque segment à l'aide de la centrale d'acquisition et de shunts de mesure. La Fig. 3 présente la distribution des segments d'acier dans la hauteur et un schéma de principe de la PCBG appliquée au pilote.

Les performances de ce système expérimental de PCBG, en matière de densités de courant reçues par les différents segments d'acier, ont été monitorées en continu afin d'apprécier leur évolution dans le temps. La Fig. 4 permet d'apprécier l'allure de la distribution des densités de courant dans la hauteur de la pile. Ici, l'étude a été réalisée en ne mobilisant qu'une colonne d'acier parmi les 4 présentes dans la pile, avec un ratio entre la surface anodique et cathodique de 0.3. Qualitativement, on observe un pic de courant de protection au niveau de la zone de marnage et d'éclaboussure. Le courant de protection se concentre naturellement dans cette zone qui, comme indiqué précédemment est fortement critique vis-à-vis des risques de corrosion. Elle s'inscrit en effet dans la classe d'exposition XS3 selon la norme EN/206 (Fig. 3). Cette concentration naturelle du courant de protection vers les aciers de la zone de marnage constitue un résultat très positif en vue de l'application de la PCBG comme technologie de maintenance préventive contre la corrosion.

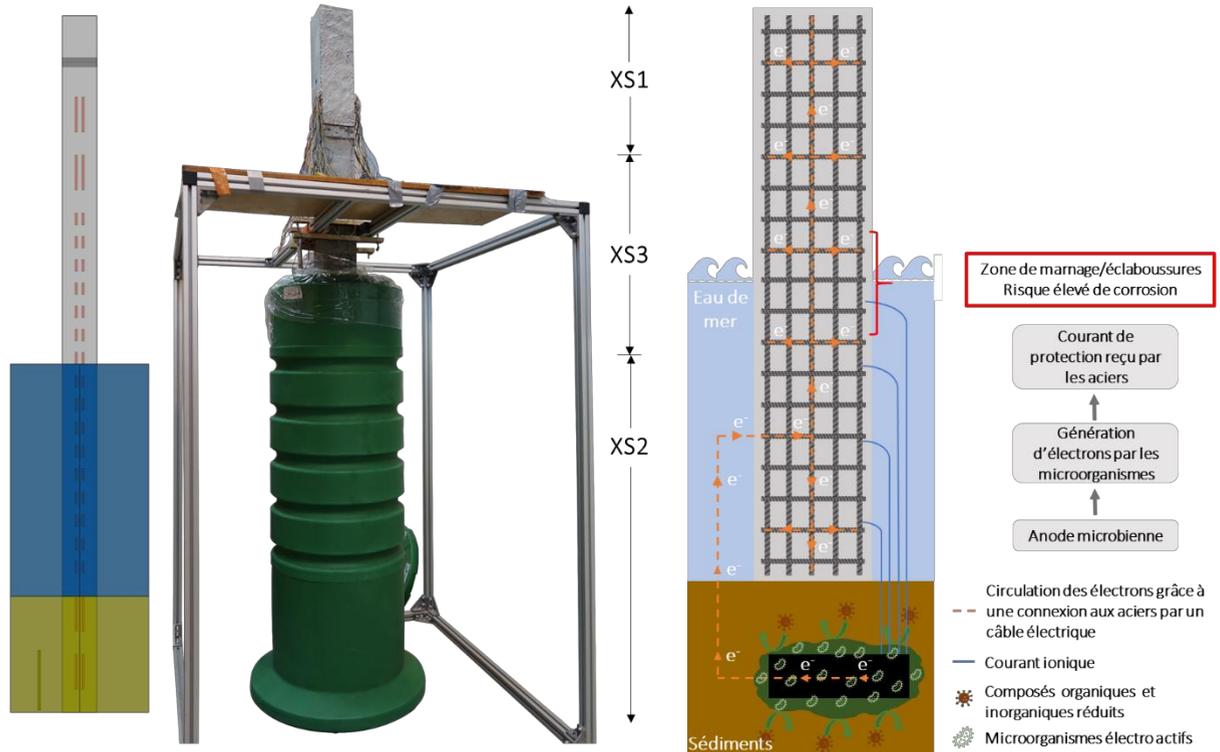


Figure 3. Présentation du pilote expérimental de laboratoire et du principe de fonctionnement de la protection cathodique bioalvanique.

La Fig.4 montre également qu'au cours des premiers mois de fonctionnement de la PCBG, les courants mesurés sont significatifs. On observe notamment un pic de courant après 2 mois à environ $4,5 \text{ mA/m}^2$, qui s'inscrit dans la gamme des courants de protection selon la norme ISO 12696:2022. Une majorité des segments dans la zone de marnage sont dans la gamme de protection ($2\text{-}20 \text{ mA/m}^2$ d'acier). Les autres segments se trouvent dans la gamme de prévention cathodique ($0,2\text{-}2 \text{ mA/m}^2$ d'acier) mentionnée par la norme. Après 17 mois de fonctionnement, on peut cependant observer une chute significative des densités de courant de protection reçues, possiblement liée aux variations de température ou l'épuisement de la MO. La tendance de distribution dans la hauteur demeure quant à elle inchangée, avec un pic toujours situé dans la zone de marnage. Les densités de courant observées s'inscrivent tout de même dans la gamme de prévention cathodique pour l'ensemble des tronçons jusqu'à environ 2 m, à savoir la frontière entre la zone de marnage et la zone exposée à l'air. Ainsi, après environ 1 an et demi de fonctionnement en laboratoire, c'est-à-dire en système fermé et sans renouvellement de la MO, le système de PCBG permet de fournir un courant de prévention significatif à la pile semi-immersée. Ces dernières remarques conduisent enfin à un questionnement relatif à la gestion de l'appauvrissement des sédiments en MO (carburant de la pile). Cette question constitue l'un des axes d'étude de la suite de ces travaux.

La faisabilité de la PCBG a également été éprouvée en conditions réelles (Fig.5). 12 bioanodes ont été préalablement installées sur un piquet en PVC (Fig.5-A), puis enfouies jusqu'à un mètre de profondeur dans la couche sédimentaire d'un bassin ostréicole (Fig.5-B). Cet essai s'est révélé particulièrement concluant car, après environ 20 jours de formation du biofilm, les potentiels naturels de l'ensemble des bioanodes ont atteint une gamme de valeurs propices à une protection cathodique galvanique efficace, de l'ordre de -600 à $-700 \text{ mV vs Ag/AgCl/Eau de Mer}$ (Fig.5-C).

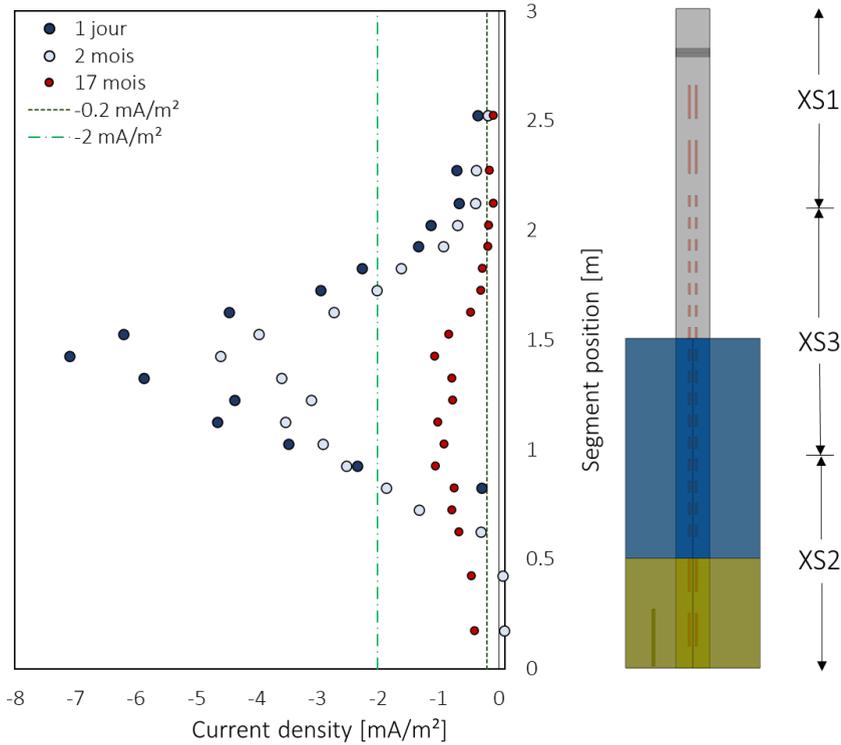


Figure 4. Evolution de la distribution de la densité de courant de protection fourni par l’anode microbienne dans le temps. Un pic de courant est visible dans la zone de marnage, à savoir la zone correspondant à la classe d’exposition XS3. Les gammes de courant de protection (2-20 mA/m² d’acier) et de prévention (0,2-2 mA/m² d’acier) recommandées par la norme de protection cathodique ISO 12696:2022 sont indiquées respectivement en tirets verts et pointillés bleus. Les densités de courant sont négatives car, par convention, le courant fourni par l’anode est positif et le courant reçu par les aciers est négatif.

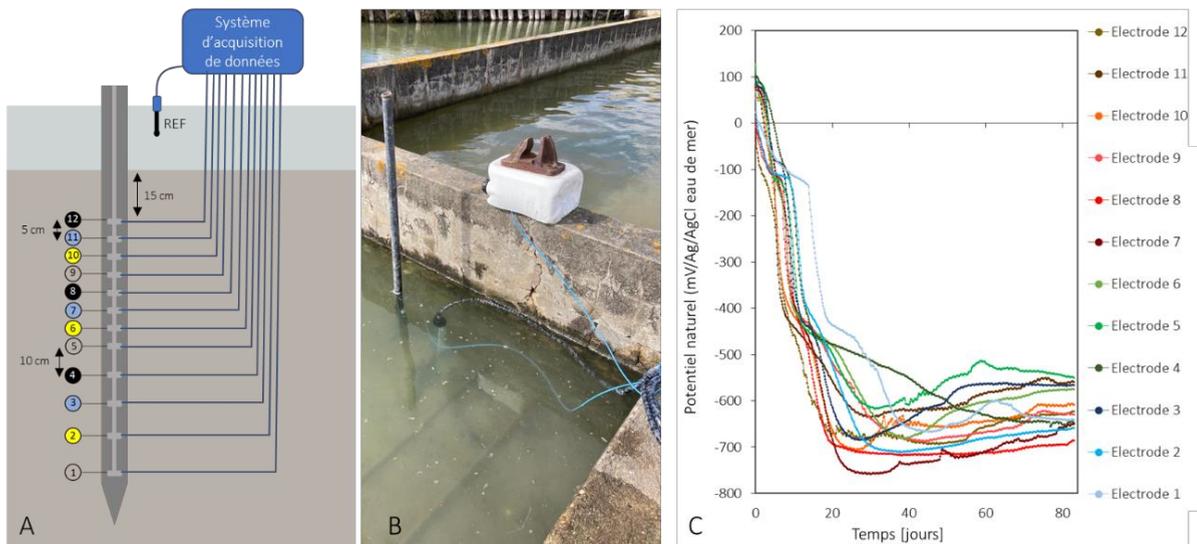


Figure 5. Expérimentation in situ dédiée à la mesure des potentiels naturels de bioanodes en conditions sédimentaires réelles et à différentes profondeurs.

Les expérimentations conduites en laboratoire et in situ sont par ailleurs complétées par des travaux de modélisation et de simulation numérique, dans le but de développer en parallèle des outils de conception assistée par ordinateur des futurs systèmes de PCBG (Dubuit et al., 2023).

IV. CONCLUSION

La protection cathodique biogalvanique (PCBG) constitue une alternative nouvelle et écoresponsable aux technologies actuelles de maintenance anticorrosion des structures en béton armé en environnement marin. Elle s'inspire de travaux récents réalisés dans le domaine des piles à combustible microbiennes benthiques (PCMB). Un pilote expérimental de laboratoire a montré la capacité d'anodes microbiennes enfouies dans des sédiments marins à générer des niveaux de courant de protection cathodique significatifs, suffisants pour préserver une structure en béton armé partiellement immergée en eau de mer. De plus, le courant de protection fourni aux aciers se concentre naturellement dans la zone de marnage de la structure, à savoir la zone la plus critique vis-à-vis du risque de corrosion. Au cours des premiers mois de fonctionnement de la technologie, les densités de courant de protection observées s'inscrivent dans la gamme de protection cathodique selon la norme ISO 12696:2022. Une diminution des densités de courant est ensuite observée, passant alors dans la gamme de prévention cathodique. On note que cette diminution de l'efficacité de la PCBG est probablement imputable aux conditions de laboratoire (milieu fermé), dans lesquelles la matière organique (carburant de la PCMB) n'est pas naturellement renouvelée. Enfin, les premiers tests de PCBG en conditions réelles ont montré que les potentiels naturels des bioanodes étaient suffisamment électro-négatifs pour envisager une protection cathodique biogalvanique efficace de structures en béton armé en environnement marin. Le corpus de résultats expérimentaux et numériques obtenus au cours de ces travaux confirme les potentialités de cette nouvelle technologie de maintenance bio-électrochimique en matière d'anticorrosion.

REFERENCES

- Abd El Fattah, A., Al-Duais, I., Riding, K., Thomas, M., 2018. Field evaluation of corrosion mitigation on reinforced concrete in marine exposure conditions. *Construction and Building Materials* 165, 663–674. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2018.01.077>
- Angst, U.M., 2018. Challenges and opportunities in corrosion of steel in concrete. *Mater Struct* 51, 4. <https://doi.org/10.1617/s11527-017-1131-6>
- Bertolini, L., Bolzoni, F., Pedferri, P., Lazzari, L., Pastore, T., 1998. Cathodic protection and cathodic prevention in concrete: principles and applications. *Journal of Applied Electrochemistry* 28, 1321–1331. <https://doi.org/10.1023/A:1003404428827>
- Costa, A., Appleton, J., 2002. Case studies of concrete deterioration in a marine environment in Portugal. *Cement and Concrete Composites, CORROSION AND CORROSION MONITORING* 24, 169–179. [https://doi.org/10.1016/S0958-9465\(01\)00037-3](https://doi.org/10.1016/S0958-9465(01)00037-3)
- Dubuit, J., Laurens, S., Bertron, A., Garcia, D., Etcheverry, L., Deby, F., Erable, B., 2023. Biogalvanic cathodic protection of reinforced concrete structures in marine environments. *Construction and Building Materials* 403, 133180. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2023.133180>
- Erable, B., Duțeanu, N.M., Ghangrekar, M.M., Dumas, C., Scott, K., 2010. Application of electro-active biofilms. *Biofouling* 26, 57–71. <https://doi.org/10.1080/08927010903161281>

- François, R., Laurens, S., Deby, F., 2018. Corrosion and its Consequences for Reinforced Concrete Structures. Elsevier.
- Gagg, C.R., 2014. Cement and concrete as an engineering material: An historic appraisal and case study analysis. *Engineering Failure Analysis* 40, 114–140. <https://doi.org/10.1016/j.engfailanal.2014.02.004>
- Hu, J., Wang, Y., Zhang, Z., Guo, W., Ma, Y., Zhu, W., Wei, J., Yu, Q., 2019. Evaluation on the acidification damage of the external anode mortar induced by impressed current cathodic protection. *Construction and Building Materials* 229, 116869. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2019.116869>
- Imbert-Auvray, N., Fichet, D., Bodet, P.-E., Ory, P., Sabot, R., Refait, P., Graber, M., 2023. Metabolomics-Based Investigation on the Metabolic Changes in *Crassostrea gigas* Experimentally Exposed to Galvanic Anodes. *Metabolites* 13, 869. <https://doi.org/10.3390/metabo13070869>
- ISO 12696: 2022 - Protection cathodique de l'acier dans le béton, 2022.
- Koch, G., 2017. 1 - Cost of corrosion, in: El-Sherik, A.M. (Ed.), *Trends in Oil and Gas Corrosion Research and Technologies*, Woodhead Publishing Series in Energy. Woodhead Publishing, Boston, pp. 3–30. <https://doi.org/10.1016/B978-0-08-101105-8.00001-2>
- Lovley, D.R., 2006. Bug juice: harvesting electricity with microorganisms. *Nat Rev Microbiol* 4, 497–508. <https://doi.org/10.1038/nrmicro1442>
- Lowy, D.A., Tender, L.M., Zeikus, J.G., Park, D.H., Lovley, D.R., 2006. Harvesting energy from the marine sediment–water interface II: Kinetic activity of anode materials. *Biosensors and Bioelectronics* 21, 2058–2063. <https://doi.org/10.1016/j.bios.2006.01.033>
- Miller, S.A., Horvath, A., Monteiro, P.J.M., 2016. Readily implementable techniques can cut annual CO₂ emissions from the production of concrete by over 20%. *Environ. Res. Lett.* 11, 074029. <https://doi.org/10.1088/1748-9326/11/7/074029>
- Nations Unies, 2020. Objectifs de développement durable. New York: Nations Unies.
- Pedefferri, P., 1996. Cathodic protection and cathodic prevention. *Construction and Building Materials, Durability of Reinforced Concrete Structures* 10, 391–402. [https://doi.org/10.1016/0950-0618\(95\)00017-8](https://doi.org/10.1016/0950-0618(95)00017-8)
- Reimers, C.E., Tender, L.M., Fertig, S., Wang, W., 2001. Harvesting energy from the marine sediment–water interface. *Environ. Sci. Technol.* 35, 192–195. <https://doi.org/10.1021/es001223s>
- Reimers, C.E., Wolf, M., 2018. Power from Benthic Microbial Fuel Cells Drives Autonomous Sensors and Acoustic Modems. *Oceanography* 31, 98–103.
- Reimers, C.E., Wolf, M., Alleau, Y., Li, C., 2022. Benthic microbial fuel cell systems for marine applications. *Journal of Power Sources* 522, 231033. <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2022.231033>
- Rimboud, M., Pocaznoi, D., Erable, B., Bergel, A., 2014. Electroanalysis of microbial anodes for bioelectrochemical systems: basics, progress and perspectives. *Phys. Chem. Chem. Phys.* 16, 16349–16366. <https://doi.org/10.1039/C4CP01698J>
- Zabihallahpoor, A., Rahimnejad, M., Talebnia, F., 2015. Sediment microbial fuel cells as a new source of renewable and sustainable energy: present status and future prospects. *RSC Adv.* 5, 94171–94183. <https://doi.org/10.1039/C5RA15279H>
- Zhang, E.Q., Abbas, Z., Tang, L., 2018. Predicting degradation of the anode–concrete interface for impressed current cathodic protection in concrete. *Construction and Building Materials* 185, 57–68. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2018.07.025>

Formation d'un agglomérat calcomagnésien en écoulement à base de granulats recyclés pour la protection côtière.

C. Marais

LaSIE, Laboratoire des Sciences de l'Ingénieur pour l'Environnement, UMR 7356 CNRS, La Rochelle Université, La Rochelle, France

RESUME

Cette étude porte sur la formation d'un agglomérat calcomagnésien (AG), un éco-matériau formé à partir d'un dépôt calcomagnésien (DC) composé de CaCO_3 et de $\text{Mg}(\text{OH})_2$ et de la valorisation de ressources locales recyclées sous la forme de granulats recyclés (GR), destiné à la consolidation des zones côtières partiellement immergées. Deux axes majeurs ont été étudiés à savoir : (1) l'étude du mécanisme de croissance de l'agglomérat sous un écoulement d'eau de mer ; (2) l'étude de la dissolution partielle des GR au contact de l'eau de mer sur la formation et la nature du DC. Le développement d'un système d'écoulement d'eau de mer au contact d'une grille polarisée (cathode), enfouie dans des GR a permis de montrer qu'il était possible de précipiter un DC pour former des agglomérats en dehors des zones d'immersion. Bien que la croissance des agglomérats formés en écoulement reste néanmoins plus faible qu'en immersion, leurs propriétés physiques sont similaires. Les caractérisations physico-chimiques menées sur le DC formé ont montré que l'écoulement d'eau de mer et la présence des GR favorisent la précipitation de carbonates de calcium (CaCO_3). Au-delà de l'effet de l'écoulement, la dissolution des hydrates de la matrice cimentaire contenue dans les GR, se traduit par la libération d'ions pouvant favoriser la précipitation majoritaire de carbonates de calcium.

Mots-clés : dépôt calcomagnésien, écoulement, granulats recyclés, réactivité, CaCO_3

I. INTRODUCTION

L'érosion du littoral est un phénomène d'origine naturelle qui engendre des conséquences environnementales, économiques et sociales significatives, telles que la détérioration des écosystèmes ou encore, la destruction d'habitations et d'infrastructures côtières. L'intensification de ce phénomène, principalement attribuée au réchauffement climatique (tempêtes, inondations) et l'accélération de la montée du niveau des océans, estimée à près d'1m d'ici 2100 (GIEC, 2023), constitue un risque majeur pour les populations vivant près du littoral, en particulier sur les côtes françaises où plus de 10% des Français sont confrontés aux risques littoraux (Cerema REM, 2022). Bien que des aménagements littoraux, tels que des digues, ont été mis en place pour garantir la sécurité de la population. Ces infrastructures nécessitent des ressources naturelles importantes et impliquent des coûts financiers et environnementaux élevés vis-à-vis de leur construction et leur entretien (Lenk et al., 2017). Dans cette optique, la communauté scientifique et les entreprises développent actuellement des solutions alternatives plus respectueuses de l'environnement et moins coûteuses (Black and Mead, 2004; D'Alessandro et al., 2020; Kiran et al., 2018). Parmi celles-ci, un processus basé sur l'électrolyse de l'eau de mer, développé par l'entreprise française SEACURE et étudié au laboratoire LaSIE (La Rochelle Université) est utilisé pour renforcer les infrastructures côtières existantes (Alaric Zanibellato, 2016; Zadi et al., 2023).

Ce processus électrochimique, issu de la protection cathodique, implique l'électrolyse de l'eau de mer à la surface d'un métal. Cela consiste en l'application d'un courant cathodique à travers une structure métallique en contact avec un électrolyte conducteur, que constitue l'eau de mer. Dans un environnement marin, le courant électrochimique induit la réduction de l'oxygène et de l'eau (Eqs 1 et

2) à l'interface métal/eau. Cela entraîne une augmentation du pH interfacial et un déplacement de l'équilibre calco-carbonique vers la formation d'ions carbonates (CO_3^{2-})(Eq. 3)(Carré et al., 2020b; Rousseau et al., 2010).



Par association avec les ions Ca^{2+} et Mg^{2+} déjà présents dans l'eau de mer, il s'en suit la précipitation d'un dépôt calcaire dit « dépôt calcomagnésien » (DC) composé de carbonate de calcium (Eq. 4)(pH précipitation = 8,3 ((Stumm and Morgan, 1996)), et d'hydroxyde de magnésium (pH précipitation = 9,3 (Deslouis et al., 2000)), communément appelé brucite (Eq. 5) (Barchiche et al., 2003; Carré et al., 2020b; Deslouis et al., 2000), à la surface du métal à protéger. Ce dépôt joue le rôle de liant et va venir lier les sédiments ou les matériaux naturels avoisinant pour former un agglomérat calcomagnésien (AG), censé garantir la durabilité des structures côtières telles que le pied d'une digue (Alaric Zanibellato, 2016; Carré et al., 2020a; Zadi et al., 2023). Les études relatives à la formation de l'AG ont essentiellement porté sur des structures métalliques enfouies dans les sédiments marins, c'est-à-dire au niveau des zones basses des infrastructures qui sont en grande partie immergées. Pour les zones partiellement immergées ou soumises aux marées (falaises, partie haute des infrastructures), ce procédé est difficilement applicable. Pour cela, un dispositif expérimental permettant un écoulement d'eau de mer a été spécialement développé au sein du laboratoire LaSIE, pour permettre la formation d'un agglomérat destiné à renforcer ces zones, tout en assurant la continuité électrochimique.

En plus du dispositif expérimental, l'utilisation de Granulats Recyclés (GR) produits à partir de déchets inertes du BTP (Bâtiment et Travaux Publics), en guise de matériaux d'apport (alternative aux sédiments marins et matières premières naturelles), pourrait offrir des perspectives intéressantes à la gestion des ressources tant sur le plan économique qu'environnemental en réduisant l'empreinte carbone liée au transport des matières premières et en contribuant à la préservation des ressources naturelles. Par ailleurs, les GR sont des matériaux multicomposants principalement constitués de matériaux à base de ciment (Rc) (Turcry et al., 2016), lesquels sont susceptibles, via les hydrates cimentaires, d'interagir avec l'eau de mer, et influencer la croissance et la composition chimique du DC.

Cette étude, menée dans le cadre du projet La Rochelle Territoire Zéro Carbone (LRTZC) et cofinancée par l'ADEME, s'inscrit dans une démarche écoenvironnementale visant à étendre le procédé électrochimique pour former un AG dans les zones partiellement immergées, tout en contribuant à la réduction des émissions de CO_2 à travers l'utilisation de ressources locales recyclées. Les expérimentations menées dans cette étude visaient d'une part à investiguer la croissance de l'AG sous un écoulement d'eau de mer à travers la mesure de son volume apparent, sa porosité et la composition chimique du DC et d'autre part à évaluer l'influence des GR, en particulier les Rc, sur la précipitation du DC en suivant l'évolution des propriétés de l'eau de mer, à savoir les paramètres pH/conductivité et sa composition chimique, en fonction du temps d'immersion des GR.

II. MATERIAUX, PROTOCOLES EXPERIMENTAUX ET TECHNIQUES DE CARACTERISATION

2.1. Matériaux

2.1.1. Les granulats recyclés

Les déchets inertes du BTP ont été acheminés vers la plateforme de recyclage Valosphère à La Rochelle (17) pour être transformés sous la forme de GR selon un processus de recyclage comprenant quatre étapes principales : 1) l'élimination des métaux résiduels, 2) la réduction du volume des déchets, 3) le

concassage et 4) le criblage pour obtenir des granulats recyclés de fractions granulaires 0/40 et 40/80 (en mm). Pour cette étude, un big-bag d'une tonne de granulats recyclés 0/40 a été collecté depuis la plateforme de recyclage, puis transporté jusqu'au laboratoire. Après une étape d'échantillonnage et de quartage, les granulats recyclés ont été placés dans des sacs hermétiques de 25 kg puis stockés dans une chambre humide (humidité relative fixée à 97%) pour limiter la carbonatation naturelle. D'après un tri manuel, réalisé sur la fraction 20/40 selon la norme EN 933-11, les GR se composent principalement de matériaux à base de ciment (Rc) (59% en masse), qui sont particulièrement réactifs, de pierres naturelles (Ru) (31% en masse) et de briques (Rb) (9 % en masse). Le reste (1% en masse) correspond aux autres catégories de matériaux (verres, matériaux bitumineux, flottants...).

Pour les expérimentations en réacteur, la fraction 20/40 des Rc (matériaux à base de ciment) a été concassée et tamisée en fraction sableuse (0/5), nommée SRc. Pour la formation de l'agglomérat calcomagnésien, le squelette granulaire est constitué d'une fraction granulaire 0,08/20 de GR, en référence à celle généralement utilisée pour la formulation des bétons. À but comparatif, des granulats naturels (GN), provenant de carrières, ont été utilisés en remplacement des GR dans le squelette granulaire.

2.1.2. Eau de mer naturelle (EDMN)

L'eau de mer (EDMN) utilisée pour l'ensemble des expérimentations de cette étude a directement été prélevée dans l'Océan Atlantique (Angoulins, 17) et renouvelée toutes les deux semaines pour éviter l'acidification causée par le CO₂ atmosphérique et l'appauvrissement en ions Ca²⁺ et Mg²⁺.

Des mesures pH/conductimétriques ont été réalisées sur l'EDMN. Celle-ci possède un pH de $7,5 \pm 0,2$ et une conductivité de $37 \pm 3,0$ mS/cm. Parmi les différents sels et ions qui la composent (Na⁺, K⁺, Mg²⁺, Ca²⁺, SO₄²⁻, Cl⁻ et HCO₃⁻), seuls les éléments Ca, Mg, Al et Si ont été déterminés par spectroscopie d'émission atomique par plasma à couplage inductif (ICP-AES) (cf. 2.3.3), en référence à la composition chimique du DC (CaCO₃ et Mg(OH)₂) et celle des hydrates cimentaires. Les données obtenues par ICP-AES pour les éléments Ca, Mg, Al, sont respectivement de $0,49 \pm 0,04$ g/L ; $1,32 \pm 0,06$ g/L et $0,0017 \pm 0,001$ g/L. La teneur en Si, inférieure au seuil de détection de l'appareil (0,0002 g/L), n'a pas pu être déterminée. Chaque résultat de pH/conductivité ainsi que des teneurs élémentaires correspondent à une moyenne de 10 analyses.

2.2. Protocoles expérimentaux

2.2.1. Montage expérimental pour la formation de l'agglomérat calcomagnésien en écoulement

La Figure 1 représente un schéma du montage expérimental utilisé pour former l'agglomérat sous un écoulement d'eau de mer. Le montage expérimental comprend un aquarium de 15 L alimenté en eau de mer, en continu, ainsi qu'un montage électrochimique à 3 électrodes. Ce dernier est constitué d'une électrode de référence Ag/AgCl (+0,250 V/ESH) préalablement calibrée, d'une contre électrode en titane platiné (anode), et d'une grille d'acier de construction standard (cathode) d'une surface cathodique exposée de 40,5 cm², enfouie verticalement dans un empilement de granulats recyclés. La grille et les GR sont contenus dans un panier éco-conçu positionné à la surface de l'eau de mer. Le système d'écoulement est constitué d'une pompe péristaltique LabN1 munie de tubes flexibles en silicone permettant l'acheminement en eau de mer depuis le bac réservoir jusqu'à un réservoir d'écoulement perforé, placé au-dessus du panier. L'eau de mer contenue dans le bas réservoir est renouvelée toutes les deux semaines.

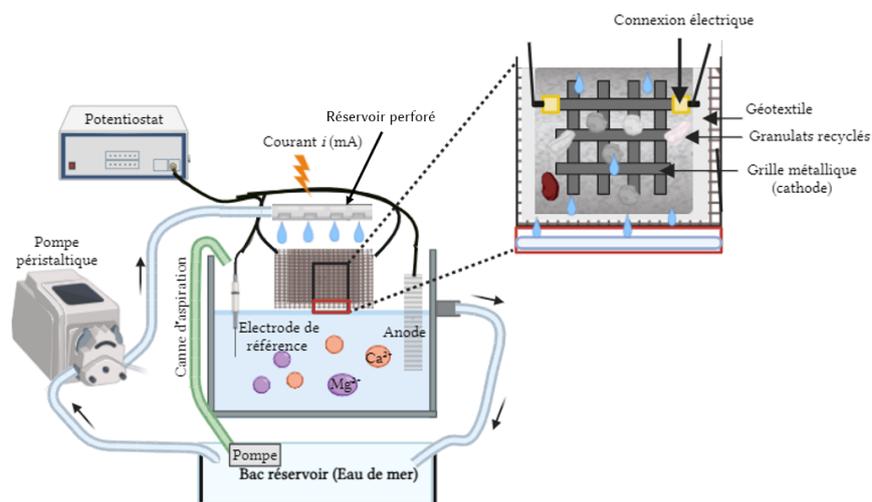


Figure 1 : Montage expérimental utilisé pour la formation de l'agglomérat calcomagnésien en écoulement.

L'AG a été formé sous polarisation cathodique continue de 15 à 60 jours, avec une densité de courant imposée i de $-500 \mu\text{A}/\text{cm}^2$ et sous un écoulement d'environ $80 \text{ mL}/\text{min}$ d'eau de mer naturelle. A titre de comparaison, le panier (GR + grille) a été totalement immergé dans l'eau de mer afin d'obtenir un agglomérat formé en immersion permanente.

2.2.2. Dispositif et protocole visant à étudier la réactivité des Rc dans l'eau de mer

La réactivité physico-chimique des Rc dans l'eau de mer naturelle a été étudiée afin d'évaluer leur influence sur la précipitation du DC. Le dispositif expérimental utilisé est schématisé en Figure 2.

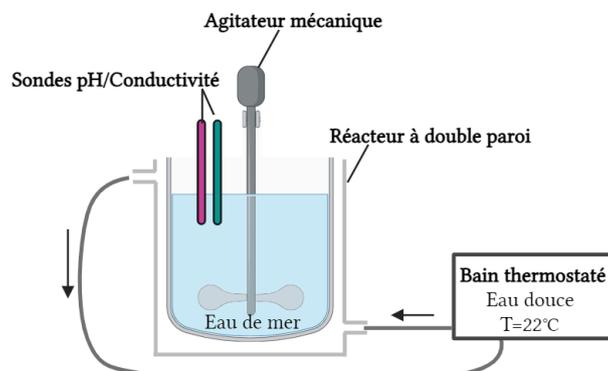


Figure 2 : Schéma du dispositif expérimental utilisé pour la réactivité des SRc dans l'eau de mer naturelle.

Il se compose d'un réacteur à double paroi, spécialement conçu pour ces expérimentations, d'un agitateur mécanique, de sondes pH et de conductivité ainsi qu'un bain thermostaté d'eau douce. 150 g de matières sèches de SRc, préalablement déshydratés dans une étuve à 105°C pendant 24h, ont été immergés pendant 9 jours dans un volume de 1,5 L d'eau de mer naturelle, placé dans un réacteur à double paroi. Le rapport Liquide/Solide (en masse) est fixé à 10. Une fois immergée, les SRc sont mis en suspension à l'aide d'une agitation mécanique fixée à $400 \text{ tr}/\text{min}$. La température du milieu, contrôlée par circulation d'eau dans la double paroi (bain thermostaté), est maintenue à $22 \pm 2^\circ\text{C}$, équivalent à la température moyenne de l'eau de mer mesurée dans les aquariums. Les expériences ont été menées à la pression atmosphérique. Les mesures de pH et de conductivité ont été réalisées jusqu'à l'équilibre du système solide/solution à l'aide d'un multiparamètre PC80+ DHS. Des dosages ioniques en éléments Ca, Mg, Al et Si ont été effectués en solution par spectroscopie d'émission atomique par plasma à couplage

inductif (ICP-AES) (cf. 2.2.3) à 30 minutes, puis 1, 2, 4, 6, 8 et 9 jours pour suivre l'évolution de la composition chimique de l'eau de mer.

2.3. Techniques de caractérisation

2.3.1. Porosité accessible à l'eau

La porosité de l'AG a été déterminée à l'aide d'un essai de porosité accessible à l'eau, selon la méthode AFPC-AFREM, 1997, qui consiste à saturer le matériau en eau, sous vide, pendant 20h au moyen d'un dessiccateur et d'une pompe. Les échantillons saturés en eau sont ensuite pesés : i) à l'air libre (m_{air}), ii) dans l'eau (m_{eau}), et enfin, iii) après séchage à l'étuve à 105°C jusqu'à stabilisation de la masse (m_{sec}). La porosité \emptyset est obtenue à partir de l'équation 6.

$$\emptyset = V_{Vides} / V_{total} = (m_{air} - m_{sec}) / (m_{air} - m_{eau}) \quad (6)$$

m_{air} la masse à l'air de l'échantillon saturé (g), m_{eau} la masse dans l'eau de l'échantillon saturé (g), m_{sec} la masse de l'échantillon après séchage dans l'étuve à 105°C (g)

2.3.2. Analyse thermogravimétrique

L'analyse thermogravimétrique (ATG) a été utilisée pour déterminer les proportions massiques relatives en $CaCO_3$ et $Mg(OH)_2$ au sein du DC. Les échantillons ont été analysés par ATG sur un appareil Mettler Toledo TGA 2 sur une plage de température de 30 à 1000°C, sous argon à 30 mL/min, avec une vitesse de chauffe de 10°C/min. La décomposition du $CaCO_3$ survenant entre 570 et 900°C (Singh et al., 2016), entraîne la production d'oxyde de calcium (CaO) par libération du CO_2 selon l'équation 7, et celle du $Mg(OH)_2$, se produisant entre 350 et 450°C (Ramachandran et al., 2003), produit de l'oxyde de magnésium (MgO) et de l'eau selon l'équation 8.



Les pertes de masse liées à la décomposition de $CaCO_3$ et de $Mg(OH)_2$ sont déterminées à partir de la méthode des tangentes horizontales, comme illustré sur la Figure 4, qui présente un exemple d'une analyse thermogravimétrique réalisée sur un dépôt calcomagnésien.

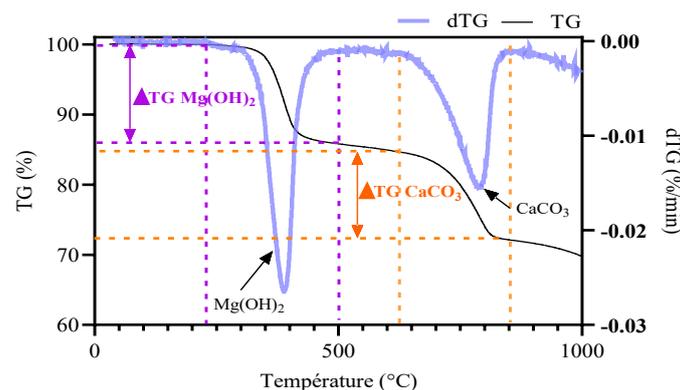


Figure 3 : Exemple de courbes TD/dTG d'une analyse thermogravimétrique réalisée sur un dépôt calcomagnésien. TG correspond à la perte de masse en fonction de la température et dTG, sa dérivée en fonction du temps.

La teneur en $CaCO_3$ (C_{CaCO_3}) (% massique) est calculée selon l'équation 10, à partir de la masse de $CaCO_3$ (m_{CaCO_3}), donnée par l'équation 9, et celle de $Mg(OH)_2$ ($C_{Mg(OH)_2}$) (% massique) est déterminée selon l'équation 11, à partir de la masse de $Mg(OH)_2$ ($m_{Mg(OH)_2}$) donnée par l'équation 12.

$$m_{CaCO_3} = (M_{CaCO_3}/M_{CO_2}) \times m_{CO_2} \quad (9)$$

$$C_{CaCO_3} = (m_{CaCO_3}/m_{ech}) \times 100 \quad (10)$$

$$m_{Mg(OH)_2} = (M_{Mg(OH)_2}/M_{H_2O}) \times m_{H_2O} \quad (11)$$

$$C_{Mg(OH)_2} = (m_{g(OH)_2}/m_{ech}) \times 100 \quad (12)$$

C_{CaCO_3} : la proportion massique de $CaCO_3$ dans l'échantillon (%), $C_{Mg(OH)_2}$: la proportion massique de $Mg(OH)_2$ dans l'échantillon (%), m_{CaCO_3} : la masse de $CaCO_3$ (g), $m_{Mg(OH)_2}$: la masse de $Mg(OH)_2$ (g), m_{CO_2} : la perte de masse mesurée de CO_2 issue de la calcination de $CaCO_3$ (g), m_{H_2O} : la perte de masse d'eau issue de la déshydroxylation de $Mg(OH)_2$ (g), m_{ech} : la masse totale de l'échantillon sec avant calcination (g), M_{CaCO_3} : la masse molaire de $CaCO_3$ qui vaut 100,09 g/mol, $M_{Mg(OH)_2}$: la masse molaire de $Mg(OH)_2$ qui vaut 58 g/mol, M_{CO_2} : la masse molaire de CO_2 qui vaut 44 g/mol, M_{H_2O} : la masse molaire de H_2O qui vaut 18 g/mol

2.3.3. Spectroscopie d'émission atomique par plasma à couplage inductif (ICP-AES)

La spectroscopie d'émission atomique par plasma à couplage inductif (ICP-AES), équipée d'un spectromètre Varian Vista-MPX, a été utilisée pour évaluer l'effet de la lixiviation des SRC sur la composition chimique de l'EDMN en termes de calcium (Ca), magnésium (Mg), silicium (Si) et aluminium (Al). Les mesures ont été réalisées sur des prélèvements de 10 mL de solution lixiviée, filtrée (filtre de porosité 20 μm) puis acidifiés dans une solution de HNO_3 (69%), à 1% en volume. Avant l'analyse, chaque échantillon a été acidifié dans une solution d'acide nitrique (HNO_3 , 69%) à 1% en volume.

2.3.4. Scanner 3D

Les volumes apparents (cm^3) des AG sont déterminés par numérisation 3D à l'aide d'un scanner 3D EINscan-SP Shining 3D et traités numériquement par le logiciel de calcul EXScan.

III. RESULTATS

1. Formation d'un agglomérat calcomagnésien en écoulement

Les résultats expérimentaux démontrent, pour la première fois, que la formation d'un AG est possible grâce à un écoulement d'eau de mer, comme illustré Figure 5.A qui décrit l'évolution du volume apparent et de la porosité des AG formés en écoulement et en immersion permanente en fonction du temps de polarisation. D'après cette figure le volume apparent de l'AG formé en écoulement atteint environ 100 cm^3 après 15 jours de polarisation, puis augmente jusqu'à 60 jours pour finalement former une concrétion deux fois plus volumineuse (200 cm^3).

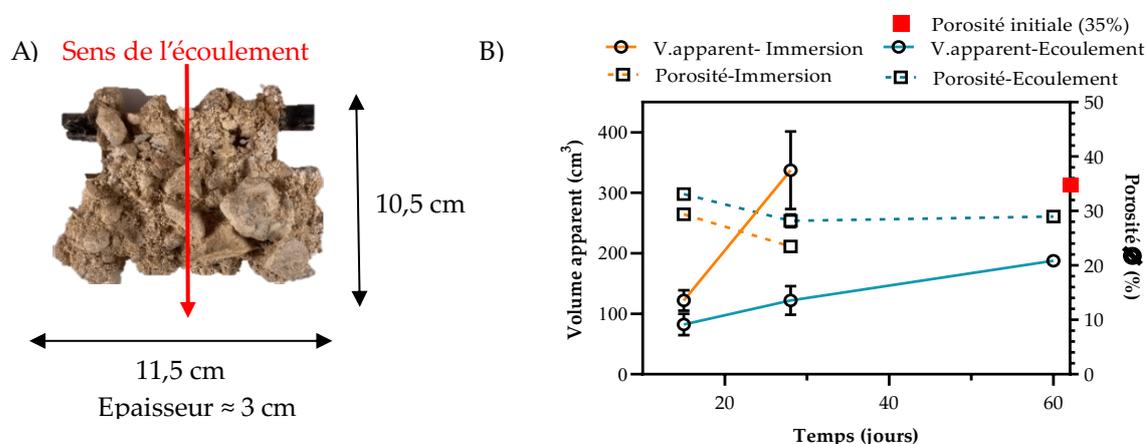


Figure 5 : A) AG formé en écoulement à 60 jours de polarisation cathodique à $-500 \mu A/cm^2$ - B) Évolution du volume apparent (cm^3) (ligne continue) et de la porosité (%) (ligne pointillée) des AG formés en écoulement

jusqu'à 60 jours et en immersion jusqu'à 28 jours à $-500 \mu\text{A}/\text{cm}^2$. La porosité initiale du squelette granulaire est de 35%. Moyenne en duplicata.

À 28 jours de polarisation, les AG formés en immersion permanente présentent des volumes apparents deux à trois fois plus importants que ceux formés en écoulement. Nous avons constaté qu'en écoulement, le DC précipite d'abord aux extrémités basses de la grille alors qu'en immersion, celui-ci précipite sur toute la surface. Cette observation permettrait d'expliquer ces différences de volume. Cependant, lorsqu'on examine les valeurs de porosité pour ces deux conditions, il apparaît d'une part, que celles-ci sont quasiment similaires. D'autre part, qu'elles diminuent de 35% (porosité initiale du squelette granulaire) à 30% sur les 15 premiers jours. Pendant ces 15 jours, le DC précipite dans les vides intergranulaires, diminuant ainsi la porosité autour de 30%. Il semble ainsi que la porosité atteigne un optimum autour de 30-35%, après deux semaines de polarisation, indépendamment des conditions expérimentales (écoulement/immersion). Cette stabilisation de la porosité a également été observée dans les travaux de Zadi (Zadi, 2022) concernant la formation d'AG en courant imposé pendant 24 mois (grilles immergées). Dans cette étude, ainsi que dans celle de Carré et al. (Carré et al., 2020a) une porosité optimale a été déterminée entre 25 et 35%, avec une stabilisation de la porosité autour de 20-25% après 10 mois. Finalement, bien que la croissance en volume apparent des AG soit plus lente en écoulement qu'en immersion, des similitudes apparaissent au niveau de leurs propriétés physiques. L'écoulement d'EDMN ne semble pas gêner la précipitation du DC entre les grains, ce qui constitue un paramètre intéressant pour la formation d'un AG en vue de protéger des zones partiellement immergées.

À cet effet, nous nous sommes intéressés aux propriétés chimiques du dépôt calcomagnésien au sein des AG en suivant la dynamique du rapport massique $\text{Mg}(\text{OH})_2/\text{CaCO}_3$ du DC en fonction du temps de polarisation, pour chaque condition expérimentale (écoulement et immersion). Pour évaluer l'influence des GR sur la composition chimique du DC, ces derniers ont été substitués par des GN, supposés inertes, pour la formation des AG en écoulement. Ces variations, illustrées Figure 6, montrent de manière générale une augmentation de la proportion de CaCO_3 avec le temps de polarisation.

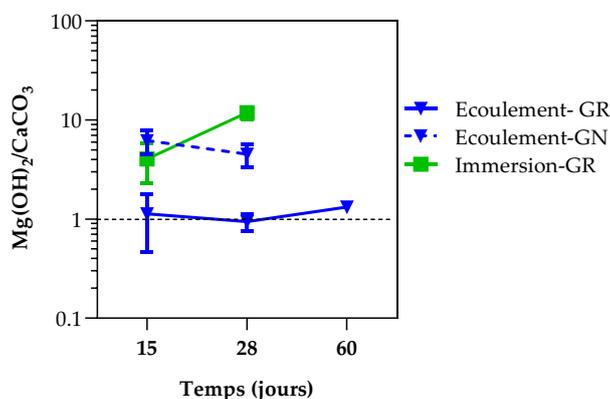


Figure 6 : Évolution logarithmique du rapport massique $\text{Mg}(\text{OH})_2/\text{CaCO}_3$ du dépôt calcomagnésien en fonction du temps de polarisation ($i=-500 \mu\text{A}/\text{cm}^2$) : des agglomérats formés en écoulement avec des GR (triangle ; ligne continue) ; ou avec des granulats naturels (GN) (triangle ; ligne discontinue) ; et en immersion avec des GR (carré ; ligne continue). Moyenne en triplicata.

En écoulement, avec des granulats recyclés, le rapport $\text{Mg}(\text{OH})_2/\text{CaCO}_3$, du DC, reste relativement constant (aux alentours de 1) sur les 60 jours d'expérimentation. On en déduit que ces deux composés se retrouvent dans des proportions équimassiques. En immersion, ce rapport fluctue entre 3 et 15, se traduisant par une prédominance de la brucite. Comparativement, ces résultats suggèrent que l'écoulement d'eau de mer, favorise la précipitation de CaCO_3 , plutôt que l'immersion permanente. Cet

effet de l'écoulement sur la composition du DC peut s'expliquer par un approvisionnement continu en ions Ca^{2+} et Mg^{2+} ou encore par un abaissement du gradient de pH au voisinage de la cathode favorisant la précipitation du CaCO_3 plutôt que celle du $\text{Mg}(\text{OH})_2$. D'autre part, en écoulement avec des GN, la proportion massique de brucite reste majoritaire (ratio ≈ 7). Par conséquent, l'écoulement n'apparaît pas comme le seul facteur favorisant la précipitation de CaCO_3 . La nature minéralogique des matériaux d'apport utilisés dans le squelette granulaire joue un également un rôle important.

Pour comprendre l'influence des GR les Rc, sur la composition et la précipitation du DC, nous avons étudié leur réactivité physico-chimique dans l'eau de mer naturelle, notamment via leur composant majoritaire.

2. Réactivité physico-chimique des SRC dans l'eau de mer

Les matériaux à base de ciment (Rc) se distinguent par une proportion importante de granulats naturels et une moindre part de matrice cimentaire, liée à la composition du béton dont ils proviennent. La composition chimique de la matrice cimentaire comprend généralement trois types d'hydrates (C.Hewlett, 2004; Philippe Souchu, 2009) formés lors des réactions d'hydratation du ciment : l'hydroxyde de calcium ($\text{CH}=\text{Ca}(\text{OH})_2$), les hydrates de silicate de calcium ($\text{C-S-H}=\text{xCaO}\cdot\text{ySiO}_2\cdot\text{zH}_2\text{O}$) et les hydrates de sulfate de calcium aluminé ($\text{AFm}=(\text{CaO})_4\cdot\text{Al}_2\text{O}_3\cdot\text{CaSO}_3\cdot 12\text{H}_2\text{O}$, $\text{AFt}=(\text{CaO})_6\cdot\text{Al}_2\text{O}_3\cdot(\text{CaSO}_3)_3\cdot 32\text{H}_2\text{O}$). La proportion de ces hydrates au sein de la matrice cimentaire diminue au cours de la vie du béton en raison de leur interaction avec le CO_2 atmosphérique dissous. Ils se dissolvent en provoquant la précipitation de carbonates de calcium.

Bien que leur proportion massique soit supposée amoindrie dans les Rc par rapport au béton parent, ces hydrates sont particulièrement sensibles au milieu environnant, en particulier au pH. Ces phases sont instables pour des valeurs de pH inférieures à 10,5 (Liu et al., 2021; Lothenbach et al., 2012; Marty et al., 2016; Mehta, 1983)) mais aussi en présence de certains ions tels que les ions sulfates (K.De Weerd and M.R. Geiker, 2014; Lee, 2007; Santhanam et al., 2002) ou encore les ions magnésium (E.E. Hekal and H.Mostafa, 2002; Santhanam et al., 2002). Ainsi, l'eau de mer, riche en ions magnésium et sulfates, et caractérisée par un pH d'environ 8 (Jiang et al., 2019), constitue un milieu agressif pour les hydrates contenus dans les Rc. Ces derniers pourraient se dissoudre, modifiant ainsi la composition chimique de l'eau de mer et influençant la précipitation du DC.

Dans ce contexte, la fraction sableuse des Rc (SRC) a été immergée dans de l'EDMN et mise en suspension pendant 9 jours. La Figure 7 illustre l'évolution des paramètres pH/conductivité ainsi que des teneurs élémentaires en Ca, Mg, Al et Si mesurées en solution au cours de cette période.

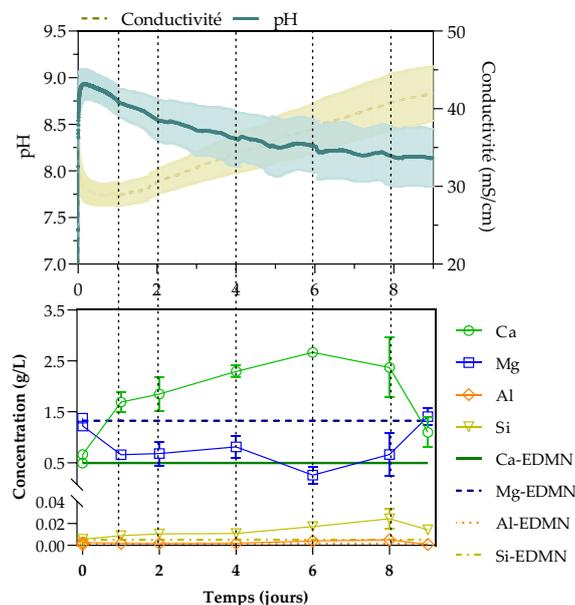


Figure 7 : Évolution des paramètres pH/conductivité et des teneurs élémentaires (g/L) en calcium (Ca), magnésium (Mg), aluminium (Al) et silicium (Si) en fonction du temps d'immersion des SRC. La conductivité est représentée en ligne discontinue jaune et le pH en ligne continue verte. Écart-type en couleurs claires. Moyenne de quatre expériences.

La lixiviation des SRC dans l'eau de mer a entraîné des variations significatives du pH et de la conductivité, surtout au cours des premières heures d'immersion. Le pH de l'eau de mer, initialement autour de 7,5, a rapidement augmenté jusqu'à 9 en 2-3 heures, indiquant que certains composés présents dans les SRC sont devenus chimiquement instables. Cette alcalinisation peut être attribuée à la dissolution des hydrates présents dans la matrice cimentaire contenue dans les SRC. Le suivi des teneurs élémentaires révèle une augmentation significative de la teneur en Ca en solution, dès le début de l'immersion des SRC. L'hypothèse de la dissolution des hydrates (CH, C-S-H, AFm et AFt) est confirmée à la fois par l'augmentation des teneurs en Ca et Si en solution provenant du C-S-H et en Al provenant de l'AFt et de l'AFm. L'augmentation de la teneur en Al est à peine perceptible en raison des faibles quantités d'AFt et d'AFm dans la matrice cimentaire. Comparée à l'EDMN, la teneur en calcium est multipliée par 2,5 au cours de l'expérience, augmentant graduellement pendant 6-8 jours. Une chute de la teneur en Ca suggérant sa précipitation est observée entre 8 et 9 jours.

Parallèlement à la hausse du pH, la conductivité diminue immédiatement, signifiant que les phénomènes de précipitation prédominent sur les phénomènes de dissolution. Nous suggérons que les ions Ca^{2+} issus de la dissolution des hydrates peuvent réagir rapidement avec les ions carbonate (CO_3^{2-}), présents dans l'eau de mer pour précipiter du carbonate de calcium, notamment pour des pH relativement bas (8-9) (Stumm and Morgan, 1996) observés ici. Au-delà de 2-3 heures, les tendances pH et de conductivité s'inversent. Le pH diminue tandis que la conductivité augmente jusqu'à la fin de l'expérience. Le CO_2 atmosphérique se dissout dans la solution pour former des ions HCO_3^- , ce qui entraîne une baisse du pH et ainsi la dissolution continue des hydrates. L'augmentation significative de la teneur en Ca démontre que l'interaction EDMN/SRC constitue une source de calcium pour la précipitation du CaCO_3 au sein du DC. Comme observé précédemment, l'interaction EDMN/GR, semble améliorer les propriétés chimiques du DC en privilégiant le CaCO_3 au détriment du $\text{Mg}(\text{OH})_2$. Ceci offre un avantage intéressant en termes de durabilité pour la formation d'une concrétion. La diminution de la teneur en Mg indique une possible précipitation en solution, pouvant affecter la composition chimique du DC en limitant la disponibilité des ions Mg^{2+} pour former la brucite.

IV. CONCLUSION

Les résultats expérimentaux ont montré que la précipitation du DC via un écoulement d'eau de mer permet la formation d'un AG en seulement 15 jours de polarisation, avec des propriétés physiques comparables à ceux formés en immersion. Toutefois, l'utilisation d'un écoulement d'eau de mer et de GR influencent significativement la composition chimique du DC en favorisant la précipitation du CaCO_3 . En outre, les essais de lixiviation des SRC dans l'EDMN ont mis en évidence une libération significative de calcium en solution, provenant de la déstabilisation des hydrates. Ces résultats suggèrent que ces matériaux recyclés pourraient contribuer à la précipitation du CaCO_3 et probablement améliorer les propriétés mécaniques du dépôt et ainsi améliorer la durabilité à l'agglomérat. En conclusion, cette étude propose une solution prometteuse, pour la préservation du littoral, particulièrement dans les zones soumises aux marées telles que les falaises ou le haut des digues. Par ailleurs, la formation d'une concrétion à partir de déchets inertes recyclés offre des avantages économiques et environnementaux en favorisant l'économie des ressources locales et en limitant les émissions de CO_2 liées au transport des matières premières. Dans l'environnement marin, certaines bactéries ont la capacité de bioprécipiter du CaCO_3 par piégeage du CO_2 . La volonté d'incorporer ces bactéries dans notre procédé, permettrait d'une part, d'accélérer le processus de formation de l'agglomérat, mais aussi d'afficher un bilan carbone neutre, voire négatif.

Références

- Alaric Zanibellato, 2016. Synthèse et études physico-chimiques d'un agglomérat calcomagnésien formé sur acier en milieu marin: un éco-matériau pour la protection du littoral. La Rochelle.
- Barchiche, C., Deslouis, C., Festy, D., Gil, O., Refait, P., Touzain, S., Tribollet, B., 2003. Characterization of calcareous deposits in artificial seawater by impedance techniques: 3—Deposit of CaCO₃ in the presence of Mg(II). *Electrochimica Acta* 48, 1645–1654. [https://doi.org/10.1016/S0013-4686\(03\)00075-6](https://doi.org/10.1016/S0013-4686(03)00075-6)
- Black, K., Mead, S., 2004. Wave Rotation for Coastal Protection. https://doi.org/10.1142/9789812703040_0053
- Carré, C., Zanibellato, A., Achgare, N., Mahieux, P.-Y., Turcry, P., Jeannin, M., Sabot, R., 2020a. Electrochemical limestone synthesis in seawater binds metal grids and sediments for coastal protection. *Environmental Chemistry Letters* 18, 1685–1692. <https://doi.org/10.1007/s10311-020-01019-4>
- Carré, C., Zanibellato, A., Jeannin, M., Sabot, R., Gunkel-Grillon, P., Serres, A., 2020b. Electrochemical calcareous deposition in seawater. A review. *Environmental Chemistry Letters* 18, 1193–1208. <https://doi.org/10.1007/s10311-020-01002-z>
- Cerema REM, 2022. GéoLittoral- Le portail de la mer et du littoral.
- C.Hewlett, P., 2004. LEA's chemistry of cement and concrete, 4th ed.
- D'Alessandro, F., Tomasicchio, G.R., Francone, A., Leone, E., Frega, F., Chiaia, G., Saponieri, A., Damiani, L., 2020. Coastal sand dune restoration with an eco-friendly technique. *Aquatic Ecosystem Health & Management* 23, 417–426. <https://doi.org/10.1080/14634988.2020.1811531>
- Deslouis, C., Festy, D., Gil, O., Maillot, V., Touzain, S., Tribollet, B., 2000. Characterization of calcareous deposits in artificial sea water by impedances techniques: 2-deposit of Mg(OH)₂ without CaCO₃. *Electrochimica Acta* 45, 1837–1845. [https://doi.org/10.1016/S0013-4686\(99\)00403-X](https://doi.org/10.1016/S0013-4686(99)00403-X)
- E.E. Hekal, E.K., H.Mostafa, 2002. Magnesium sulfate attack on hardened blended cement pastes under different circumstances. Pergamon 1421–1427.
- Groupe d'experts intergouvernementale sur l'évolution du climat, 2023. Synthesis report of the IPCC sixth assessment report (AR6) (No. 6).
- Jiang, L.-Q., Carter, B.R., Feely, R.A., Lauvset, S.K., Olsen, A., 2019. Surface ocean pH and buffer capacity: past, present and future. *Scientific Reports* 9, 18624. <https://doi.org/10.1038/s41598-019-55039-4>
- K.De Weerd, D.O., M.R. Geiker, 2014. The impact of sulfate and magnesium on chloride binding in Portland cement paste. Elsevier 30–40.
- Kiran, A.S., Vijaya, R., Abhishek, T., Ramanamurthy, M.V., Atmanand, M.A., 2018. Environmentally friendly shore protection using geosynthetic tubes, A case study from East coast of India, in: OCEANS 2018 MTS/IEEE Charleston. pp. 1–6. <https://doi.org/10.1109/OCEANS.2018.8604794>
- Lee, S.-T., 2007. Performance deterioration of Portland cement matrix due to magnesium sulfate attack. *Journal of civil engineering* 157–163.
- Lenk, S., Rybski, D., Heidrich, O., J.Dawson, R., P.Kropp, J., 2017. Costs of sea dikes— regressions and uncertainty estimates 765–779.
- Liu, X., Feng, P., Li, W., Geng, G., Huang, J., Gao, Y., Mu, S., Hong, J., 2021. Effects of pH on the nano/micro structure of calcium silicate hydrate (C-S-H) under sulfate attack. *Cement and Concrete Research* 140, 106306. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2020.106306>
- Lothenbach, B., Saout, G.L., Haha, M.B., Figi, R., Wieland, E., 2012. Hydration of a low-alkali CEM III/B-SiO₂ cement (LAC). *Cement and Concrete Research* 42, 410–423. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2011.11.008>
- Marty, N., Grangeon, S., Catherine, L., Warmont, F., Rozenbaum, O., Conte, T., Claret, F., 2016. Dissolution kinetics of hydrated calcium aluminates (AFm-Cl) as a function of pH and at room temperature. *Mineralogical Magazine* 81. <https://doi.org/10.1180/minmag.2016.080.161>
- Mehta, P.K., 1983. Mechanism of sulfate attack on portland cement concrete — Another look. *Cement and Concrete Research* 13, 401–406. [https://doi.org/10.1016/0008-8846\(83\)90040-6](https://doi.org/10.1016/0008-8846(83)90040-6)
- Philippe Souchu, 2009. Hydratation du ciment Portland. Setec lerm.
- Ramachandran, V. & Paroli, Ralph & Beaudoin, J. & Delgado, A.. (2003). Handbook of Thermal Analysis of Construction Materials. *Thermochimica Acta*. 406. [10.1016/S0040-6031\(03\)00230-2](https://doi.org/10.1016/S0040-6031(03)00230-2).
- Rousseau, C., Baraud, F., Leleyter, L., Jeannin, M., Gil, O., 2010. Calcareous deposit formed under cathodic protection in the presence of natural marine sediments: A 12 month experiment. *Corrosion Science* 52, 2206–2218. <https://doi.org/10.1016/j.corsci.2010.02.047>
- Santhanam, M., D.Cohen, M., Olek, J., 2002. Mechanism of sulfate attack : a fresh look Part 2. Proposed mechanisms. *CEMENT AND CONCRETE RESEARCH* 341–346.
- Singh, M. P. et al. "Aragonite–vaterite–calcite: Polymorphs of CaCO₃ in 7th century CE lime plasters of Alampur group of temples, India." *Construction and Building Materials* 112 (2016): 386-397.
- Stumm, W., Morgan, J.J., 1996. Aquatic Chemistry, chemical equilibria and rates in natural waters. John Wiley & Sons, New York.
- Turcry, P., Mahieux, P.-Y., Hamdoun, H., Chateau, L., Ferber, V., 2016. Projet Recyment : Etude de la réactivité des bétons concassés : Application aux graves non traitées et au traitement des sols. ADEME.
- Zadi, L., 2022. Mécanismes physico-chimiques impliqués dans la formation et l'évolution à l'abandon d'un matériau sédimentaire innovant généré en milieu marin par polarisation cathodique. La Rochelle, La Rochelle.
- Zadi, L., Turcry, P., Soive, A., Zanibellato, A., Mahieux, P.-Y., Sabot, R., Jeannin, M., 2023. Physico-chemical stability evaluation of a sedimentary agglomerates use for the coastal protection. *Journal of Coastal Conservation* 27, 12. <https://doi.org/10.1007/s11852-023-00940-4>

Influence of adhesion between the main cement phases on the mechanical behavior of hydrated cement paste

Sela HOEUN

Nantes Université, École Centrale Nantes, CNRS, GeM, UMR 6183, F_44000 Nantes, France

Université de Rennes, INSA Rennes, LGCGM, 20 avenue des Buttes de Coësmes 35700 Rennes, France

RESUME Cette étude porte sur la modélisation multi-échelle des propriétés mécaniques des matériaux cimentaires. L'objectif est d'acquérir les propriétés mécaniques des phases de la pâte de ciment hydratée à l'échelle nanométrique, en utilisant des simulations de Dynamique Moléculaire. En effet, les données obtenues à l'échelle inférieure (échelle nanométrique) sont considérées comme les paramètres d'entrée à l'échelle supérieure (échelle microscopique). À l'échelle nanométrique, des essais de traction ont été menés sur les principales phases de la pâte de ciment hydratée, notamment les hydrates de silicate de calcium et la portlandite. La combinaison de ces deux phases a été désignée comme "composite de pâte de ciment" dans cette étude. Les configurations d'espacement et les orientations des composites de pâte de ciment ont été examinées pour différents scénarios. Ainsi, les propriétés mécaniques à l'échelle nanométrique ont été déterminées. Les résultats indiquent que les courbes contrainte-déformation étaient affectées à la fois par les orientations et les configurations d'espacement. Un comportement fragile ou ductile, plus ou moins d'oscillations et des contraintes maximales plus ou moins importantes peuvent être observées dans différents cas.

Mots-clefs Modélisation multi-échelle, Pâte de ciment hydratée, Dynamique Moléculaire

I. INTRODUCTION

Cementitious materials are the most used materials that are characterized by a heterogeneous composition on multiple scales. Behavior of concrete and especially its cracking remain relatively poorly controlled due to this complex structure. Concrete is a complex composite consisting of aggregates (particulate phase) and cement matrix (binding phase). Therefore, the mechanical properties of concrete are significantly influenced by the cement matrix (Keinde et al., 2014; Lau et al., 2018). Moreover, cement paste is a porous multiscale substance with varying physical properties across different length scales (Ioannidou, 2020). Calcium-silicate-hydrates (C-S-H) comprising up to 50% of the volume is the major component of hardened hydrated cement paste (Lau et al., 2018). Another substantial phase in hydrated Portland cement paste is portlandite (CH), typically constituting 15-25% of the ignited mass in pastes of typical Portland cements cured for 3-12 months (Taylor, 1997).

For multi-scale modelling, obtaining the mechanical properties of various phases of hydrated cement paste is essential. Nano-indentation experiments (Fu, Kamali-Bernard, et al., 2018) is one of

a method to acquire these properties. Nonetheless, values obtained by nano-indentation tests could be untrustworthy. Hence, it leads to obtain these properties by other method, for instance, numerical simulation (i.e., Molecular Dynamics (MD) simulation at the nano-scale). Indeed, it is now necessary to grasp the adhesion properties between different hydrated cement paste phases and to consider them at the microstructure scale of the cement paste. The rupture of adhesion between these phases is the primary cause of material damage and micro-cracking, often more significant than the rupture of the phases themselves (inter-phase rather than intra-phase ruptures) (Del Gado et al., 2014; Manzano et al., 2009, 2013; Zhou et al., 2017).

The two main objectives of this study are as follows: (1) obtain the mechanical properties of interphases of the main cement paste phases, for example by mean of modelling via MD simulations and (2) use results obtained from MD simulations as the inputs in the scale of hardened cement paste (i.e., micro-scale) by mean of Discrete Element Method. This study may make it possible to create the bridge of achieving the transition from molecular scale to microscopic scale.

This article focuses primarily on the mechanical properties calculation of hydrated cement phase composites using MD simulations at the nano-scale. In fact, mechanical properties of different phase composites are required for the multi-scale modelling. The results obtained in this article could be served as the inputs in the upper-scale, i.e., microscale of cement-based materials. We used MD simulations with ReaxFF force field to investigate the mechanical properties of these composites. Two main hydrated cement paste phases have been chosen to study. Those phases are C-S-H (I) and CH. In this study, different phases put together are called “composite” (i.e., C-S-H (I)/CH composite). Three different orientations and spacing configurations were imposed on these composites. Tensile tests were performed on these composites with strain rate of 10^{-6} fs⁻¹. Stress-strain curves were then obtained. As a result, Young’s modulus, peak stress and peak strain could be deduced from these stress-strain curves. The contents of this article were placed in the following order: (a) Materials, (b) Method, (c) Results and Discussion, and (d) Conclusion.

II. MATERIALS

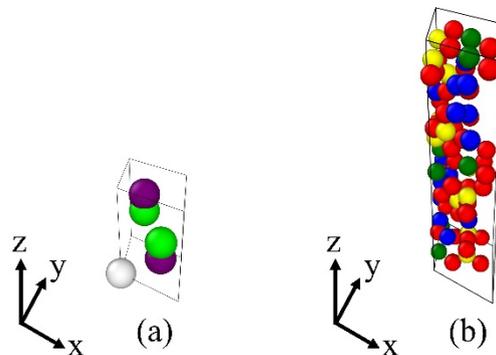


FIGURE 1. Perspective view of (a) portlandite (CH) and (b) 11 Å tobermorite unit cells.

The formation of calcium hydroxide (CH) generally occurs in conjunction with the hydration of C₃S or C₂S phases (Hewlett, 1998). In this article, unit cell of portlandite (CH) was modelled following

(Desgranges et al., 1993) as shown in **Figure 1a** with the chemical formula $\text{Ca}(\text{OH})_2$ and cell angles $(\alpha, \beta, \gamma) = (90^\circ, 90^\circ, 120^\circ)$. Cell lengths are $(a, b, c) = (3.589 \text{ \AA}, 3.589 \text{ \AA}, 4.911 \text{ \AA})$. White balls are Ca atoms, lime balls are H atoms, and purple balls are O atoms. Crystal structure is trigonal in the $P\bar{3}m1$ space group. OVITO (Open Visualization Tool) (Stukowski, 2009) was used for the visualization of all simulations.

Amorphous or nearly amorphous C-S-H products are referred to as the 'C-S-H phase.' When C_3S hydrates at room temperature, it produces the C-S-H phase, structurally related to crystalline phases like 1.1 nm tobermorite and jennite, as well as weakly crystalline substances C-S-H (I) and C-S-H (II) (Hewlett, 1998). C-S-H phase is generally amorphous with no long-range order. Based on the ratio of Ca/Si, C-S-H phase can be grouped into calcium-rich and into silicon-rich forms and can also be grouped into C-S-H (I) with Ca/Si ratio of 0.6-1.5 and C-S-H (II) with Ca/Si ratio of 1.5-2.0. Both C-S-H (I) and C-S-H (II) structures resemble tobermorite with the exception of which some silicon oxygen tetrahedrons in their silicon chain are partially lost or deformed and hence form some plurality of dimmers (Fu, Bernard, et al., 2018). In the study of (Fu, Bernard, et al., 2018), they developed C-S-H cell starting from tobermorite 11 Å and obtained first amorphous tobermorite whose long range is distorted. Unit cell of 11 Å tobermorite was obtained from work of (Fu, Bernard, et al., 2018). It has chemical formula $\text{Ca}_4\text{Si}_6\text{O}_{14}(\text{OH})_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$, cell angles $(\alpha, \beta, \gamma) = (90^\circ, 90^\circ, 123.49^\circ)$ and cell lengths $(a, b, c) = (6.69 \text{ \AA}, 7.39 \text{ \AA}, 22.779 \text{ \AA})$. Crystal structure is monoclinic in the $P2_1$ space group. C-S-H was modelled based on (Hamid, 1981) as can be seen in **Figure 1b**. Green balls are Ca atoms, yellow balls are Si atoms, red balls are O atoms, and blue balls are H atoms. (Fu, Bernard, et al., 2018) developed C-S-H (I) initially from 11 Å tobermorite with annealing process. Following the same procedure, we obtained C-S-H (I) with Ca/Si ratio of 0.67.

Molecular Dynamics using in this study is a computer simulation technique for analyzing physical movement of atoms and molecules. Atoms and molecules can interact for a time period, giving insight into dynamic evolution of the system. In the most common version, atoms and molecules trajectories are determined by numerically solving Newton's equation of motion in a system of interacting particles. The interatomic force and its potential energy are often calculated using the interatomic potential or the mechanical force field of the molecules (Plimpton, 1995).

Large-scale Atomic/Molecular Massively Parallel Simulator (LAMMPS) was utilized to perform the simulations. LAMMPS focuses on material modelling using a classical molecular dynamics code. It can be used for soft matters, solid-state materials, and coarse-grained or mesoscopic systems to model atoms as a parallel particle simulator at continuum, meso or atomic scale. It is an opened source code which distributed by Sandia National Laboratories, a US department of energy laboratory under the terms of GPL. In order to compute their motion, Newton's equations are integrated while each of N atoms or molecules in the simulation is considered as a point mass (Plimpton, 1995).

ReaxFF force field is the force field using in this study because ReaxFF force field could be used with all the phases of hydrated cement paste that we intended to study (i.e., not only calcium-silicate-hydrates and portlandite but also ettringite (Hoeun, 2023)). (van Duin et al., 2001) developed ReaxFF force field for hydrocarbons, which is a force field for reactive systems in order to make practical molecular dynamics simulations of large scale reactive chemical systems. On the one hand, ReaxFF force field uses a general relationship between bond order and bond distance.

On the other hand, ReaxFF force field uses a general relationship between bond order and bond energy, which leads to proper dissociation of bonds to separate atoms. From reactions of small molecules plus geometry data and heat of formation for a number of stable hydrocarbon compounds and quantum chemical calculations on bond dissociation, the parameters were derived. ReaxFF parameters using in this study could be found in (Liu et al., 2012).

System energy of ReaxFF force field could be written as follows (van Duin et al., 2001):

$$E_{system} = E_{bond} + E_{over} + E_{under} + E_{val} + E_{pen} + E_{tors} + E_{conj} + E_{vdWaals} + E_{Coulomb} \quad (1)$$

where E_{bond} represents the bond energy, E_{over} and E_{under} the energy penalty for over- and under-coordination of atoms, E_{val} , E_{pen} , E_{tors} , E_{conj} , $E_{vdWaals}$ and $E_{Coulomb}$ the valence angle, penalty, torsion, conjugation, van der Waals and Coulomb energy, respectively.

III. METHOD

In the work of (Liang, 2020), mechanical and fracture properties of C-S-H/CH composites were investigated. In order to get representative results, C-S-H and CH unit cells were extended along x-, y-, and z-directions. Supercells were then relaxed with NPT ensemble at temperature of 300 K and pressure of 0 Pa at x-, y- and z-directions. Relaxed supercells were put together with about 3 Å gap. C-S-H/CH composites was relaxed once again with NPT ensemble.

Similar to the methodology proposed by (Liang, 2020), unit cells of C-S-H (I) and CH were replicated in x-, y-, and z-directions. Size of supercells was chosen to ensure that all chosen phases (i.e., C-S-H (I) and CH) have a similar size in all three dimensions. C-S-H (I) unit cell was replicated by $7 \times 8 \times 2$ in x-, y- and z-directions, respectively. CH unit cell was replicated by $13 \times 16 \times 9$ in x-, y- and z-directions, respectively. C-S-H (I) and CH supercells were changed from monoclinic and trigonal supercells to orthogonal supercell in order to acquire the independent results to each direction. All MD simulations were done with ReaxFF force field in real units and three dimensions (3D). To eliminate boundary effect during simulation, periodic boundary condition (PPP) was utilized. These supercells were relaxed in NPT ensemble with temperature of 300 K and pressure of 0 atm in all three directions for a period of 50 ps. Tensile tests were performed on these composites with strain rate of 10^{-6} fs^{-1} .

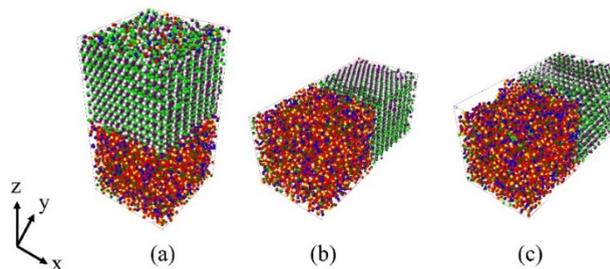


FIGURE 2. Orientations of C-S-H (I)/CH composites: (a) in z-direction, (b) in y-direction, and (c) counterclockwise rotated in y-direction.

(Bonnaud et al., 2016) investigated three different orientations of C-S-H particle pairs in order to study the interaction grand potential at the molecular level. Different orientations were chosen because these orientations could take into account the effect of anisotropy in crystallography and geometry of C-S-H particles. Moreover, different interaction forces among particles were related to orientation. Similarly, three different orientations were chosen in this study as follows: (a) CH supercell on top of C-S-H (I) supercell in z-direction, (b) CH supercell at the side of C-S-H (I) supercell in y-direction, and (c) counterclockwise rotated CH supercell around x-axis at the side of C-S-H (I) supercell in y-direction. In the latter case, bottom of CH supercell was placed at the side of C-S-H (I) supercell. **Figure 2** shows the different orientations. Additionally, 1 Å vacuum, 3.1 Å water and 6.2 Å water spacing were placed between relaxed C-S-H (I) and CH supercells. On the one hand, 1 Å vacuum spacing referred to an interface without porosity in between two phases. On the other hand, 3.1 and 6.2 Å water spacing referred to the interface with porosity filled with water in between two phases. C-S-H (I)/CH composites were relaxed once again with NPT ensemble for another 50 ps. Timestep of these simulations was 0.25 fs. Deformations were applied along y- or z-directions coupled with relaxation in lateral directions.

To conduct simulations on C-S-H (I)/CH composites, 24 visualization cores were employed. The computational setup included the use of a supercomputer named "Liger," equipped with 12-core Intel Xeon (Haswell) E5-2680v3 processors. The supercomputer comprised 252 compute nodes, each with 24 cores, along with 14 visualization nodes featuring 28 GPUs and 24 cores per node. The memory capacity was 36,608 GB.

IV. RESULTS AND DISCUSSION

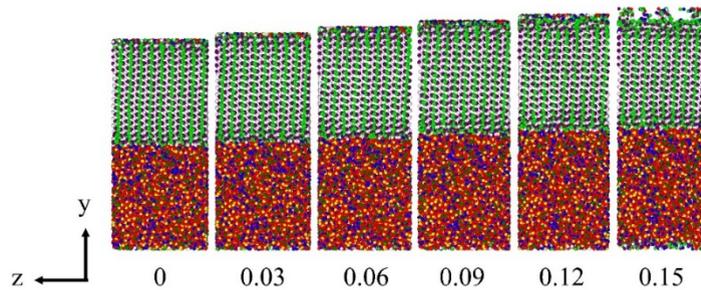


FIGURE 3. Direct tension of C-S-H (I)/vacuum (1 Å)/CH composites in y-direction.

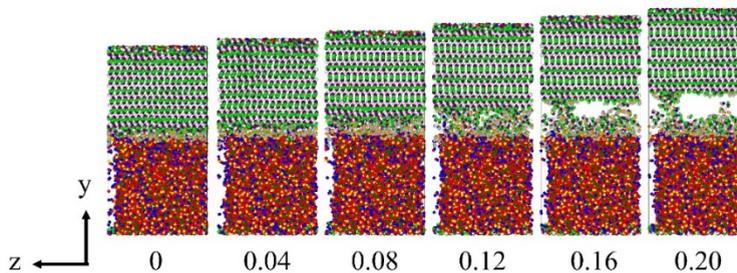


FIGURE 4. Direct tension of C-S-H (I)/H₂O (3.1 Å)/CH composites counterclockwise rotated in y-direction.

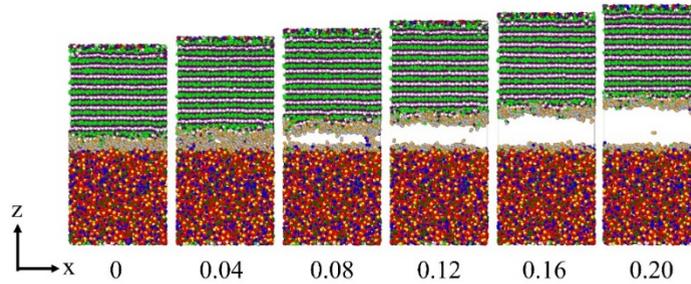


FIGURE 5. Direct tension of C-S-H (I)/H₂O (6.2 Å)/CH composites in z-direction.

In the case of C-S-H (I)/CH composites with ReaxFF force field, **Figure 3 - Figure 5** illustrate the direct tensile evolution of C-S-H (I)/CH composites after relaxation to 15% and 20% strain with different orientations and spacing configurations. All simulations were run with the strain rate of 10^{-6} fs⁻¹. All rupture appeared at the interface of composites indicating that vacuum and water spacing made interaction between main hydrated cement phases weaker and initiated the rupture.

Stress-strain curves of C-S-H (I)/CH composites with different orientations and spacing configurations can be observed in **Figure 6 - Figure 8**. In the case of 1 Å vacuum spacing, the behavior seems to be ductile. For orientation in y-direction, it gave a bigger peak stress and peak strain compared to the other orientations. It indicates that this orientation provided a better interaction at the interface between C-S-H (I) and CH supercells. In the case of 3.1 Å water spacing, the behavior seems to be ductile too. In the case of 6.2 Å water spacing, the behavior seems to be more brittle compared to the smaller spacing. It appears that the bigger the spacing, the bigger the oscillation can be observed. Results indicate that orientations of two supercells and spacing configurations affected the stress-strain curves of C-S-H (I)/CH composites. As can be seen, 1 Å vacuum spacing gave the highest peak stress and peak strain. In contrast, 6.2 Å water spacing gave the lowest peak stress and peak strain. Results of peak strain, peak stress, Young's modulus and running time are summarized in **Table 1**.

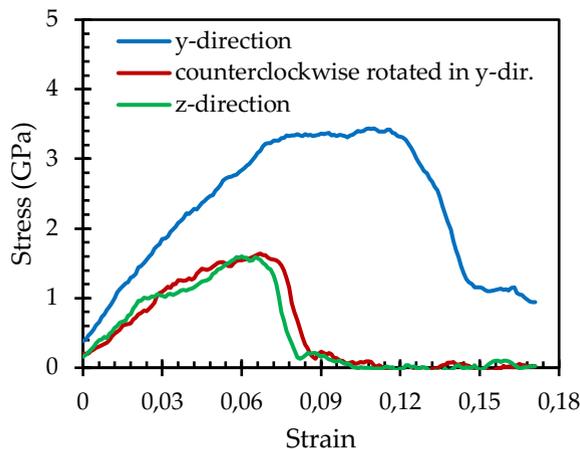


FIGURE 6. Stress-strain curves of C-S-H (I)/CH composites with 1 Å vacuum spacing.

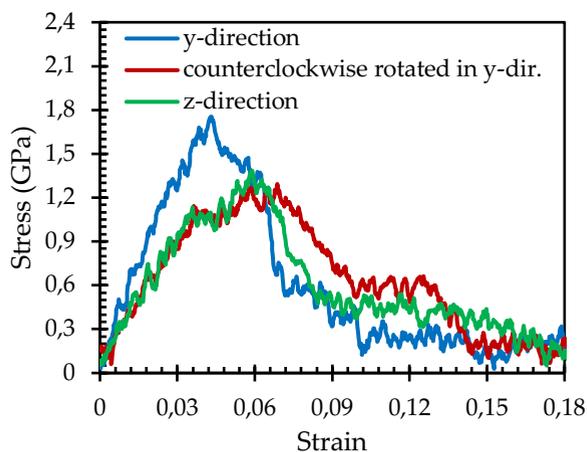


FIGURE 7. Stress-strain curves of C-S-H (I)/CH composites with 3.1 Å water spacing.

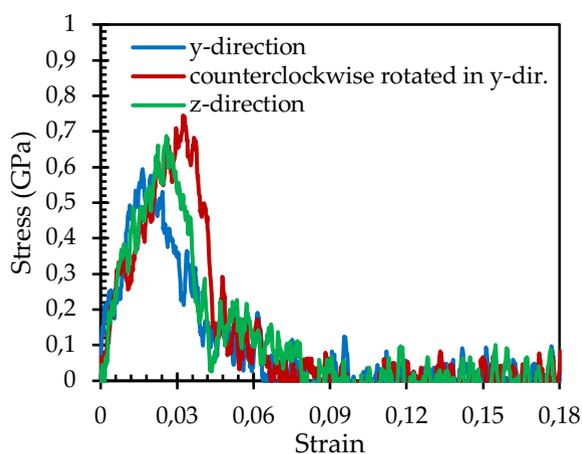


FIGURE 8. Stress-strain curves of C-S-H (I)/CH composites with 6.2 Å water spacing.

TABLE 1. Peak strain, peak stress, Young's modulus and running time of C-S-H (I)/CH composites.

Orientation	Spacing	Peak strain	Peak stress (GPa)	Young's modulus (GPa)	Running time (hr:min)
y-direction	1 Å vacuum	0.11	3.44	48.6	72:00
	3.1 Å water	0.04	1.75	44.9	47:54
	6.2 Å water	0.02	0.59	39.1	49:46
Counterclockwise rotated in y-direction	1 Å vacuum	0.07	1.64	29.7	72:00
	3.1 Å water	0.07	1.29	29.7	45:36
	6.2 Å water	0.03	0.74	39.3	48:12
z-direction	1 Å vacuum	0.06	1.60	33.5	72:00
	3.1 Å water	0.06	1.39	31.1	44:39
	6.2 Å water	0.03	0.69	39.1	48:13

Average Young's moduli of three different orientations are summarized in **Table 2**. In the case of 1 Å vacuum spacing, Young's modulus was found to be 37.3 GPa for C-S-H (I)/CH composite. When 3.1 Å water spacing was placed in between the supercells, Young's modulus decreased to 35.2 GPa. Finally, Young's modulus were found to be 39.1 GPa for 6.2 Å water spacing. To the author's knowledge, C-S-H (I)/CH composites modelled with MD simulation was only done by (Liang, 2020). The values of Young's modulus might be compared to the result obtained by Liang, 2020) with value of 40 GPa. The procedure is quite similar to this study. Liang placed CH phase about 3 Å on top of C-S-H phase and derived the Young's modulus from the stress-strain curve of uniaxial tensile test.

TABLE 2. Mean Young's modulus of three different orientations of C-S-H (I)/CH composites.

Composite	Spacing	Young's modulus (GPa)
C-S-H (I)/CH	1 Å vacuum	37.3
	3.1 Å water	35.2
	6.2 Å water	39.1

In summary, tensile tests were applied on the main cement phase composites. These simulations provided the stress-strain curves of composites. As a result, peak strain, peak stress, and Young's modulus could be calculated from the stress-strain curves. For spacing configurations, 1 Å vacuum spacing has the highest peak stress, followed by 3.1 Å and 6.2 Å water spacing. All ruptures appeared at the interface of composites indicating that vacuum and water spacing made the interaction between main hydrated cement phases weaker and initiated the rupture. These results can be served in the upper-scale simulation as the inputs, for instance, in the scale of hardened cement paste (i.e., micro-scale) by mean of Discrete Element Method.

V. CONCLUSION

The aim of this study was to investigate the mechanical properties of different phases of hydrated cement paste required for multi-scale modelling. Numerical simulations, i.e., via Molecular Dynamics simulations at the nano-scale, could be used to obtain these properties. The grasp of adhesion properties between different hydrated cement paste phases is important because the rupture of adhesion between these phases is responsible for the damage of material and micro-cracking even more than the rupture of the phases themselves (inter-phase and not intra-phase ruptures). Adhesion between main hydrated cement paste phases of C-S-H (I) and CH was taken into account by means of Reactive MD simulations with ReaxFF force field. Combination of two different main phases of hydrated cement paste was called "cement paste composite" in this study. Three different orientations and spacing configurations were imposed. Those orientations are as follows: (a) CH phase on the top of C-S-H (I) phase in z-direction, (b) CH phase at the side of the C-S-H (I) phase in y-direction, and (c) counterclockwise rotated CH phase around x-axis at the side of C-S-H (I) phase in y-direction. For spacing configurations, they are as follows: (a) 1 Å vacuum spacing, (b) 3.1 Å water spacing and (c) 6.2 Å water spacing. Spacing was placed in-between the relaxed C-S-H (I) and CH phases. Results indicate that stress-strain curves were affected by both

orientations and spacing configurations. Brittle or ductile behavior, more or less oscillation, and bigger or smaller peak stress can be observed for different cases.

In conclusion, this work demonstrates the feasibility of using Molecular Dynamics simulations in order to obtain mechanical interphase properties of main hydrated cement paste phases. Moreover, our results could be served as the inputs to access the mechanical properties of hardened cement paste by means of Discrete Elements Method, for example. Therefore, this work makes it possible to create the bridge of achieving the transition from molecular scale to microscopic scale. Future work should include the development of ReaxFF force field that will be optimized for all the hydrated cement paste phases because ReaxFF force field developed for ettringite was used in this study. It is possible to use this method to obtain the mechanical properties of different composites between other hydrated and unhydrated phases.

REFERENCES

- Bonnaud, P. A., Labbez, C., Miura, R., Suzuki, A., Miyamoto, N., Hatakeyama, N., Miyamoto, A., & Vliet, K. J. V. (2016). Interaction grand potential between calcium–silicate–hydrate nanoparticles at the molecular level. *Nanoscale*, 8(7), 4160–4172. <https://doi.org/10.1039/C5NR08142D>
- Del Gado, E., Ioannidou, K., Masoero, E., Baronnet, A., Pellenq, R. J.-M., Ulm, F.-J., & Yip, S. (2014). A soft matter in construction – Statistical physics approach to formation and mechanics of C–S–H gels in cement. *The European Physical Journal Special Topics*, 223(11), 2285–2295. <https://doi.org/10.1140/epjst/e2014-02264-1>
- Desgranges, L., Grebille, D., Calvarin, G., Chevrier, G., Floquet, N., & Niepce, J.-C. (1993). Hydrogen thermal motion in calcium hydroxide: Ca(OH)₂. *Acta Crystallographica Section B: Structural Science*, 49(5), Article 5. <https://doi.org/10.1107/S0108768193003556>
- Fu, J., Bernard, F., & Kamali-Bernard, S. (2018). Assessment of the elastic properties of amorphous calcium silicates hydrates (I) and (II) structures by molecular dynamics simulation. *Molecular Simulation*, 44(4), 285–299. <https://doi.org/10.1080/08927022.2017.1373191>
- Fu, J., Kamali-Bernard, S., Bernard, F., & Cornen, M. (2018). Comparison of mechanical properties of C-S-H and portlandite between nano-indentation experiments and a modeling approach using various simulation techniques. *Composites Part B: Engineering*, 151, 127–138. <https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2018.05.043>
- Hamid, S. A. (1981). The crystal structure of the 11Å natural tobermorite Ca_{2.25}[Si₃O_{7.5}(OH)_{1.5}] · 1H₂O. *Zeitschrift Für Kristallographie - Crystalline Materials*, 154(3–4), 189–198. <https://doi.org/10.1524/zkri.1981.154.3-4.189>
- Hewlett, P. C. (1998). *Lea's Chemistry of Concrete and Cement*. Elsevier, Oxford.
- Hoeun, S. (2023). *Influence de l'adhésion entre les principales phases cimentaires sur le comportement mécanique de la pâte de ciment hydratée* [PhD Thesis]. Nantes, Ecole Centrale de Nantes.
- Ioannidou, K. (2020). Mesoscale Structure and Mechanics of C-S-H. In W. Andreoni & S. Yip (Eds.), *Handbook of Materials Modeling: Applications: Current and Emerging Materials* (pp. 1–15). Springer International Publishing. https://doi.org/10.1007/978-3-319-50257-1_127-1

Keinde, D., Kamali-Bernard, S., Bernard, F., & Cisse, I. (2014). Effect of the interfacial transition zone and the nature of the matrix-aggregate interface on the overall elastic and inelastic behaviour of concrete under compression: A 3D numerical study. *European Journal of Environmental and Civil Engineering*, 18(10), 1167–1176. <https://doi.org/10.1080/19648189.2014.896757>

Lau, D., Jian, W., Yu, Z., & Hui, D. (2018). Nano-engineering of construction materials using molecular dynamics simulations: Prospects and challenges. *Composites Part B: Engineering*, 143, 282–291. <https://doi.org/10.1016/j.compositesb.2018.01.014>

Liang, Y. (2020). Mechanical and fracture properties of calcium silicate hydrate and calcium hydroxide composite from reactive molecular dynamics simulations. *Chemical Physics Letters*, 761, 138117. <https://doi.org/10.1016/j.cplett.2020.138117>

Liu, L., Jaramillo-Botero, A., Goddard, W. A., & Sun, H. (2012). Development of a ReaxFF Reactive Force Field for Ettringite and Study of its Mechanical Failure Modes from Reactive Dynamics Simulations. *The Journal of Physical Chemistry A*, 116(15), 3918–3925. <https://doi.org/10.1021/jp210135j>

Manzano, H., Dolado, J. S., & Ayuela, A. (2009). Elastic properties of the main species present in Portland cement pastes. *Acta Materialia*, 57(5), 1666–1674. <https://doi.org/10.1016/j.actamat.2008.12.007>

Manzano, H., Masoero, E., Lopez-Arbeloa, I., & Jennings, H. M. (2013). Shear deformations in calcium silicate hydrates. *Soft Matter*, 9(30), 7333–7341. <https://doi.org/10.1039/C3SM50442E>

Plimpton, S. (1995). Fast Parallel Algorithms for Short-Range Molecular Dynamics. *Journal of Computational Physics*, 117(1), 1–19. <https://doi.org/10.1006/jcph.1995.1039>

Stukowski, A. (2009). Visualization and analysis of atomistic simulation data with OVITO—the Open Visualization Tool. *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, 18(1), 015012. <https://doi.org/10.1088/0965-0393/18/1/015012>

Taylor, H. F. W. (1997). *Cement chemistry* (2. ed., Repr). Telford.

van Duin, A. C. T., Dasgupta, S., Lorant, F., & Goddard, W. A. (2001). ReaxFF: A Reactive Force Field for Hydrocarbons. *The Journal of Physical Chemistry A*, 105(41), 9396–9409. <https://doi.org/10.1021/jp004368u>

Zhou, Y., Hou, D., Manzano, H., Orozco, C. A., Geng, G., Monteiro, P. J. M., & Liu, J. (2017). Interfacial Connection Mechanisms in Calcium–Silicate–Hydrates/Polymer Nanocomposites: A Molecular Dynamics Study. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 9(46), 41014–41025. <https://doi.org/10.1021/acsami.7b12795>

Transport of Particles in Fractured Chalk: Effect of Flow Velocity, Fracture Orientation and Fracture Aperture

Hanan HAWI

Université Le Havre Normandie, Normandie Univ, UMR 6294 CNRS, LOMC, 76600 Le Havre, France.

RESUME

Le transport de particules dans les roches est fortement influencé par la présence de fractures, qui servent de conduits primaires pour les particules solides. L'objectif de ce travail est d'étudier l'effet de la vitesse d'écoulement, de l'ouverture et de l'orientation des fractures sur le transport des particules de kaolinite dans la craie fracturée. Des expériences de transport sont réalisées à des vitesses d'écoulement élevées, en utilisant deux échantillons de craie fracturée avec deux ouvertures différentes. Trois orientations différentes ont été utilisées. Les données expérimentales couplées au modèle numérique développé, basé sur l'équation d'advection-dispersion avec un terme source, sont utilisées pour déterminer les paramètres de transport. Les résultats suggèrent que l'effet hydrodynamique est significatif sur le transport des particules dans les fractures. Le taux de restitution, les coefficients d'attachement et de détachement des particules de kaolinite augmentent avec l'augmentation de la vitesse d'écoulement. L'échantillon avec la plus grande ouverture de fracture présente un taux de restitution plus élevé en raison d'un coefficient d'attachement plus faible. L'orientation verticale de la fracture améliore la récupération des particules et conduit à des courbes de percée plus précoces. Les résultats de cette étude contribuent à une compréhension globale des mécanismes de transport des particules dans les fractures.

Mots-clefs Transport de particules en suspension, ouverture de fracture, effet hydrodynamique, effets de la gravité.

I. INTRODUCTION

Emerging problems of pollution and water quality deterioration have progressively imposed the need to master the hydrogeological functioning of pollutant-receiving soils. In order to define the vulnerability of aquifers and to optimize modelling of pollutants transport and retention in soil. The karst aquifers in the Haute-Normandy serve as the main freshwater resources (El Janyani et al. 2014; Massei et al. 2003). The quality of water within these aquifers typically, relies on the existence of high permeability fractures acting as conduits for potential contaminants in the form of solid particles and solutes (Mondal et al. 2012). The introduction of these particles into the groundwater results in its contamination and thus, compromising its quality. This in turn, have a crucial effect on the public health, particularly in regions where potable water comes from karst aquifers.

In geological formation with low matrix permeability, transport of particles occurs predominantly through fractures (Zhang et al. 2012; Zvikelsky et al. 2008; James et al. 2004). Particle transport through fractures is a complex process that includes many mechanisms: advection, diffusion, deposition and re-entrainment (Tang et al. 1981). Fractures play a key role for the transport of pollutants, as they constitute preferential pathways through which solid particles (colloids, bacteria, viruses, etc.) and dissolved substances can move rapidly (Albarran et al. 2013; Mondal et al. 2012). Factors affecting the transport mechanisms of particles in fractures are intricately numerous. These factors include solution chemistry (McCarthy et al. 2002), fracture characteristics (James et al. 2005; Baiyu et al. 2021; Ding et al. 2021a; b), fluid properties (Hawi et al. 2023) and particle properties (Albarran et al. 2013; Zvikelsky 2006). Therefore, it is crucial to understand the impact of these factors on the transport of particles in fractures.

Many studies on different scales have explored the effect of flow velocity on the transport processes of particles in fractures (Mondal et al. 2012; Albarran et al. 2013). However, most of these studies are limited to low flow velocities (less than 0.01 cm/s) and colloidal particles with diameter less than 1 μm . Yet, the narrow apertures of fractures can still yield in high flow velocities. Moreover, high groundwater flow velocities (up to 0.28 cm/s) in fractured carbonate aquifers were reported by Medici et al. (2019). Thus, considering high flow velocities in studying the transport of particles in fractured rocks is crucial.

In reality, fractures are characterized by complex and irregular apertures, and tend to be randomly oriented according to the formation stress and rock properties. While numerous studies focused on the impact of fracture roughness (Baiyu et al. 2021), and aperture distribution (Chrysikopoulos et al. 2003), the effect of fracture aperture remains largely unexplored, despite its significant impact. Furthermore, the effect of gravitational settling, specifically for particles larger than 1 μm , is another crucial factor that cannot be neglected. Several studies employed numerical methods to study the effect of fracture orientation on particle transport in fractures (James et al. 2005; Ding et al. 2021a; b). However, as far as we are aware, no experimental studies have been conducted to explore this effect.

The present study investigated the effect of flow velocity at 0.017 cm/s and 0.085 cm/s. Also, the effect of fracture orientation is explored using three different orientation angles (0° , 45° and 90°) under the flow velocity 0.017 cm/s. Moreover, the effect of fracture aperture is studied using two fractured chalk samples of different apertures (0.81 mm and 1.41 mm). Transport tests in the chalk fractures are performed using kaolinite particles. The experimental data are fitted to the developed numerical model based on the Advection-Dispersion equation with a sources term. Finally, the transport parameters are determined and correlated to the flow velocity, orientation angle and fracture aperture.

II. MATERIALS AND METHODS

A. Experimental setup and procedure

Chalk samples were collected from Saint-Jouin Bruneval on the Normandy coast (France). Two fractured chalk samples were formed (Hawi et al. 2023) of apertures $b_1=0.81$ mm (± 0.08 mm) and $b_2=1.41$ mm (± 0.20 mm). The density and porosity of the chalk utilized is 1.7 g/cm³ and 0.33 (± 0.03) respectively. The geometrical characteristics of the chalk samples, presented in figure 1a, were determined using X-ray computed tomography (RX solutions, France). The suspended particles utilized in this study are kaolinite

P300 of density 2.65 g/cm^3 . Kaolinite particles were selected using sedimentation and centrifugation to obtain an average particle size of $2.3 \mu\text{m}$ ($0.16 \mu\text{m} < \text{diameter} < 10 \mu\text{m}$). The diffusion coefficient of fluorescein through chalk was measured using through-diffusion method. It was found to be $0.55 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{s}$, after one year of measurements.

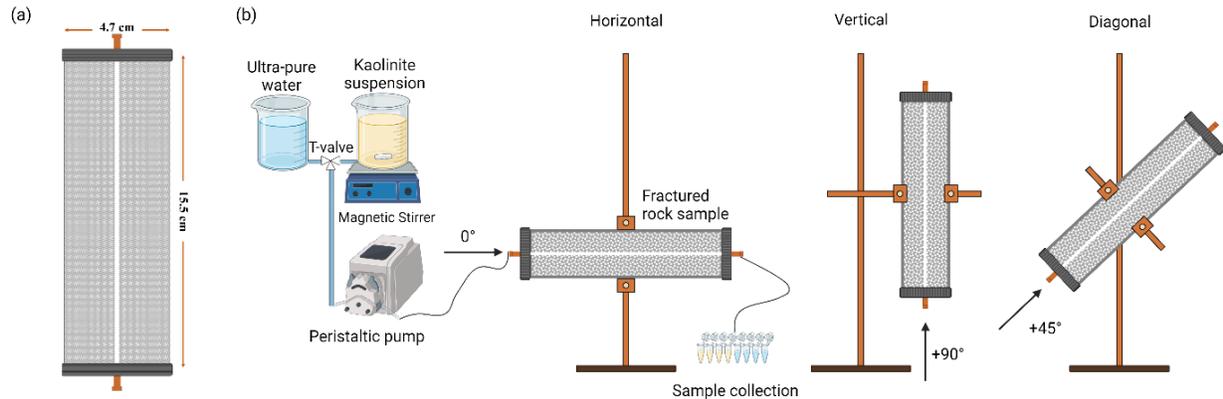


FIGURE 1. Schematic representation of the (a) fractured chalk sample with the geometrical characteristics shown and (b) the experimental setup with fracture oriented horizontally (0°), and vertically (90°), diagonally (45°).

In figure 1b, the schematic representation of the experimental setup is shown. The beaker containing the suspended kaolinite solution is placed on a magnetic stirrer and connected to a peristaltic pump (Dinko instruments, Model D-25plus). Before each experiment, the fractured chalk sample is flushed using 1 mMol NaOH to remove any deposited particles. The chalk samples are saturated using ultra-pure water (Milli-Q Gradient System, $18 \text{ M}\Omega \text{ cm}$) for 72 hours before experimentation. All experiments were performed at room temperature (20°C). Fracture volume (FV) represents the volume of the fracture using the average fracture aperture. The experiment begins with the injection of 3 FV of kaolinite solution of initial concentration $C_0 = 0.2 \text{ g/l}$. Then, around 7 FV of ultra-pure water only are injected. At the outlet of the fractured chalk, samples were collected, and their concentrations were determined using a spectrophotometer (UV-1600PC Spectrophotometer) calibrated ($R^2 > 0.99$) with respect to kaolinite.

The obtained concentrations of kaolinite particles (C) were normalized to the initial concentration (C/C_0). The breakthrough curves (BTCs) representing the normalized concentrations of the recovered particles as a function of number of fracture volume (NFV) were plotted. NFV is calculated according to the following equation:

$$NFV = t \frac{Q}{FV} \quad (1)$$

where t is the time [T], Q is the volumetric flow rate [L^3/T]. The recovery rate R (%), presenting the percentage of recovered mass of particles relative to the total mass of particles injected, is obtained by integrating the BTC, according to Eq. (2). The relative residence time is calculated according to the moment method (Fried et al. 1971). Finally, the arrival time is the time at which the concentration of particles first becomes to increase, indicating the arrival of particles at the outlet of the fracture.

$$R = \int_0^t C(t) dt = \sum_{i=1}^{n-1} \frac{C_{i+1} + C_i}{2} \cdot (t_{i+1} - t_i) \quad (2)$$

Using the peristaltic pump, it was possible to vary the flow velocity. The effect of flow velocity is studied across a range of six different flow velocities between 0.017 cm/s and 0.3 cm/s. In this paper we focus on the outcomes obtained at the two flow velocities 0.017 cm/s and 0.085 cm/s. Moreover, the fracture orientation is varied, using a bracket, between 0°, 45° and 90°, employing upward and downward injection under various flow velocities. Reynolds number has maximum value of 2.32 (Table 1) for the highest tested flow velocities, indicating laminar flow.

B. Modelling approach of transport in fractures

The main transport mechanisms of particles in fractures are advection and dispersion (Tang et al. 1981). In this study the diffusion into the matrix is neglected due to the large particle size compared to the pore size and the low diffusion coefficient of fluorescein (section II.A.). The transport parameters were determined by fitting the experimental data to the one-dimensional advection-dispersion equation with a source term (Equation 2) (Corapcioglu and Jiang, 1993).

$$\frac{\partial C}{\partial t} - D_L \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} + U_T \frac{\partial C}{\partial x} = -\rho_p \frac{\partial s}{\partial t} \quad (3)$$

where D_L is the hydrodynamic longitudinal dispersion coefficient [L²/T], x is the coordinate direction along the fracture [L], U_T is the total particle velocity [L/T], ρ_p is the particle density [M/L³], s is the mass fraction of the deposited particles on the fracture [M/M]. The source term is expressed as following:

$$\rho_p \frac{\partial s}{\partial t} = k_{att} e^{-\frac{s}{s_c}} C - \rho_p k_{det} s \quad (4)$$

where, k_{att} is the attachment coefficient [1/T], s_c quantifies the decline in attachment coefficient [M/M], and k_{det} is the detachment coefficient [1/T]. To study the influence of fracture orientation, the gravitational effect should be included in the numerical model. Thus, the influence of gravity is integrated in the mathematical model by combining in the total velocity U_T [L/T] (Equation 4), the flow velocity U [L/T] and the sedimentation velocity U_s [L/T] (Equation 5) (Chrysikopoulos et al. 2003).

$$U_T = U - U_s \quad (5)$$

$$U_s = -\frac{(\rho_p - \rho_w) d_p^2}{18\mu_w} g \cdot \sin \beta \quad (6)$$

where ρ_w is the density of water [M/L³], d_p is the particle diameter [L], μ_w is the hydrodynamic viscosity coefficient [M/L.T], g is the gravitational acceleration [L/T²], and β is the angle of the flow direction [°], it varies between 0, 45°, and 90°. The initial and boundary conditions are as following:

$$C(x, 0) = 0; \quad s(x, 0) = 0; \quad (7)$$

$$C|_{(x=0,t)} = \begin{cases} C_0, & 0 \leq t \leq t_{inj} \\ 0, & t > t_{inj} \end{cases}, \quad \text{where } t_{inj} \text{ is the injection time} \quad (8)$$

$$\left. \frac{\partial c}{\partial t} \right|_{(x=L,t)} = 0 \quad (9)$$

III. RESULTS AND DISCUSSION

Experimental analysis coupled with numerical modelling is used to obtain the dispersion, attachment and detachment coefficients controlling the transport of kaolinite particles. The obtained transport parameters, with the experimental recovery rate are presented in Table 1, for the different experiments conditions.

Table 1. Summary of the kaolinite transport experiments conditions, and the fitted parameters values, and estimated mass recoveries.

b (mm)	U (cm/s)	β (°)	D_L cm ² /s	k_{att} (1/h)	k_{det} (1/h)	Recovery Rate (%)	Reynolds Number	
1.41 mm	0.085	0°	0.0550	8.70	0.100	63.9	2.32	
	0.017		0.0075	2.70	0.010	43.6	0.46	
0.81 mm	0.085		0.0900	11.88	0.200	57.9	1.33	
	0.017		0.0080	3.72	0.015	40.9	0.27	
			45°	0.0140	3.18	0.002		43.7
			90°	0.0250	1.50	0.001		71.5

A. Effect of flow velocity and fracture aperture

Figure 2a compares the fitted breakthrough curves of the transport experiments at the two tested flow velocities 0.085 cm/s, and 0.17 cm/s. The results indicate that hydrodynamic effect is significant. When the flow velocity is increased from 0.017 cm/s to 0.085 cm/s, the plateau of the breakthrough curve increased from about 47% to 70%. Similar results were observed in previous studies using flow velocities less than 0.01 cm/s. Albarran et al. (2013) studies the effect of flow velocity for four different types of colloids under flow velocities ranging between 8.5×10^{-4} cm/s and 9.95×10^{-2} cm/s. They found that the peak height of the breakthrough curves decreases with the decrease in flow velocity, showing that particles have been retained in the fracture aperture. Decreasing flow velocity slows down the particle's motion which in turn leads to longer transport duration. This contributes to particle deposition and inhibits particle transport.

According to Table 1. the dispersion coefficient increases with the increase in flow velocity in both fractured chalk samples. The increase in flow velocity can create some irregularities in the flow, even for laminar flow, leading to the spreading of particles. Therefore, increasing the flow velocity leads to higher dispersion coefficient. This correlation was also shown by several studies before (Keller et al. 1999; Dronfield et al. 1993). Similarly, the attachment coefficient increased when the flow velocity was increased in both fractured samples. Because of the greater spreading of particles at higher flow velocities, the likelihood of particle approaching the fracture surface becomes higher. Eventually, enhancing the probability of

attachment to the fracture surface. Moreover, the detachment coefficient also increased with flow velocity due to the increase in hydrodynamic shear force.

Figure 2b. represents the breakthrough curves of kaolinite particles in the two different fractured chalk samples of apertures 1.41 mm and 0.81 mm at the highest flow velocity 0.085 cm/s. The BTCs and the recovery rates (Table 1.) show that the retention and the attachment coefficient (Table 1.) in the fractured chalk sample of the smaller aperture (0.81 mm) is higher. Due to the shorter distance the particles have to travel to reach the fracture surface, the retention of particles in the smaller aperture might occur more easily. Therefore, the recovery of kaolinite particles is higher in the fractured sample with the larger aperture. However, the detachment coefficient in the smaller fractured chalk sample, generally, is higher. Shear stress is inversely proportional to the fracture aperture and increasing shear stress would increase the detachment of particles. Therefore, the detachment coefficient is higher in the smaller fractured sample.

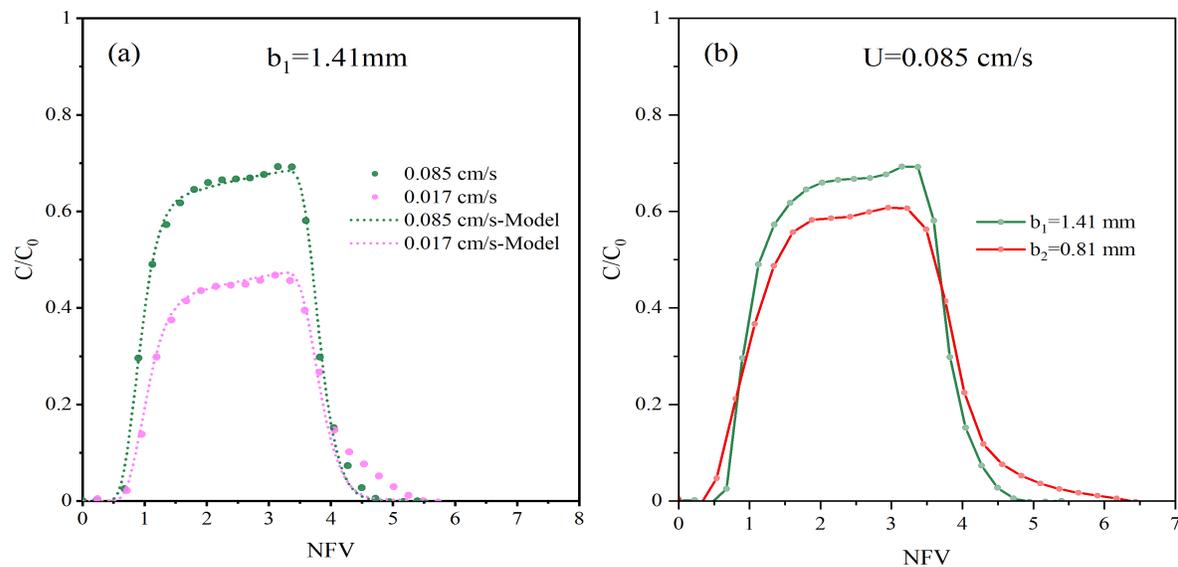


FIGURE 2. Experimental data and fitted model of the breakthrough curves of kaolinite particles in the fractured chalk sample, placed horizontally (0°). (a) Hydrodynamic effect. (b) Fracture aperture effect.

B. Effect of fracture orientation

Figure 3. shows the variation of the breakthrough curves of kaolinite particles with different fracture orientations at the flow velocity 0.017 cm/s. The breakthrough curves become more pronounced with increasing the fracture orientation vertically. When the fracture was placed in the horizontal orientation (0°), the plateau of the breakthrough curve reached around 41%. Then when the fracture orientation was increased to 90° , or in other words placed vertically, the plateau increases to reach around 76%. Similarly, the recovery rate of kaolinite particles increased from 41% at 0° to 71% at 90° . No significant difference was noticed between the horizontal and the inclined orientation. This phenomenon was observed previously in many theoretical studies (Ding et al. 2021a; b; James et al. 2005). Ding et al. (2021a, 2021b) reported that in vertical orientation, the settlement of particles diminishes. So, particles are not dragged away from the main streamline towards the fracture surface. However, in the horizontal orientation, particles can deposit in the

fracture by settlement due to gravity, specifically with low flow velocities. This explains the higher recovery rates at the vertical orientation angles.

Spreading of particles increases with the increase in the fracture orientation. At the horizontal orientation, particles can sink with gravity to the fracture surface. However, at inclined and vertical orientations, particles are able to sample the parabolic flow velocity profile (James et al. 2005). Thus, the spreading or dispersion is higher when the fracture orientation is larger with respect to the horizontal. On the other hand, the attachment coefficient exhibits a contrary trend to the dispersion coefficient with the variation in fracture orientation. The attachment coefficient is maximum (3.96 h^{-1}) when the fracture is at horizontal direction (0°) and it decreases to a minimum value (1.56 h^{-1}) at the vertical orientation (90°). This is consistent with the numerical findings of Ding et al. (2021b). As mentioned before (Section II.A), with steeper angles the collision frequency of particles with the fracture surfaces is lower. Thus, with increasing fracture orientation vertically, the attachment coefficient decreases. This can also explain the higher recovery of particles at vertical and inclined orientations. The detachment coefficient was nil at all fracture orientations. The nearly negligible hydrodynamic shear at low flow velocities, explains the absence of detachment of particles at 0.0017 cm/s .

The breakthrough curves of Figure 3. show different arrival times for particles. In the vertical orientation, particles are transported rapidly, and their arrival times is about 0.1 NFV. While for the horizontal orientation, particles are mostly retarded with respect to the vertical and diagonal orientations, they arrive to the fracture outlet after about 0.8 NFV. This can be attributed to the mitigation in the interactions between kaolinite particles and fracture surface at the vertical and diagonal orientations. So, the effect of gravity on particle retardation cannot be neglected.

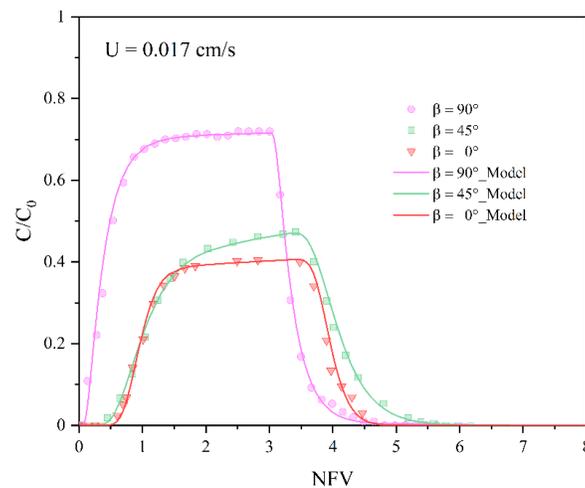


FIGURE 3. Fitted breakthrough curves of kaolinite particles with different fracture orientation (0° , 45° , and 90°) under the flow velocity 0.017 cm/s .

IV. CONCLUSION

The effect of flow velocity, fracture aperture and fracture orientation on the transport of kaolinite particles was studied. Transport experiments were performed at two different flow velocities (0.017 and 0.085 cm/s),

using two fracture chalk samples with different apertures (0.81 mm and 1.41 mm). The fracture orientation was also varied between 0° (horizontal), 45° (diagonal), and 90° (vertical). Experimental data were fitted to a numerical model based on the Advection-Dispersion equation with a source term. Then, transport parameters were determined and they were correlated with the flow velocity, fracture aperture and fracture orientation. Results indicated that the recovery of particles and the attachment coefficient increases with the increase in flow velocity. Moreover, fracture samples with larger apertures exhibit higher recovery rates with smaller attachment coefficients. The increase in fracture inclination from horizontal to vertical orientation, enhances the transport of particles. This research introduces a novel perspective, that deeply enhances our understanding in transport mechanisms of particles in fractures. Despite, the various studies performed on fractured rocks, to the best of our knowledge, the effect of fracture orientation and flow velocity under high flow rates is rarely explored. Also, no experimental investigation has been reported on particles transport with variable fracture orientation. Such an understanding is important for the assessment of groundwater quality, management of resources and contribute to the advancement in hydrogeology and environmental field.

REFERENCES

- Albarran, N., Missana, T., Alonso, U., García-Gutiérrez, M. and López, T., 2013. Analysis of latex, gold and smectite colloid transport and retention in artificial fractures in crystalline rock. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 435, pp.115-126.
- Baiyu, Z.; Hongming, T.; Senlin, Y.; Gongyang, C.; Feng, Z.; Shiyu, X. Effect of fracture roughness on transport of suspended particles in fracture during drilling. *Journal of Petroleum Science and Engineering* 2021, 207, No. 109080.
- Chrysikopoulos, C.V. and James, S.C., 2003. Transport of neutrally buoyant and dense variably sized colloids in a two-dimensional fracture with anisotropic aperture. *Transport in porous media*, 51, pp.191-210.
- Corapcioglu, M. Y.; Jiang, S. Colloid-facilitated groundwater contaminant transport. *Water Resour. Res.* 1993, 29, 2215–2226. <https://doi.org/10.1007/s13762-022-04201-z>
- Ding, Y., Wang, H. and Yang, D., 2021b. Numerical simulation of reactive particle transport in a randomly-orientated rough fracture with reversible and irreversible surface attachments. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 626, p.127008.
- Ding, Y.; Meng, X.; Yang, D. Numerical simulation of polydisperse dense particles transport in a random-orientated fracture with spatially variable apertures. *Colloids Surf., A* 2021a, 610, No. 125729.
- Dronfield, D. G.; Silliman, S. E. Velocity dependence of dispersion for transport through a single fracture of variable roughness. *Water Resour. Res.* 1993, 29, 3477–3483.
- El Janyani, S., Dupont, J.P., Massei, N., Slimani, S. and Dörfliker, N., 2014. Hydrological role of karst in the Chalk aquifer of Upper Normandy, France. *Hydrogeology journal*, 22(3), p.663.
- Fried, J.J., Combarous, M.A., 1971. Dispersion in porous media. In *Advances in hydroscience* (Vol. 7, pp. 169–282). Elsevier, DOI: 10.1016/B978-0-12-021807-3.50008-4.
- Hawi, H., Ahfir, N.D., Ouahbi, T., Alem, A. and Wang, H., 2023. Particle Transport in Saturated Fractured Media: Effect of Flow Velocity and Fracture Aperture. *ACS ES&T Water*, 3(9), pp.3132-3140.

James, S. C.; Bilezikjian, T. K.; Chrysikopoulos, C. V. Contaminant transport in a fracture with spatially variable aperture in the presence of monodisperse and polydisperse colloids. *Stochastic Environ. Res. Risk Assess.* 2005, 19, 266–279.

James, S.C. and Chrysikopoulos, C.V., 2004. Dense colloid transport in a bifurcating fracture. *Journal of colloid and interface science*, 270(1), pp.250-254.

Massei, N., Wang, H.Q., Dupont, J.P., Rodet, J. and Laignel, B., 2003. Assessment of direct transfer and resuspension of particles during turbid floods at a karstic spring. *Journal of hydrology*, 275(1-2), pp.109-121.

McCarthy, J. F.; McKay, L. D.; Bruner, D. D. Influence of ionic strength and cation charge on transport of colloidal particles in fractured shale saprolite. *Environ. Sci. Technol.* 2002, 36, 3735–3743.

Medici, G.; West, L. J.; Banwart, S. A. Groundwater flow velocities in a fractured carbonate aquifer-type: implications for contaminant transport. *J. Contam. Hydrol.* 2019, 222, 1–16.

Mondal, P.K. and Sleep, B.E., 2012. Colloid transport in dolomite rock fractures: effects of fracture characteristics, specific discharge, and ionic strength. *Environmental science & technology*, 46(18), pp.9987-9994.

Tang, D. H.; Frind, E. O.; Sudicky, E. A. Contaminant transport in fractured porous media: Analytical solution for a single fracture. *Water Resour. Res.* 1981, 17, 555–564.

Zhang, W., Tang, X., Weisbrod, N. and Guan, Z., 2012. A review of colloid transport in fractured rocks. *Journal of Mountain Science*, 9, pp.770-787.

Zvikelsky, O., Weisbrod, N. and Dody, A., 2008. A comparison of clay colloid and artificial microsphere transport in natural discrete fractures. *Journal of Colloid and Interface Science*, 323(2), pp.286-292.

Zvikelsky, O.; Weisbrod, N. Impact of particle size on colloid transport in discrete fractures. *Water Resour. Res.* 2006, 42 (), DOI: 10.1029/2006WR004873.

Modèle chemo-mécanique de carbonatation et de lixiviation du béton dans des conditions hydriques et thermiques variables

Layla IBRAHIM

LMDC, Université de Toulouse, INSA/UPS Génie Civil, 135 Avenue de Rangueil, 31077 Toulouse cedex 04 France.

RESUME : Face aux enjeux environnementaux, les ingénieurs civils ont recours à des études axées sur la durabilité des structures afin de comprendre puis modéliser les différents mécanismes de dégradation du béton. Néanmoins, les modèles définis à l'échelle microscopique ou mésoscopique sont très souvent inadaptés aux calculs à l'échelle de la structure. Cet article présente un modèle thermo-hydro-chimique (THC) basé sur une stratégie multi-échelle, adaptable à l'échelle de la structure et au couplage avec un modèle poro-mécanique du béton et permettant de prévoir le comportement de structures soumises à la carbonatation et la lixiviation. Le modèle chimique intègre la minéralogie du ciment et estime son évolution au cours de la dégradation chimique. L'objectif de cette étude est d'améliorer l'efficacité des calculs pour permettre le couplage du modèle THC avec la mécanique (M) à l'échelle de la structure. L'accroissement d'efficacité numérique du modèle THCM s'appuie sur une méthodologie de « réduction de modèle ». L'équilibre thermodynamique des hydrates de ciment avec la solution de pores est considéré en ramenant la description du béton à quatre variables d'état principales intégrées dans un système de quatre équations bilans non linéaires. L'influence de la température sur la dégradation chimique est prise en compte à travers son impact sur l'équilibre thermodynamique des hydrates et sur la diffusion des espèces. Le modèle estime les différents types d'hydrates et la calcite auxquels sont liés le volume des pores, la quantité d'eau et les propriétés mécaniques. Le modèle a été implémenté dans un code aux éléments finis, et validé par comparaisons avec des résultats expérimentaux de la littérature.

Mots-clefs : Couplage chimie-mécanique, Equilibre thermodynamique, Température, Eléments finis, Dégradation chimique.

I. INTRODUCTION

Les grandes structures de génie civil telles que les ponts, les tunnels, les barrages, sont conçues pour résister à diverses charges naturelles ou provoquées par l'activité humaine. La durabilité de ces structures pour des longues périodes est devenue un axe central de plus en plus développé en génie civil. A long terme, la dégradation chimique de ces structures ne se limite pas à quelques centimètres, mais peut s'étendre sur une plus grande échelle, affectant alors son fonctionnement structurel. Cependant, la caractérisation expérimentale du comportement mécanique résiduel à long terme sous dégradation chimique nécessite un temps considérable. Pour pallier ce problème, les approches de modélisation et de simulation numérique offrent la possibilité de projeter sur de très longues périodes le comportement chimique induit par la dégradation et son effet sur le comportement mécanique structurel. La pertinence de ces modélisations réside dans leur capacité

à s'adapter de façon automatique à une certaine diversité de matériaux, pour cela ils doivent considérer la composition et la minéralogie de différents bétons. Dans cet article, nous présentons un modèle de dégradation chimique du béton non armé, applicable à l'échelle de la structure et couplant deux phénomènes de dégradation chimique : la carbonatation et la lixiviation, cela en prenant compte les conditions thermiques et hydriques. Ce modèle chimique a été élaboré en vue de son couplage avec un modèle mécanique basé sur la théorie de l'homogénéisation. Les effets de ces dégradations chimiques sur le comportement mécanique sont distincts : la lixiviation entraîne une diminution des propriétés de la pâte de ciment hydratée (Le Bellégo et al., 2003; Ulm et al., 2002), tandis que la carbonatation augmente ces propriétés en raison de conversion d'hydrates en calcite (Takla, 2010). Ainsi, un modèle d'homogénéisation du béton capable de décrire ces deux effets dans un même calcul basé sur la chimie est essentiel pour avoir une compréhension de ces interactions complexes. Ce travail a été accompli dans le cadre d'un projet européen dédié à l'étude des centres de stockage de déchets radioactifs, le projet « EURAD-MAGIC », visant à favoriser la collaboration entre des laboratoires effectuant des essais expérimentaux sur la dégradation chimique des matériaux et d'autres laboratoires se consacrant à la modélisation de ces aspects à différentes échelles. Notre laboratoire s'occupe de la modélisation chemo-mécanique à l'échelle de la structure et à très long terme (plusieurs milliers d'année pour les tunnels d'entreposage des déchets radioactifs en raison de la durée de demi-vie de ces déchets). Le scénario d'altération par lixiviation et carbonatation est celui induit par le contexte géologique et d'exploitation des tunnels Cigéo de l'Andra.

II. REPRESENTATION DU MODELE THERMO-HYDRO CHIMIQUE

La modélisation de dégradations chimiques des matériaux cimentaire a été développée depuis plusieurs décennies par les modèles géochimiques sont couplés à des modèles de transport pour faire des modèles de transport réactif. Ces modèles de transports réactifs considèrent les différentes espèces chimiques se trouvant dans la solution interstitielle ou dans la phase solide par autant d'équations de conservation qu'il y a d'espèces chimiques. Les échanges avec le solide sont basés sur l'équilibre thermodynamique des espèces (Jacques et al., 2011; Patel et al., 2021; Wilson et al., 2018) qui sont des équations fortement non linéaires. Cela rend difficile l'application de ces modèles à des grandes structures et à fortiori la réalisation de simulations sur de longues périodes (Seigneur et al., 2020). Pour contourner ces difficultés, d'autres auteurs utilisent des approches de modélisation à l'échelle macroscopique, ils considèrent la dégradation chimique du béton comme un processus holistique au niveau structurel du matériau (Phung et al., 2016; Wang et al., 2021). Ces modèles classiques sont généralement développés pour étudier des cas spécifiques dans lesquels le matériau est fixe, et ils ne prennent en compte les équilibres chimiques que de façon globale sans adaptation automatique à différents types de matériaux. Toutefois, il est essentiel de disposer d'un modèle adaptable à la minéralogie prenant en compte l'effet de la température et les équilibres thermodynamiques. Le défis du modèle THCM présenté dans cet article consiste à le rendre adaptable à une certaine gamme de minéralogies, tout en accroissant ses performances numériques par rapport aux modèles géochimiques classiques en utilisant la technique de réduction de modèle basée sur la limitation du nombre de variables.

Le modèle THC développé est décrit par une approche de réduction de modèle revenant à ne considérer que deux variables d'états principales pour gérer la chimie (CO_2 en phase liquide, Ca^{2+} en phase liquide) associées à W_L la quantité d'eau et T la température, formant ainsi quatre équations de conservation. Les hypothèses de cette réduction reposent sur des considérations physiques. Au niveau de la carbonatation, l'hypothèse d'équilibre instantané entre le gaz et le liquide permet de réduire en une seule variable qui est la quantité totale de dioxyde de carbone en solution en utilisant la loi de Henry et la loi des gaz parfaits, ce qui s'exprime par l'équation (1). Ce choix permet de prédire la carbonatation dans un environnement atmosphérique mais aussi saturé comme c'est le cas pour le milieu géologique environnant les tunnels de l'Andra. La lixiviation des hydrates libère des espèces ioniques différentes, or pour réduire le nombre de ces variables à gérer, deux hypothèses principales ont été formulées. La première est l'hypothèse physique d'équilibre instantané entre les phases dissoutes et solides (la vitesse de réaction solide-liquide étant, dans le cas d'une lixiviation, très grande par rapport à celle de diffusion des espèces), la seconde est que le calcium étant l'élément principal de la matrice cimentaire, l'équilibre thermodynamique des hydrates peut être approximé avec seulement le calcium en solution (Adenot, 1992). Le calcium en solution a donc été choisi comme variable d'état pour gérer la lixiviation des hydrates, ce qui correspond à l'équation (2). Les deux équations (3) et (4), de l'eau et de température sont nécessaires afin de coupler le modèle chimique à la variation de l'état hydrique et thermique du matériau. La calcite, la porosité et le degré de saturation sont considérés comme des variables internes ainsi que les phases solides de la pâte. Les équations présentées ci-dessous sont obtenues à partir des équations de conservation combinée aux hypothèses de réduction de modèle précédentes.

$$\begin{aligned} & [\phi \cdot S_L + K_H(T)\phi(1 - S_L)] \frac{\partial \mathbf{CO}_{2L}}{\partial t} + \text{div} \left[- (D_{eq \text{CO}_{2T}}(\phi, S_L, T)) \cdot \overrightarrow{\text{grad}} \mathbf{CO}_{2L} \right] \\ & = S_{CaCO_3 \rightarrow CO_{2L}} - \mathbf{CO}_{2L} \left(\frac{\partial \phi \cdot S_L}{\partial t} + K_H(T) \cdot \frac{\partial \phi \cdot (1 - S_L)}{\partial t} \right) \end{aligned} \quad (1)$$

\mathbf{CO}_{2L} est la concentration totale du CO_2 en phase liquide [mol/m^3], ϕ est la porosité, S_L le degré de saturation, $K_H(T) = \frac{1}{R \cdot T \cdot H_{CO_2(T)}}$ avec $H_{CO_2(T)}$ le coefficient de Henry, $D_{eq \text{CO}_{2T}}(\phi, S_L, T)$ le coefficient de diffusion équivalent [$\text{m}^2 \cdot \text{s}$]. $S_{CaCO_3 \rightarrow CO_{2L}}$ est la consommation du dioxyde de carbone due à la précipitation de la calcite [$\text{mol}/\text{m}^3 \cdot \text{s}$].

$$\left(\phi \cdot S_L + \frac{\partial C_{as}}{\partial C_{a^{2+}}} \right) \frac{\partial \mathbf{Ca}^{2+}}{\partial t} + \text{div} \left[- D_{Ca^{2+}}(\phi, S_L, T) \cdot \overrightarrow{\text{grad}} \mathbf{Ca}^{2+} \right] = S_{CaCO_3 \rightarrow Ca^{2+}} - \mathbf{Ca}^{2+} \cdot \frac{\partial \phi \cdot S_L}{\partial t} \quad (2)$$

\mathbf{Ca}^{2+} est la concentration du calcium en solution [mol/m^3], $D_{Ca^{2+}}(\phi, S_L, T)$ le coefficient de diffusion effective, $S_{CaCO_3 \rightarrow Ca^{2+}}$ est la source due à la précipitation de la calcite et l'apports du calcium au décalcification

$$\frac{\partial \mathbf{W}_L}{\partial t} + \text{div} \left[- D_{W_L}(\phi, S_L, T) \cdot \overrightarrow{\text{grad}} \mathbf{W}_L \right] = S_{W_b} \quad (3)$$

\mathbf{W}_L est teneur en eau en [$\frac{\text{m}^3 \text{ d'eau}}{\text{m}^3 \text{ de béton}}$], $D_{W_L}(\phi, S_L, T)$ le coefficient de diffusion, S_{W_b} décrit la quantité d'eau libérée par la dissolution des hydrates.

$$\rho_c \cdot C_c \frac{\partial T}{\partial t} + \text{div} \left[-\lambda_c \cdot \overrightarrow{\text{grad}} T \right] = 0 \quad (4)$$

T est la température exprimée en kelvins, ρ_c est la masse volumique du béton [kg/m^3], C_c la capacité thermique spécifique du béton [$J/kg \cdot K$] et λ_c la conductivité du béton [$J/s \cdot m \cdot K$]

La modélisation de lixiviation est basée sur la modélisation de l'équilibre entre le calcium en solution et le calcium solide par une courbe d'équilibre solide-liquide. Le fait d'introduire l'effet d'échanges solides-liquide, terme $\partial C_{as}/\partial Ca^{2+}$ dans la capacité de l'équation (2), peut conduire à des instabilités numériques si cette courbe n'est pas à dérivée continue. Par conséquent, dans ce modèle, la modélisation de l'équilibre solide-liquide doit être non seulement adaptable à la minéralogie mais aussi continue, dérivable et inversible. La principale originalité de ce modèle est d'utiliser des fonctions de distributions des phases solides en fonction de la concentration du calcium en solution pour satisfaire toutes les conditions précédentes. Ces fonctions supposent la dissolution de chaque hydrate d'une façon analytique en prenant en compte l'effet de la température sur les équilibres thermodynamiques de chacun d'eux (Adenot, 1992; Tognazzi, 1998). Ces fonctions supposent la dissolution progressive des hydrates en fonction de la concentration du calcium en solution. Pour chaque hydrate, une fonction élémentaire $f_{H_j}(Ca^{2+})$, présentée dans l'équation (5), est paramétrée en fonction de la concentration de calcium en équilibre de cet hydrate à une température donnée $[Ca_{eq(T)}^{2+}]_{H_j}$. La concentration d'équilibre est calculé par un système d'équation basé sur la thermodynamique. m_j est un paramètre contrôlant la progressivité de la dissolution, il doit être calé pour chaque famille d'hydrates en se basant sur des points expérimentaux de la littérature. Par exemple pour les silicates de calcium hydraté (CSH), la progressivité de la fonction permet de considérer la variété des rapports calcium/silicium sans entrer dans le détail, mais en respectant la stœchiométrie globale des CSH.

$$f_{H_j}(Ca^{2+}) = 1 - \exp \left[\frac{-1}{m_j} \left(\frac{[Ca^{2+}]}{\left(\frac{1}{m_j \cdot \ln(2)} \right)^{1/m_j} \cdot [Ca_{eq(T)}^{2+}]_{H_j}} \right)^{m_j} \right] \quad (5)$$

A titre d'illustration, les courbes de dissolution de la portlandite sont représentées dans la Figure 1 pour trois températures différentes. En augmentant la température la courbe se décale vers la gauche en raison de la diminution de la concentration du calcium en solution correspondant à l'équilibre de la portlandite (Lothenbach et al., 2008; Peycelon et al., 2006). La forme de cette fonction évite la dissolution brutale des hydrates. Physiquement, pour la portlandite, cet effet reproduit l'effet de l'accessibilité progressive au site de la réaction (Bes, 2019), il est en effet impossible de dissoudre toute la portlandite sans affecter certains CSH qui isole certains grains de portlandite. Outre cet aspect d'accessibilité, la progressivité de la fonction facilite également le traitement numérique en délocalisant les fronts de dissolution, qui deviennent moins abrupts que dans les codes géochimiques. Cette fonction $f_{H_j}(Ca^{2+})$ varie entre 0 et 1, elle indique la proportion de quantités résiduels dans la phase en fonction de la concentration en calcium en solution.

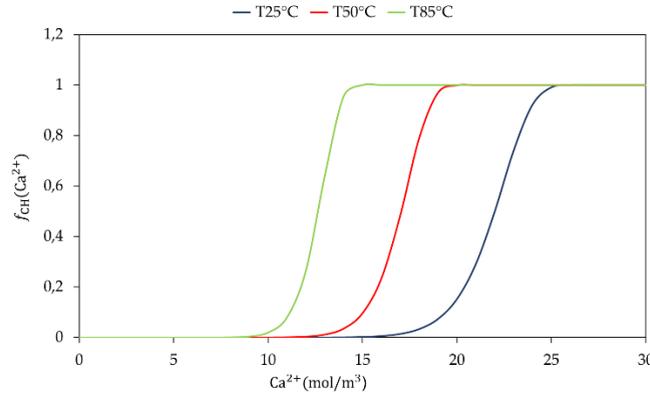


Figure 1: Courbes élémentaires de la dissolution de la portlandite (CH) à trois températures (25°C, 50°C, 85°C) en utilisant la fonction de distribution $f_{CH}(Ca^{2+})$ de l'équation (5)

Afin d'obtenir la variation du calcium solide total en fonction du calcium en solution pour l'équation (2), les fonctions élémentaires de chaque hydrate sont multipliées par les quantités maximales de calcium solide dans chaque hydrate pour l'état non dégradé et du degré d'hydratation, qui ne dépend que de la composition chimique du ciment. Par conséquent, le type de ciment est pris en compte automatiquement et la courbe du calcium solide total est obtenue en additionnant les courbes élémentaires de chaque hydrate. La Figure 2 représente la courbe d'équilibre total pour deux types de ciment un CEMI et un CEMV, à la température de 25°C. On peut constater l'absence de Portlandite dans le CEMV, et la plus grande proportion d'Hexahydrates.

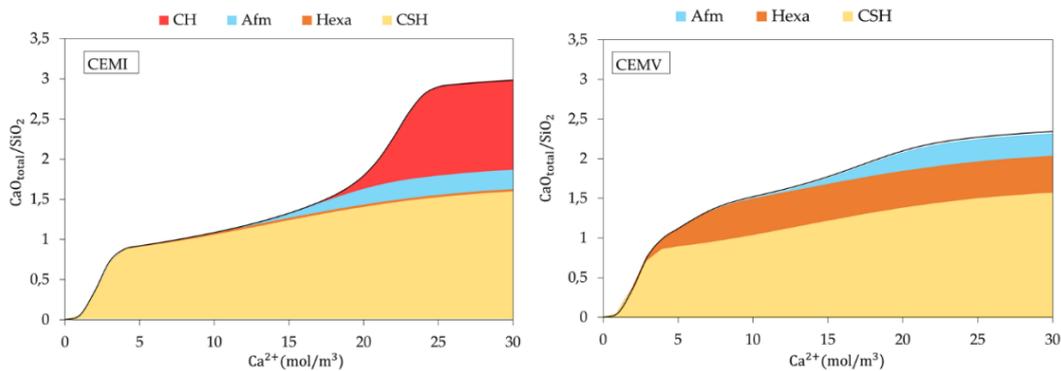


Figure 2: Courbes d'équilibre thermodynamique pour CEMI et CEMV à 25°C (CH : Portlandite, Afm : Monosulfoaluminate de calcium, Hexa : Hyexahydrate, CSH silicate de calcium hydraté avec une teneur maximale de calcium de 1,65 fois la teneur en silicate)

III. PREDICTION DES PROPRIETES MECANIQUES EN FONCTION DE L'ETAT CHIMIQUE

La pâte de ciment est composée de grains de ciment anhydres, d'hydrates et de vides. Lors de la décalcification, les volumes des phases solides décroissent et le volumes des vides augmentent. Cela engendre une diminution des propriétés mécaniques de la pâte (Gerard, 1996; Sellier et al.,

2011; Ulm et al., 2002) . Par contre, du fait de la carbonatation, une nouvelle phase solide précipite, la calcite. Certains auteurs (Chang and Chen, 2005; Ghorbanbeigi et al., 2016; Urbonas et al., 2016) ont pu démontrer que la précipitation de la calcite augmente la rigidité du béton. Les propriétés mécaniques de la pâte varient donc en fonction de son état chimique. Pour considérer ces deux aspects, le schéma d'homogénéisation de Mori-Tanaka a été choisi pour déterminer le module d'élasticité de la pâte de ciment dégradé (Mori and Tanaka, 1973). Ce schéma est adapté à la fois à la dissolution des hydrates et la formation de la calcite.

$$\begin{cases} K_{hom} = \left(k_m + \frac{4}{3} \mu_m \sum_{i=1}^n c_i \frac{k_i - k_m}{k_i + \frac{4}{3} \mu_m} \right) \left(1 - \sum_{i=1}^n c_i \frac{k_i - k_m}{k_i + \frac{4}{3} \mu_m} \right)^{-1} \\ \mu_{hom} = \left(\mu_m + f_m \sum_{i=1}^n c_i \frac{\mu_i - \mu_m}{\mu_i + f_m} \right) \left(1 - \sum_{i=1}^n c_i \frac{\mu_i - \mu_m}{\mu_i + f_m} \right)^{-1} \end{cases} \quad (6)$$

$$f_m = \frac{\mu_m(9k_m + 8\mu_m)}{6(k_m + 2\mu_m)}$$

Les modules de compressibilité et de cisaillement élastiques de la pâte de ciment (K_{phom}, μ_{phom}) sont déterminés par l'équation (6). A ce niveau d'homogénéisation la matrice est le CSH solide défini par ces propriétés k_m et μ_m . Les inclusions ($i=1 \dots 5$) sont les anhydres, la portlandite (CH), les aluminates (Afm, Aft, Hexa), la porosité totale et la calcite. Chacun a ses modules k_i et μ_i connus grâce à des essais de nanoindentation (Ulm et al., 2002). Ce schéma considère les fractions volumiques des inclusions c_i déterminées par le modèle chimique qui calcule les volumes des phases solides et la porosité en fonction de l'état chimique décrit précédemment (les phases solides et la porosité étant variables internes du modèles). Ensuite, les propriétés homogènes du béton sont déterminées en utilisant le schéma de Mori-Tanaka à un deuxième niveau (Figure 3), où la matrice représente la pâte de ciment homogénéisée au premier niveau et les inclusions sont le sable et les granulats.

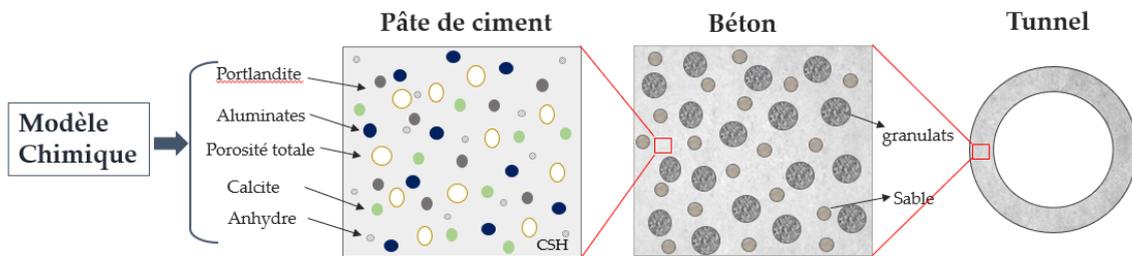


Figure 3 : Schéma du modèle multi-échelle THCM développé pour l'étude de la durabilité de tunnels en béton de stockage des déchets radioactifs.

IV. APPLICATIONS DU MODELE

A. Essai de lixiviation en température

L'essai de lixiviation du calcium réalisé par (Peycelon et al., 2006) sur des échantillons de pâte de ciment CEMI a été modélisé en condition saturée et à différentes températures (25°C, 50°C et 85°C). Les données d'entrée du modèle sont : la minéralogie du ciment, rapport E/C, température maximale, degré de saturation. Les équations (1),(2),(3) et (4) du modèle sont résolues à l'aide d'une approche itérative par la méthode classique des éléments finis et un schéma implicite pour le temps et l'espace. La quantité de calcium libérée a été mesurée expérimentalement et comparée aux résultats des simulations numériques à différentes températures (Figure 4). Les résultats numériques sont cohérents avec les résultats expérimentaux. L'effet de la température est bien reproduit, la quantité de calcium lixivié augmente avec la température. Une validation plus complète du modèle chimique pour la lixiviation et la carbonatation est disponible dans (Ibrahim et al., 2024).

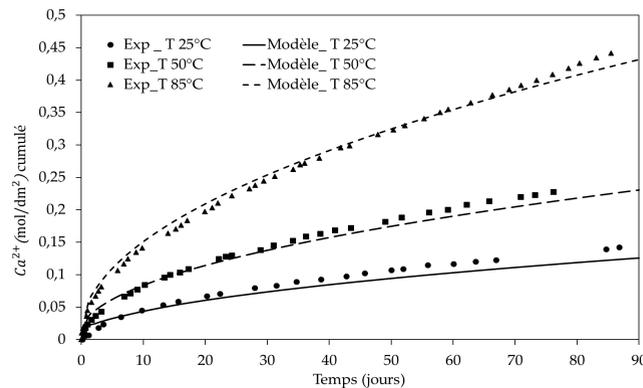


Figure 4: Comparaison des résultats expérimentaux de (Peycelon et al., 2006) avec les résultats numériques de calcium cumulé en fonction du temps, à différentes températures.

La Figure 5 montre les profils simulés à trois échéances successives de la porosité et les profils du calcium solide total dans la matrice du ciment en cours de décalcification à 25°C. Les profils de porosité montrent l'influence de la lixiviation du calcium sur la microstructure. L'augmentation de la porosité est due à la dissolution des hydrates, en particulier de la portlandite. Les profils de calcium en phase solide mettent en évidence les zones où la décalcification est la plus importante.

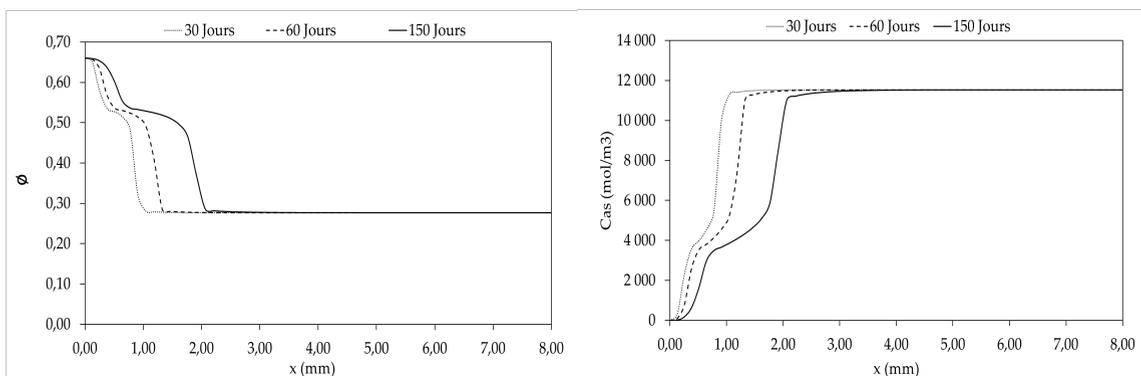


Figure 5: Simulation des profils du porosité et les profils du calcium solide total à différentes dates de décalcifications à 25°C, l'abscisse correspond à la distance par rapport au bord de l'échantillon en contact avec le bain de conservation des échantillons maintenu à pH 7

La caractérisation des propriétés mécaniques des matériaux dégradés peut être réalisée soit par des essais de micro dureté, soit sur des matériaux entièrement dégradés, soit par une analyse inverse sur échantillons partiellement dégradés. La Figure 6 présente une comparaison entre le modèle d'homogénéisation de la pâte et un test de micro dureté réalisé par (Danèse, 1997). Le schéma d'homogénéisation élastique choisi permet de prédire de façon relativement réaliste les propriétés élastiques du matériau en fonction de sa composition chimique.

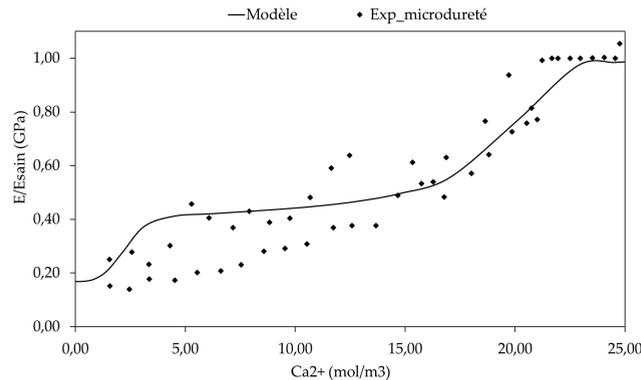


Figure 6 : Calcul du module de Young de la pâte en fonction du calcium en solution prédite par le schéma d'homogénéisation de Mori-Tanaka et comparé aux points expérimentaux d'essai de micro dureté de (Danèse, 1997)

B. Application au calcul d'un tunnel

Ce modèle THCM a été appliqué pour modéliser un tunnel de stockage de déchets nucléaires MA-VL (moyenne activité vie longue). Ce tunnel est à 500m de profondeur, il subit la carbonatation atmosphérique à l'intrados et une décalcification couplée à une carbonatation liquide à l'extrados due au contact avec l'eau du milieu géologique saturé. Les figures ci-dessous représentent les calculs après un million d'années de dégradation chimique sur le profil de 0.5 m d'épaisseur d'un voussoir en béton. Une légère augmentation du module de Young est remarquée du côté du tunnel exposé à la carbonatation en raison de la précipitation de calcite de ce côté-là. Tandis que de l'autre côté du voussoir, en contact avec le sol, le module de Young diminue suite à la dissolution des hydrates (Figure 7).

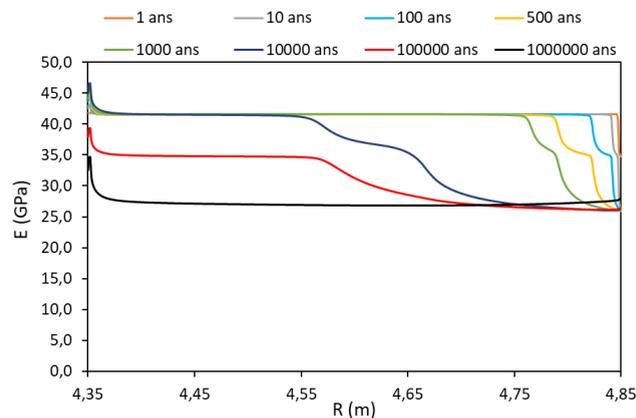


Figure 7: Prédiction de l'évolution du module de Young du béton d'un voussoir du tunnel à différents temps de dégradation chimique

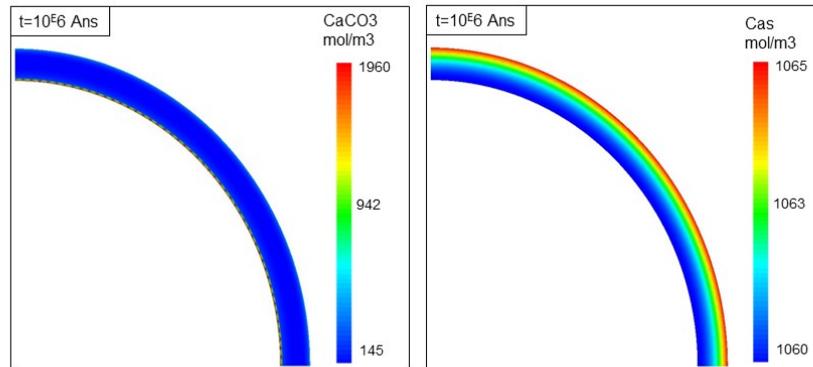


Figure 8: Champs de calcite précipité et de calcium solide total à 1 000 000 ans, projeté sur le maillage destiné au calcul mécanique du tunnel de l'Andra

V. CONCLUSION

Le modèle thermo-hydro-chemo-mécanique (THCM) présenté dans cet article, permet de coupler la lixiviation du calcium et la carbonatation de la pâte de ciment. Une loi d'évolution a été développée pour décrire à la fois l'équilibre thermodynamique des hydrates du ciment avec la solution poreuse, en prenant en compte la variété minéralogie du ciment, l'effet de la température et la dissolution progressive des hydrates. Les équations de ce modèle ont été implémentées dans le code aux éléments finis Cast3M. Ce modèle permet de prédire les variations de porosité, du degré de saturation, de la quantité d'hydrates résiduels, ainsi que celles de la profondeur de carbonatation et de la lixiviation du calcium. Un schéma d'homogénéisation mécanique utilise les volumes des phases calculées par le modèle chimique, il permet de prédire les propriétés élastiques du béton à chaque étape de dégradation. L'intérêt de ce modèle est qu'il est adaptable pour modéliser différentes structures, différents types de ciments et il est utilisable pour faire des prédictions sur des longues périodes pour un coût numérique raisonnable comparé aux codes géochimiques classiques. Ce modèle sera utilisé par la suite dans un contexte poro-mécanique pour le calcul de la tenue mécanique à très long terme des tunnels de l'Andra.

REFERENCES

- Adenot, F., 1992. Durabilité du béton : Caractérisation et modélisation des processus physiques et chimiques de dégradation du ciment.
- Bes, T., 2019. Etude du comportement des bétons Bas-pH sous sollicitations chimiques.
- Chang, C.-F., Chen, J.-W., 2005. Strength and Elastic Modulus of Carbonated Concrete. *MJ* 102, 315–321. <https://doi.org/10.14359/14710>
- Danèse, S., 1997. Etude du couplage fissuration-dégradation chimique des bétons : fissure modèle sur pâte de ciment. Projet de fin d'études, ENSAIS, Strasbourg, France, 57p.
- Gerard, B., 1996. Contribution des couplages mécanique-chimie-transfert dans la tenue à long terme des ouvrages de stockage de déchets radioactifs 403.

- Ghorbanbeigi, H., Shen, W., Yurtdas, I., Shao, J., 2016. A micromechanics-based model for concrete materials subjected to carbonation. *Num Anal Meth Geomechanics* 40, 1203–1218. <https://doi.org/10.1002/nag.2479>
- Ibrahim, L., Lacrière, L., Vidal, T., Sellier, A., 2024. Model reduction for reactive transport in transient thermo-hydro conditions. *A soumettre*.
- Jacques, D., Simunek, J., Jirka, Mallants, D., Van Genuchten, M., Yu, Li, 2011. A coupled reactive transport model for contaminant leaching from cementitious waste matrices accounting for solid phase alterations.
- Le Bellégo, C., Pijaudier-Cabot, G., Gérard, B., Dubé, J.-F., Molez, L., 2003. Coupled Mechanical and Chemical Damage in Calcium Leached Cementitious Structures. *J. Eng. Mech.* 129, 333–341. [https://doi.org/10.1061/\(ASCE\)0733-9399\(2003\)129:3\(333\)](https://doi.org/10.1061/(ASCE)0733-9399(2003)129:3(333))
- Lothenbach, B., Matschei, T., Möschner, G., Glasser, F.P., 2008. Thermodynamic modelling of the effect of temperature on the hydration and porosity of Portland cement. *Cement and Concrete Research* 38, 1–18. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2007.08.017>
- Mori, T., Tanaka, K., 1973. Average stress in matrix and average elastic energy of materials with misfitting inclusions. *Acta Metallurgica* 21, 571–574.
- Patel, R.A., Churakov, S.V., Prasianakis, N.I., 2021. A multi-level pore scale reactive transport model for the investigation of combined leaching and carbonation of cement paste. *Cement and Concrete Composites* 115, 103831. <https://doi.org/10.1016/j.cemconcomp.2020.103831>
- Peycelon, H., Blanc, C., Mazoin, C., 2006. Long-term behaviour of concrete Influence of temperature and cement binders on the degradation (decalcification/hydrolysis) in saturated conditions. *Revue européenne de génie civil* 10, 1107–1125. <https://doi.org/10.3166/regc.10.1107-1125>
- Phung, Q.T., Maes, N., Jacques, D., De Schutter, G., Ye, G., Perko, J., 2016. Modelling the carbonation of cement pastes under a CO₂ pressure gradient considering both diffusive and convective transport. *Construction and Building Materials* 114, 333–351. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2016.03.191>
- Seigneur, N., Kangni-Foli, E., Lagneau, V., Dauzères, A., Poyet, S., Bescop, P.L., L'Hôpital, E., d'Espinose de Lacaillière, J.-B., 2020. Predicting the atmospheric carbonation of cementitious materials using fully coupled two-phase reactive transport modelling. *Cement and Concrete Research* 130, 105966. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2019.105966>
- Sellier, A., Buffo-Lacrière, L., Gonnouni, M.E., Bourbon, X., 2011. Behavior of HPC nuclear waste disposal structures in leaching environment. *Nuclear Engineering and Design* 241, 402–414. <https://doi.org/10.1016/j.nucengdes.2010.11.002>
- Takla, I., 2010. Comportement Thermo-Hydro-Mécanique d'un ciment pétrolier sous l'effet du CO₂. Ph.D. thesis, Université de Lille 1 246.
- Tognazzi, C., 1998. Couplage fissuration - dégradation chimique.
- Ulm, F.-J., Heukamp, F.H., Germaine, J.T., 2002. Residual design strength of cement-based materials for nuclear waste storage systems. *Nuclear Engineering and Design* 211, 51–60.
- Urbonas, L., Leno, V., Heinz, D., 2016. Effect of carbonation in supercritical CO₂ on the properties of hardened cement paste of different alkalinity. *Construction and Building Materials* 123, 704–711. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2016.07.040>
- Wang, P., Mo, R., Zhou, X., Xu, J., Jin, Z., Zhao, T., 2021. A chemo-thermo-damage-transport model for concrete subjected to combined chloride-sulfate attack considering the effect of calcium leaching. *Construction and Building Materials* 306, 124918.

Wilson, J.C., Benbow, S., Metcalfe, R., 2018. Reactive transport modelling of a cement backfill for radioactive waste disposal. *Cement and Concrete Research* 111, 81–93.

Etude de l'effet de la pression de cure sur la microstructure d'un limon stabilisé à la chaux et au liant hydraulique par tomographie *in situ* à rayons X.

Lucile Pigeot^{1,2}

¹Nantes Université, Ecole Centrale Nantes, CNRS, GeM, UMR 6183, F-44000, Nantes, France

²GeoCoD, Cerema Méditerranée, 13290, Aix-en-Provence, France

RESUME Le présent article propose un développement expérimental qui vise à estimer l'effet d'une pression de confinement sur un sol limoneux stabilisé avec un traitement mixte à la chaux et au liant hydraulique RocAS pendant sa cure. En effet, dans les projets d'infrastructures linéaires actuels, les sols stabilisés peuvent être soumis à des contraintes importantes au sein d'ouvrages géotechniques. Afin de montrer que ces conditions de cure favorisent l'hydratation des phases cimentaires, une étude comparative est menée sur des éprouvettes ayant eu une cure de 28 jours avec ou sans pression de confinement. Des analyses de diffractions des rayons X, couramment employées pour suivre l'apparition des phases hydratées au sein des matériaux cimentaires, ne permettent pas de conclure quant à l'évolution de l'hydratation dans le sol stabilisé. En outre, des essais de porosimétrie par intrusion de mercure montrent qu'une cure sous contrainte entraîne une apparition plus précoce de la nano-porosité associée aux hydrates. Une utilisation originale d'imageries par tomographie *in situ* à rayons X offre la possibilité d'appréhender l'évolution de la composition et de la microstructure au sein du matériau en cure confinée. Elle est illustrée par une diminution du volume des particules anhydres et par un affinement de la porosité.

Mots-clefs sol stabilisé, tomographie (*in situ*) à rayons X, porosimétrie par intrusion de mercure, cure sous contrainte, micromorphologie

I. INTRODUCTION

L'optimisation du volume des déblais et remblais est un défi majeur de tous les projets linéaires actuels (lignes ferroviaires, routes et canaux). C'est dans cette optique que des solutions innovantes se développent afin de pouvoir réutiliser le sol en place même s'il ne possède pas les performances mécaniques requises. Il est souvent nécessaire d'associer une amélioration chimique (par traitement) et mécanique (par compactage). Généralement les sols sont préalablement stabilisés à la chaux pour améliorer leur maniabilité sur le chantier, ensuite l'ajout de liant hydraulique et le compactage leur confère davantage de rigidité, de cohésion et de résistance. Dans un objectif de réduction de l'impact carbone des projets linéaires, les liants utilisés sont désormais composés de ciment Portland associé à des additions minérales (laitier de haut fourneau, cendres volantes, etc...). Afin d'optimiser les dosages en traitement et les densités à atteindre, des campagnes expérimentales sont menées sur des éprouvettes reconstituées en laboratoire ou prélevées sur des remblais expérimentaux. Elles permettent de s'assurer que les performances mécaniques requises

sont atteintes après les temps de cure définis (Bell, 1996). Les conditions de cure en laboratoire décrites dans les normes actuelles permettent de simuler correctement une cure dans un remblai de faible hauteur (LCPC/SETRA, 2000). Par ailleurs, dans le cas des remblais de grande hauteur (> 10 m), il est nécessaire d'appliquer en laboratoire, sur l'éprouvette subissant une cure, une pression de confinement correspondant aux contraintes *in situ* à cette profondeur.

Le projet de recherche se concentre sur l'évolution d'éprouvettes de limon stabilisées par 1 % de chaux et 5 % de liant hydraulique RocAS lorsqu'elles sont soumises ou non à une pression de confinement de 300 kPa durant leur cure. Un gain mécanique d'environ 15 %, apporté par le confinement isotrope lors de la cure, a été quantifié au moyen d'essais de résonance en torsion, non présentés ici.

Avec l'objectif de vérifier cette hypothèse, une étude comparative a été menée sur des éprouvettes ayant eu une cure de 28 jours avec ou sans pression de confinement. Elle se concentre dans un premier temps sur l'avancée des réactions d'hydratation par une quantification des réactifs et des produits présents dans le sol limoneux en fonction du temps. Dans un deuxième temps, l'étude cherche à montrer l'impact de l'hydratation sur la microstructure du sol. Pour ce faire, des imageries de tomographie *in situ* à rayons X sont exploitées pour appréhender aussi bien l'évolution de la composition que de la microstructure. En effet, le principe de tomodensimétrie qui régit l'analyse tomographique résulte en une distinction d'une part des phases de haute densité (les anhydres) et d'autre part de densité nulle (la porosité) (Nguyen et al., 2019). Les résultats de ces essais sont complétés et comparés à ceux donnés par des essais de diffractions des rayons X (DRX) et des essais de porosimétrie par intrusion de mercure.

II. MATERIAUX

A. Sol et traitement

Le matériau utilisé est un sol limoneux prélevé dans le Nord de la France. Une fois au laboratoire, il est tamisé à 0,2 mm puis quarté. Une analyse granulométrique réalisée par diffraction laser sur le tamisat a montré que 80 % des grains étaient inférieurs à 0,08 mm et que le diamètre maximal des grains était de 0,135 mm (ISO 13320:2020, 2020). Les essais d'identification du sol réalisés en laboratoire ont donné les résultats de la valeur au bleu de Méthylène (VBS = 2,2 g/100 g) (NF P94-068, 1998) et les limites d'Atterberg (Limite de liquidité LL = 28 % ; Limite de plasticité LP = 21 % ; Indice de plasticité $I_p = 7$) (NF EN ISO 17892-12, 2018). De ces paramètres résultent une classification du sol en un limon (M) de faible plasticité (L) (ASTM D2488, 2020).

Sur site, la première étape du traitement du sol consiste à en augmenter le pH en incorporant 1 % de chaux. La chaux vive de l'étude est composée à 90 % de chaux vive (CaO). Son ajout favorise la floculation, améliore la maniabilité du sol et diminue sa teneur en eau, modifiant ainsi sa texture et le rendant plus propice à un compactage efficace. Cette étape alcalinisante est essentielle pour optimiser l'efficacité du traitement ultérieur au liant hydraulique. Ce liant, ajouté à hauteur de 5 %, a une composition semblable à un CEM III/A, c'est-à-dire 35 % de ciment Portland et 65 % de laitier de haut fourneau. Plus exactement, une analyse minéralogique a indiqué qu'il contenait du quartz, de l'alite (C₃S), de la bélite (C₂S), des aluminates (C₃A), de la brownmillerite (C₄AF), de la calcite, de la Portlandite, du gypse et de l'anhydrite. Le liant renforce les propriétés mécaniques du sol en

formant des coques cimentaires autour des agrégats de sol préalablement agglomérés par la chaux. Ces coques sont composées d'hydrates provenant de la réaction de l'eau avec les anhydres cités ci-dessus. Ils ont été identifiés comme étant majoritairement de la Portlandite (C-H), des silicates de calcium hydratés (C-S-H), des aluminates de calcium hydratés (C-A-H), des aluminosilicates de calcium hydratés (C-A-S-H).

B. Confection des éprouvettes

La densité attribuée aux éprouvettes reconstituées en laboratoire a été déterminée au moyen d'essais Proctor normal effectués auparavant sur le mélange de limon humide, chaux et liant hydraulique (NF P94-093, 2014). Le résultat des essais est présenté dans la Figure 1, sous la forme d'un graphique de la densité sèche [Mg/m³] en fonction de la teneur en eau [%]. Les cinq points de la courbe Proctor correspondent à cinq échantillons compactés à des teneurs en eau différentes. Les courbes tracées en gris correspondent à des degrés de saturation S_r [%] de 100 %, 90 % et 80 %. Pour le sol stabilisé, la densité sèche optimale mesurée ($\rho_{dOPN} = 1,75 \text{ Mg/m}^3$) à la teneur en eau optimale $w_{OPN} = 17,5 \%$ est représentée par un carré bleu.

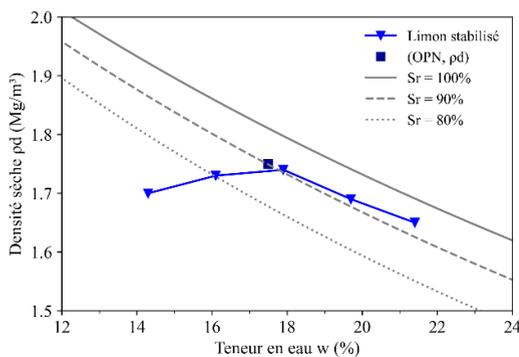


FIGURE 1. Courbe Proctor et lignes de saturation.

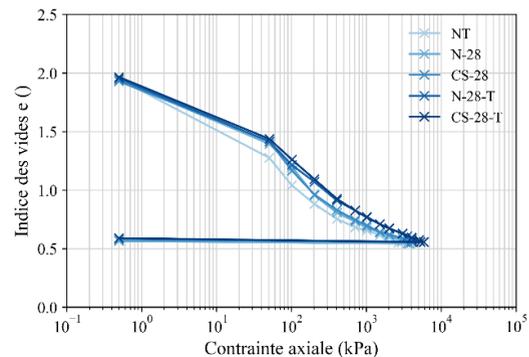


FIGURE 2. Courbes de compactage.

Le mélange est compacté statiquement en une seule couche (Serratrice, 2018) à une teneur en eau $w_{OPN} + 1 \%$ qui correspond à la teneur en eau optimale déterminée par essai Proctor, à laquelle est ajouté 1% pour compenser l'eau qui sera consommée par la chaux. Les éprouvettes de 50 mm de diamètre et de 100 mm de hauteur sont confectionnées pour atteindre 96 % de la densité sèche maximale (19,9 KN/m³). Ce type de compactage est rapide et permet une bonne productibilité des éprouvettes, ce qui est illustré par le graphique de l'indice de vide e [] en fonction de la contrainte axiale [kPa] de la Figure 2. L'indice des vides moyen des 5 éprouvettes est $e = 0,58$ et il varie entre 0,55 et 0,59 avec un écart-type de 0,014. Le Tableau 1 indique les conditions de cure des éprouvettes et les essais effectués.

TABLEAU 1. Description des éprouvettes reconstituées.

Éprouvette	NT	N-28	C-28	N-28-T	C-28-T
Temps / Pression de cure	-	28 j / P_{atm}	28 j / 300 kPa	28 j / P_{atm}	28 / 300 kPa
Essai	PIM-DRX			Tomographie aux rayons X	

*NT : Non traité ; N : cure normalisée ; CS : Curing stress ; P_{atm} : Pression atmosphérique ; T : tomographie à rayons X.

III. METHODES EXPERIMENTALES

A. Diffraction des rayons X

La diffraction des rayons X (DRX) permet d'identifier les phases cristallisées de matériaux sous forme de poudre en utilisant un faisceau de rayons X réfléchi dans des directions spécifiques lorsqu'il rencontre un cristal. Chaque phase cristalline correspond à un ensemble spécifique de pics en termes d'angle et d'intensité qui sont empiriquement liés aux distances atomiques par la loi de Bragg. Les essais ont été effectués sur des poudres provenant d'éprouvettes de sol traité reconstituées en laboratoire, séchées, broyées puis tamisées à 80 µm sur une gamme d'analyse de 7 à 70 [°2θ].

B. Porosimétrie par intrusion de mercure

Les essais de porosimétrie par intrusion de mercure (PIM) rendent possible l'investigation de la porosité comprise entre 3 nm et 100 µm. Ils consistent à injecter du mercure à pression croissante afin de remplir la porosité accessible d'un cube de 15*15*15 mm³ prélevé dans une éprouvette puis séché (ISO 15901-1:2016, 2016). Chaque pression peut être associée à un diamètre de taille de pores (D) [m] avec l'équation de Washburn (Washburn, 1921) où P est la pression d'injection du mercure [MPa], γ est la tension superficielle du mercure dans le vide (0,485 N/m) et θ est l'angle de contact entre le mercure et le solide (fixé à 130°) :

$$D = \frac{4\gamma \cos \theta}{P} \quad (1)$$

C. Tomographie à rayons X

L'imagerie par tomographie à rayons X est une méthode non destructive et non invasive qui fournit des informations sur la structure interne d'un objet. Elle est régie par le principe de l'atténuation différentielle des rayons X. Ils interagissent avec les composants en fonction de leur densité : ils sont diffusés, absorbés ou transmis. Chaque point de mesure correspond à un coefficient d'atténuation linéique qui est associé à un pixel. Ces pixels sont assemblés en matrices qui représentent des coupes 2D de l'objet. Un niveau de gris (NDG) est attribué à chaque pixel en fonction de la densité de la matière qu'il représente. Les matériaux de forte densité ont un NDG élevé, tandis que les matériaux de faible densité ont un NDG faible selon le principe de la tomodynamométrie. Les scans ont été réalisés avec le tomographe du laboratoire 3SR de l'Université de Grenoble qui a la particularité de pouvoir être utilisé avec un chargement, par exemple en appliquant une pression de confinement autour de l'échantillon à observer. Les essais présentés ont été réalisés dans le cadre d'essais de faisabilité, ce qui explique qu'il n'y ait qu'une éprouvette par condition de cure.

Les scans, d'une durée de 6 heures, consistent en une rotation de l'éprouvette dans le tomographe selon un pas d'angle de 0,25°. L'énergie d'acquisition est déterminée en fonction de la taille de l'échantillon (100 keV). La taille des pixels, 30 µm, est imposée par la taille des échantillons et la durée de l'analyse. Dans cette étude, il est intéressant de pouvoir disposer d'une éprouvette de même taille que celles testées lors d'essais de mécanique des sols standards, c'est-à-dire 50 mm de diamètre et 100 mm de hauteur. Pour tenir compte de la taille inhabituelle des objets à observer, il a fallu fabriquer une cellule sur mesure en plexiglas.

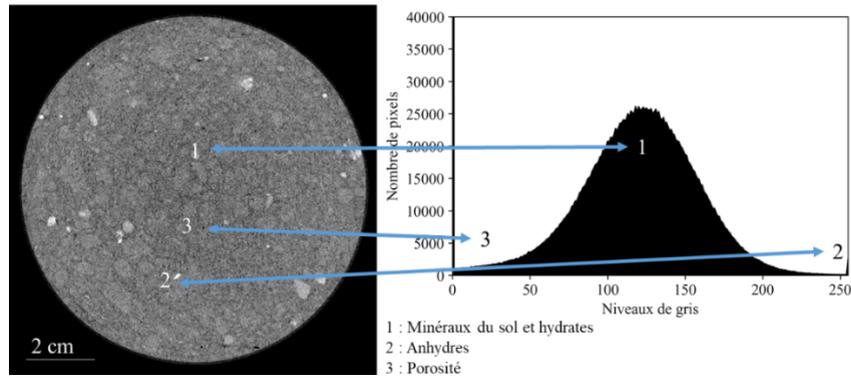


FIGURE 3. Coupe horizontale de l'éprouvette N-28-T et histogramme en niveau de gris correspondant.

Une coupe horizontale de l'éprouvette N-28-T en 8 bit est présentée dans la Figure 3. En l'associant à son histogramme en niveaux de gris (255 NDG) il est possible de distinguer la matrice de sol et les hydrates en gris, la porosité en noir et les grains anhydres en blanc. Les scans représentent un ensemble de 3500 coupes horizontales qu'il est nécessaire d'assembler pour créer des « images » qui seront ensuite traitées. Ces images reconstruites, d'un volume initial de 22,8 Go, sont converties en 8 bit afin de faciliter leur traitement. Cela signifie que le nombre de niveaux de gris passe de 65535 à 255. L'objectif final est d'isoler les pixels correspondants aux grains anhydres et à la porosité, respectivement les NDG les plus élevés et les plus faibles, d'après leur densité. En effet, les minéraux du sol limoneux et les hydrates ont des densités semblables, ce qui ne permet pas leur distinction.

Pour ce faire, le logiciel Fiji (Schindelin et al., 2012) et la bibliothèque Python SPAM (Software for the Practical Analysis of Material) (Stamati et al., 2020) sont utilisés conjointement. Les étapes du traitement sont les suivantes :

- Des parallélépipèdes de $3 \times 3 \times 9$ cm³ sont extraits au centre des éprouvettes cylindriques. Ces volumes sont communément appelés des ROI (Region Of Interest) en analyse d'images. Ils ont un volume bien défini qui permet de calculer précisément les fractions volumiques des composants le constituant (en l'occurrence pores et particules anhydres dans l'étude).
- Pour faciliter la distinction des différentes phases, la luminosité et le contraste des images sont ajustés puis elles sont filtrées à l'aide d'un filtre gaussien avec un rayon d'application $\sigma = 1$. Il participe à l'amélioration du contraste entre un pixel et son voisinage, ce qui rend les contours des objets à observer plus nets.
- Les images sont ensuite binarisées, c'est-à-dire que les pixels se voient attribuer une valeur de 0 ou 255 NDG. Il existe plusieurs modes de binarisation proposés par Fiji qui affectent différemment les valeurs 0 et 255 aux pixels. Par conséquent, le choix du mode a un impact direct sur le volume de particules obtenu à la fin du traitement.
- Le plugging BoneJ développé pour Fiji permet d'analyser les particules en 3D (Domander et al., 2021). Le choix de la taille des particules à détecter est un paramètre important dans la variabilité des résultats de porosité et de volume de grains anhydres. Cette étape permet de produire des images .tif dans lesquelles les particules sont identifiées et associées à des volumes. Des histogrammes de distributions peuvent être produits à partir de ces données.

IV. RESULTATS

A. Evolution de la composition du sol

L'augmentation des propriétés mécaniques des sols stabilisés est associée à l'évolution des réactions d'hydratation (Bell, 1996). Dans les matériaux cimentaires, l'évolution de la quantité d'anhydres et d'hydrates est usuellement mesurée par des essais de diffraction des rayons X. Sur du « soil mixing », il a été montré que la cure sous pression favorisait les cinétiques d'hydratation, notamment en favorisant l'accès des anhydres à l'eau (Rabbani et al., 2019).

La Figure 4 présente les résultats des analyses par DRX réalisés sur le limon naturel et sur les éprouvettes N-28 et C-28. Les diffractogrammes sont présentés dans un graphique de l'intensité [] en fonction de l'angle [2θ]. L'analyse effectuée sur le limon non traité a permis d'identifier les minéraux qui le composent : du quartz, des phases carbonatées (calcite et dolomite), des feldspaths sous forme d'albite, de la muscovite, de la kaolinite, du clinocllore et du microcline. La présence d'hématite a également été détectée.

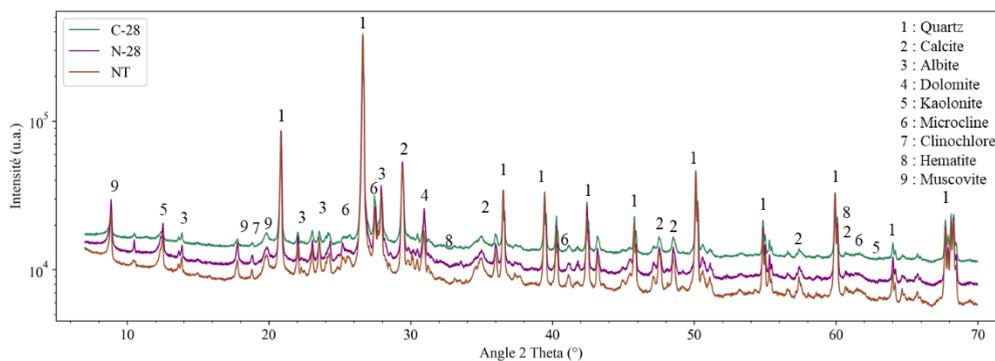


FIGURE 4. Diffractogrammes des échantillons de sol naturel (NT) et de sol stabilisé après 28 jours de cure (cure normalisée : N-28 et cure confinée : C-28).

Les diffractogrammes obtenus pour les deux échantillons de sol stabilisé après 28 jours de cure (N-28, C-28) sont identiques à ceux du sol naturel (NT). Après cette période de cure, des phases anhydres et hydratées sont censées coexister au sein du sol. Ces minéraux correspondent d'une part, à ceux identifiés dans le liant et d'autre part, aux hydrates formés par leur réaction avec l'eau contenue dans le sol. La détection des phases hydratées au sein des sols stabilisés est souvent ardue, d'autant plus quand le dosage de traitement est inférieur à 10 % (Bouras, 2020), néanmoins les auteurs espéraient que la cure confinée permette d'en identifier certaines. La difficulté à détecter les hydrates dans les sols stabilisés repose principalement sur leur faible cristallisation, car ils sont généralement présents sous forme de gels. Une quantité de traitement plus importante, à hauteur de celle qui est ajoutée en « soil mixing » (jusqu'à 30 % de liants) permettrait sûrement d'observer l'impact de la pression de cure sur l'hydratation.

L'utilisation de la tomographie à rayons X a permis de pallier ce manque expérimental en rendant possible le suivi des phases anhydres qui se distinguent par leur haute densité. Comme il n'est pas possible d'observer la formation des hydrates (leur densité étant similaire à celle des composés du sol limoneux), les réactions d'hydratation sont appréhendées de manière indirecte par la diminution du pourcentage volumique des particules anhydres visibles. Les étapes du processus développées en III.C. conduisent à la comparaison de la distribution granulatoire des particules

anhydres au sein des deux éprouvettes (Figure 5). Les histogrammes sont présentés dans des graphiques du pourcentage volumique des grains [%] en fonction de leur rayon équivalent [μm]. La résolution en voxels imposée par l'imagerie ne permet d'observer qu'une partie des grains anhydres présents dans l'éprouvette. Ont été sélectionnées uniquement les particules supérieures à $0,00027 \text{ mm}^3$ (10 voxels), afin de limiter celles qui correspondraient vraisemblablement à du bruit.

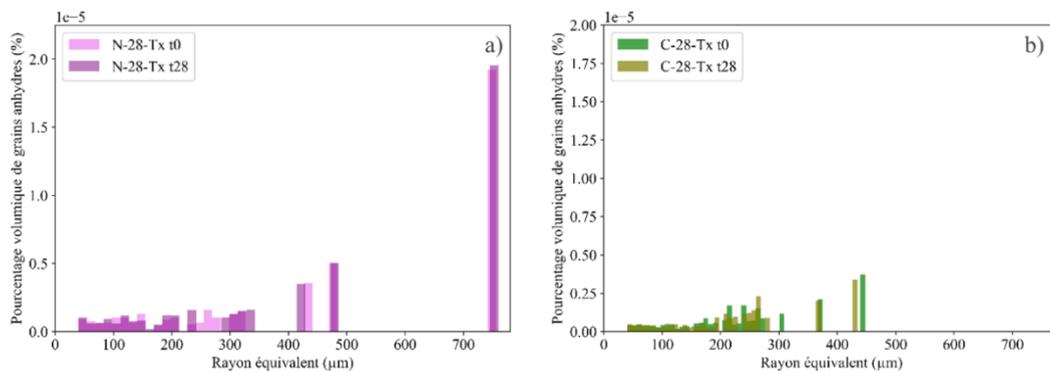


FIGURE 5. Distribution granulaire des particules anhydres en fonction de leur rayon équivalent au sein des éprouvettes N-28-T (a) et C-28-T (b), à 0 et 28 jours.

La comparaison des distributions révèle que le pourcentage volumique des anhydres a davantage diminué au sein de l'éprouvette confinée. De surcroît, même avant le premier scan, le pourcentage d'anhydres est deux fois plus faible dans C-28-T que N-28-T. Ceci met en évidence une hydratation rapide des grains anhydres avec une cinétique moindre pendant les 28 jours (t_{28}) de cure de N-28-T que dans la première heure de cure (t_0) de C-28-T. Dans les deux éprouvettes, le nombre de particules détectées à t_{28} est plus important qu'à t_0 , ce qui pourrait signifier que certaines particules se sont fragmentées pendant l'hydratation.

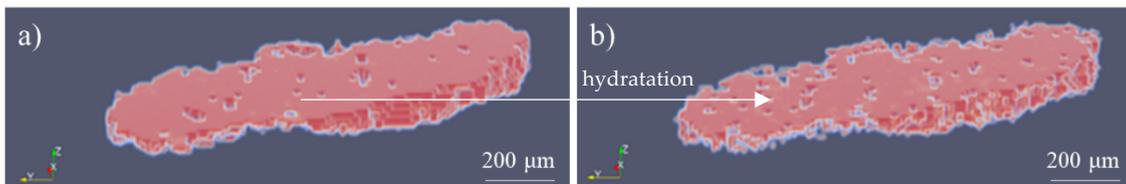


FIGURE 6. Évolution de la morphologie d'une particule anhydre entre le scan t_0 et t_{28} (épreuve C-28-T).

La Figure 6 illustre l'hydratation d'une particule anhydre qui se situe au sein de l'éprouvette CS-28-T. L'image a) montre une représentation 3D de cette particule après le premier scan et l'image b) après 28 jours de cure confinée. Visuellement, la particule à t_{28} semble être "érodée" et des creux se sont développés sur sa surface. Sachant que la tomographie permet de faire des distinctions par la densité des phases, ces observations semblent indiquer que des phases non hydratées de haute densité se sont transformées en des phases hydratées de plus faible densité. Ces hypothèses coïncident avec le fait que les particules anhydres s'hydratent toujours de l'extérieur vers le centre, au contact de l'eau (Le Chatelier, 1887).

B. Evolution de la porosité

A l'instar de l'évolution de la composition du sol liée à l'avancement des réactions d'hydratation, le réarrangement micro-morphologique entraîné par le traitement joue un rôle majeur dans l'amélioration de ses propriétés mécaniques. Les essais de PIM et les imageries tomographiques fournissent une estimation qualitative de la distribution porale au sein des éprouvettes. Néanmoins les essais de PIM ont tendance à surestimer le volume de la nano-porosité. Ceci est dû d'une part à l'utilisation de l'Eq. 1 qui donne des résultats plus ou moins cohérents en fonction de la géométrie du pore investigué (Diamond, 2000). Et d'autre part, la pression de mercure nécessaire (jusqu'à 430 MPa) pour atteindre les plus petits pores peut déformer et endommager la matrice du matériau (Feldman, 1984). La tomographie aux rayons X telle qu'utilisée dans l'étude correspond à une taille de pixel de 0,03 mm et le volume des pores mesuré dépend de la méthode de traitement de l'image. C'est-à-dire que les plages de mesure des deux essais ne se recoupent pas. La mesure de porosité totale d'une éprouvette est d'environ 37 %, les essais de porosimétrie par intrusion de mercure estiment une porosité d'environ 30 % [0,001 – 10 μm] et la tomographie d'environ 1,2 % [$> 30 \mu\text{m}$].

Les résultats des essais de PIM sont présentés dans la Figure 7. L'essai réalisé sur l'échantillon de limon non traité est représenté en marron, sa porosité a une distribution bi-modale et est majoritairement située entre 0,1 et 3 μm . Les courbes de distribution porale des éprouvettes N-28 (en violet) et C-28 (en vert) illustrent que la cinétique d'évolution de la porosité associée à l'hydratation est favorisée par l'application de la pression de cure de 300 kPa durant les 28 premiers jours. En effet, au sein de l'échantillon C-28 dès 28 jours de cure, la nano-porosité se développe au détriment de la micro-porosité.

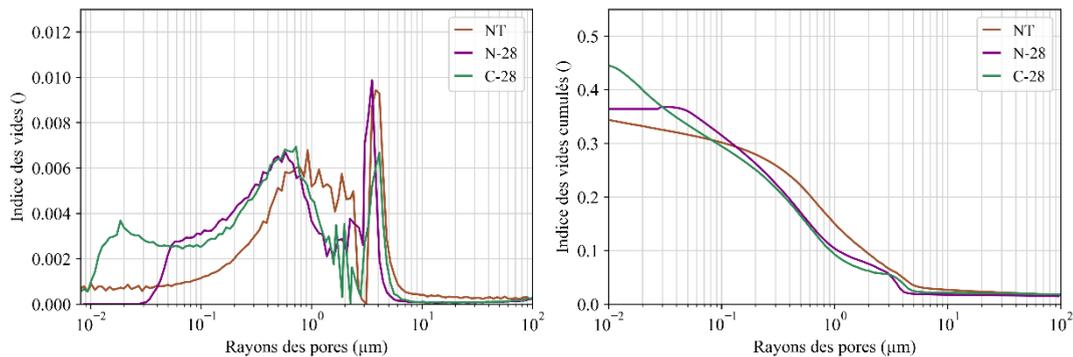


FIGURE 7. Distribution porale et indice des vides cumulés obtenus par les essais PIM.

L'analyse particulaire 3D réalisée sur les pores identifiés sur les images de tomographie permet l'obtention de distributions porales présentées sous forme d'histogrammes d'indices de vides en fonction du rayon équivalent des particules (Figure 8). Les barres vertes correspondent à l'éprouvette ayant eu une cure à pression atmosphérique (N-28-T) et les violette à l'éprouvette ayant eu une cure confinée (C-28-T). Globalement, pour la même éprouvette, la porosité diminue et la courbe se décale vers des rayons de pores équivalents plus petits. La différence entre les courbes, correspondant au scan à t_0 , des deux éprouvettes illustre le fait que la pression de cure a un impact sur l'hydratation dès le début de la cure.

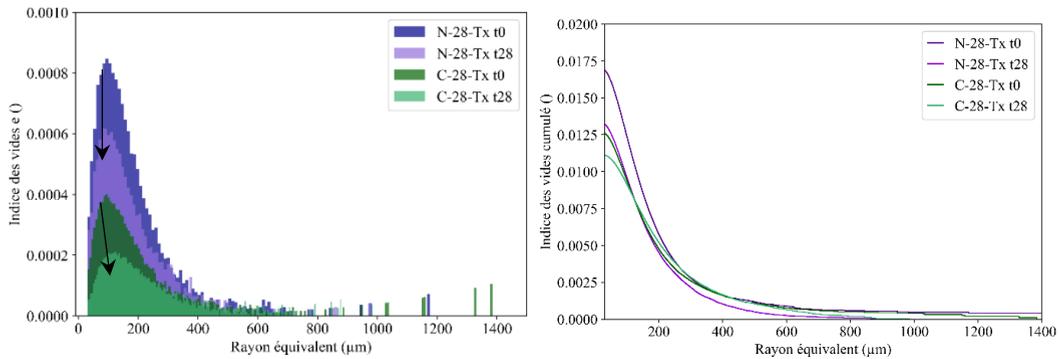


FIGURE 8. Distributions porales d'après les imageries de tomographie à rayons X.

V. CONCLUSION

Deux méthodes d'analyse classiques (diffraction des rayons X et porosimétrie par intrusion de mercure) ont été utilisées en parallèle d'une méthode d'analyse plus originale (tomographie à rayons X) dans l'objectif de comprendre le gain mécanique, dans un sol traité, apporté par une cure sous contrainte de 28 jours. Les principaux résultats sont les suivants :

- Les essais de DRX ne permettent de distinguer ni les phases anhydres de la chaux et du liant, ni les phases hydratées présentes dans les éprouvettes de limon traité même après une cure confinée.
- La tomographie à rayons X rend possible la visualisation de phases anhydres probablement associées à l'ajout de chaux. Le nombre et la fraction volumiques de ces particules anhydres sont inférieurs dans l'éprouvette ayant une cure confinée.
- Les essais de porosimétrie par intrusion de mercure et les imageries tomographiques montrent que les distributions porales sont impactées par l'application d'une pression de confinement lors de la cure.
- Une famille de nano-pores n'est identifiée par PIM que dans l'éprouvette sous pression. Elle peut être associée à la formation des coques cimentaires autour des agrégats, qui est plus précoce en cure confinée.
- La tomographie montre un affinement des pores mesurés entre 0 et 28 jours de cure, avec davantage de pores détectés en cure normalisée.
- Les essais de faisabilité présentés montrent que la tomographie *in situ* aux rayons X est une méthode adaptée pour suivre la cure sous pression d'un limon stabilisé à la chaux et au liant hydraulique d'un point de vue de sa composition et de sa morphologie.

VI. REMERCIEMENTS

Le travail de doctorat est financé par l'Ecole Centrale de Nantes et EGIS Géotechnique SE. Les essais de tomographie ont été réalisés au laboratoire 3SR de Grenoble grâce à l'implication de Nicolas Lenoir. L'exploitation des données de tomographie a été facilitée par l'équipe du logiciel SPAM et par l'aide de Michel Vanwollegem. Les institutions ainsi que les personnes ayant contribué à ce travail sont chaleureusement remerciées.

VII. REFERENCES

- ASTM D2488, 2020. Practice for Classification of Soils for Engineering Purposes (Unified Soil Classification System). ASTM International, West Conshohocken, PA, USA.
<https://doi.org/10.1520/D2487-17E01>
- Bell, F.G., 1996. Lime stabilization of clay minerals and soils. *Engineering Geology* 42, 223–237.
[https://doi.org/10.1016/0013-7952\(96\)00028-2](https://doi.org/10.1016/0013-7952(96)00028-2)
- Bouras, F., 2020. Le traitement de sols argileux : Approches physico-chimique et géotechnique (Doctoral dissertation). Université d'Orléans.
- Diamond, S., 2000. Mercury porosimetry: An inappropriate method for the measurement of pore size distributions in cement-based materials. *Cement and Concrete Research* 30, 1517–1525.
[https://doi.org/10.1016/S0008-8846\(00\)00370-7](https://doi.org/10.1016/S0008-8846(00)00370-7)
- Domander, R., Felder, A.A., Doube, M., 2021. BoneJ2 - refactoring established research software.
- Feldman, R.F., 1984. Pore structure damage in blended cements caused by mercury intrusion. *Journal of the American Ceramic Society* 67, 30–33.
- ISO 13320:2020, 2020. Particle size analysis—Laser diffraction methods.
- ISO 15901-1:2016, 2016. Evaluation de la distribution de taille des pores et la porosité des matériaux solides par porosimétrie à mercure et l'adsorption des gaz — Partie 1: Porosimétrie à mercure.
- LCPC/SETRA, 2000. Traitement des sols à la chaux et/ou aux liants hydrauliques. Application à la réalisation des remblais et des couches de forme. Guide de Traitement des sols (GTS) (No. Réf. D9924). LCPC.
- Le Chatelier, H., 1887. Recherches expérimentales sur la constitution des mortiers hydrauliques. Vve Ch. Dunod, édit. Paris.
- NF EN ISO 17892-12, 2018. Reconnaissance et essais géotechniques - Essais de laboratoire sur les sols - Partie 12 : détermination des limites de liquidité et de plasticité. Normes nationales et documents normatifs nationaux.
- NF P94-068, 1998. Sols : reconnaissance et essais - Mesure de la capacité d'adsorption de bleu de méthylène d'un sol ou d'un matériau rocheux - Détermination de la valeur de bleu de méthylène d'un sol ou d'un matériau rocheux par l'essai à la tache. Normes nationales et documents normatifs nationaux.
- NF P94-093, 2014. Sols : reconnaissance et essais - Détermination des références de compactage d'un matériau - Essai Proctor Normal - Essai Proctor modifié. Normes nationales et documents normatifs nationaux.
- Nguyen, T.T.H., Cui, Y.-J., Ferber, V., Herrier, G., Ozturk, T., Plier, F., Puiatti, D., Salager, S., Tang, A.M., 2019. Effect of freeze-thaw cycles on mechanical strength of lime-treated fine-grained soils. *Transportation Geotechnics* 21, 100281. <https://doi.org/10.1016/j.trgeo.2019.100281>
- Rabbani, P., Lajevardi, S.H., Tolooiyan, A., Daghigh, Y., Falah, M., 2019. Effect of Cutter Soil Mixing (CSM) method and curing pressures on the tensile strength of a treated soft clay. *Heliyon* 5, e02186. <https://doi.org/10.1016/j.heliyon.2019.e02186>
- Schindelin, J., Arganda-Carreras, I., Frise, E., Kaynig, V., Longair, M., Pietzsch, T., Preibisch, S., Rueden, C., Saalfeld, S., Schmid, B., Tinevez, J.-Y., White, D.J., Hartenstein, V., Eliceiri, K., Tomancak, P., Cardona, A., 2012. Fiji: an open-source platform for biological-image analysis. *Nature Methods* 9, 676–682. <https://doi.org/10.1038/nmeth.2019>
- Serratrice, J.-F., 2018. Apport expérimental de la méthode de compactage statique des sols au laboratoire. *Rev. Fr. Geotech. 1*. <https://doi.org/10.1051/geotech/2019001>
- Stamati, O., Andò, E., Roubin, E., Cailletaud, R., Wiebicke, M., Pinzon, G., Couture, C., Hurley, R., Caulk, R., Caillerie, D., Matsushima, T., Bésuelle, P., Bertoni, F., Arnaud, T., Laborin, A., Rorato, R., Sun, Y., Tengattini, A., Okubadejo, O., Colliat, J.-B., Saadatfar, M., Garcia, F., Papazoglou, C., Vego, I., Brisard, S., Dijkstra, J., Birmpilis, G., 2020. spam: Software for Practical Analysis of Materials. *JOSS* 5, 2286. <https://doi.org/10.21105/joss.02286>
- Washburn, E.W., 1921. The dynamics of capillary flow. *Physical review* 17, 273.

Optimisation des propriétés mécaniques et de l'impact environnemental de matériaux à base de terre crue stabilisée par un liant géopolymère pour des applications en travaux publics.

Younes FAREZ

CY Cergy Paris Université, Laboratoire de Mécanique et Matériaux du Génie Civil, EA4114, F-95000 Cergy-Pontoise, France

RESUME

Ce travail vise à développer de nouveaux matériaux à base de terre crue (TC) stabilisée au moyen d'un liant géopolymère pour des applications en travaux publics telles que les bordures. Le liant utilisé est à base de métakaolin (MK) et d'une solution alcaline composée de silicate de sodium et de l'hydroxyde de sodium. Afin d'optimiser les formulations vis-à-vis des résistances mécaniques attendues, un plan d'expériences de second degré de type matrice composite a été élaboré en variant trois rapports molaires : $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ (X) de 3 à 4 ; $\text{Na}_2\text{O}/\text{Al}_2\text{O}_3$ (Y) de 0.9 à 1.1 et $\text{H}_2\text{O}/\text{Na}_2\text{O}$ (Z) de 20 à 26. Quinze formulations ont été élaborées afin d'établir un modèle mathématique de second ordre reliant les résistances mécaniques aux paramètres d'entrée X, Y, et Z. Dans une première approche, le rapport massique métakaolin/terre crue (MK/TC) a été fixé à 0.33. Des éprouvettes prismatiques sont fabriquées et les propriétés physicochimiques et mécaniques sont déterminées. Les premières analyses ont montré que les formulations de rapport molaire $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ (X) élevé présentent de meilleures résistances mécaniques contrairement aux formulations de rapports $\text{H}_2\text{O}/\text{Na}_2\text{O}$ (Z) et $\text{Na}_2\text{O}/\text{Al}_2\text{O}_3$ (Y) élevés. Les résistances optimales en compression (22.5 MPa) et en flexion (4.5 MPa) sont obtenues pour le triplet (X=3.8, Y=0.9 et Z=20). A la suite de la validation du modèle mathématique, statistiquement et expérimentalement, le rapport massique MK/TC a été varié de 0.33 à 0.16 afin d'évaluer l'impact environnemental du liant.

Mots-clefs Terre crue, stabilisation, géopolymère, optimisation, ACV.

I. INTRODUCTION

Chaque année en France des millions de tonnes de terre sont excavées sur les chantiers de construction. Rien que le projet du Grand Paris Express qui concerne l'extension du réseau de transport francilien sur plus de 200 km, va générer selon les estimations plus de 45 millions de tonnes de terres excavées d'ici 2030. Face à ces quantités très importantes posant des problèmes de stockage et de traitement, les autorités françaises ont imposé la nécessité de les valoriser. Les terres d'excavation sont souvent valorisées dans des applications telles que les briques en terre comprimée (BTC) ou l'adobe (Shaaban, 2021), mais rarement dans le secteur des travaux publics, notamment dans des applications telles que les bordures et les glissières de sécurité. L'utilisation de la terre crue nécessite souvent une stabilisation chimique afin de remédier aux problèmes de durabilité tels que le retrait de séchage, les cycles d'humidification-séchage et de gel/dégel (Barman and Dash, 2022). Cette stabilisation chimique est réalisée par l'ajout d'un liant organique ou minéral tel que le ciment portland, la chaux ou le bitume. Toutefois, ces liants ont un impact

environnemental très élevé, ce qui peut compromettre leur utilisation. Actuellement, le liant "géopolymère", qui est un polymère inorganique développé par Davidovits en 1976 (Davidovits, 2005) est considéré parmi les liants les plus prometteurs pour répondre aux enjeux environnementaux. Ce dernier est formé par la réaction entre une source aluminosilicate amorphe telle que le métakaolin et un activateur alcalin tel que le silicate de sodium (Duxson et al., 2007), ce processus crée une structure tridimensionnelle stable, offrant des propriétés mécaniques (résistances à la compression et à la flexion) similaires à celles obtenues en utilisant des ciments traditionnels, tout en présentant des avantages environnementaux significatifs. Pourtant, son utilisation pour la stabilisation de la terre crue est encore peu étudiée dans la littérature. L'objectif de cet article est d'étudier la viabilité de l'utilisation d'un liant géopolymère à base de métakaolin, pour valoriser la terre crue dans des applications telles que les bordures. Dans un premier temps, une optimisation du liant dans la matrice terre-géopolymère a été réalisée à l'aide d'un plan d'expériences de second degré à trois facteurs ($\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ (X); $\text{Na}_2\text{O}/\text{Al}_2\text{O}_3$ (Y); $\text{H}_2\text{O}/\text{Na}_2\text{O}$ (Z)). Ensuite le rapport massique métakaolin/terre crue (MK/TC) a été optimisé afin de réduire l'impact environnemental des différentes formulations, une analyse de cycle a été réalisée pour évaluer la viabilité écologique des différentes formulations ainsi que la contribution de chaque constituant des mélanges.

II. MATERIAUX ET METHODES

A. Matériaux utilisés

La terre crue (TC) utilisée dans cette étude est issue de la société Extract Ecoterres spécialisée dans le traitement et la valorisation des terres d'excavation et des sédiments de dragage. Les résultats de l'analyse granulométrique montrent que le sol est composé de 12 % de graviers (>4mm), 14 % de sable grossier (2-4 mm), 61% de sable fin (0.63-2 mm), et 13% de particules fines (<63 μm). L'analyse par Diffraction aux Rayons X du sol révèle la présence du quartz (SiO_2) comme minéral principal, des feldspath (microcline, albite et l'orthoclase) et des traces d'argiles (kaolinite et illite). Le Métakaolin (MK) utilisé provient de la calcination flash des carrières de Fumel par Argeco. Le tableau 1 résume les compositions chimiques des matériaux obtenues par XRF. La solution alcaline utilisée pour l'activation du métakaolin est composée d'une solution de silicate de sodium ajustée par de l'hydroxyde de sodium en pastilles et de l'eau distillée. La solution de silicate de sodium fournie par l'entreprise Fisher, est caractérisée par un rapport molaire $\text{SiO}_2/\text{Na}_2\text{O}$ de 2.1, une partie sèche de 38.3 % et une densité de 1.5. L'hydroxyde de sodium utilisé est fourni par l'entreprise SIGMA d'une pureté supérieure à 98 %.

Tableau 1 : Composition chimique des matériaux.

Oxydes wt (%)	SiO_2	Al_2O_3	CaO	MgO	Fe_2O_3	Na_2O	K_2O	TiO_2	PAF
Matériaux									
Métakaolin (MK)	67.10	26.80	1.12	0.11	2.56	0.01	0.12	1.37	<1
Terre crue (TC)	79.80	5.70	2.62	0.32	3.47	0.17	0.87	0.87	5.4

B. Méthodologie et formulations

Dans un premier temps, le liant géopolymère a été optimisé dans la matrice terre-géopolymère en utilisant un plan d'expériences sur des échantillons prismatiques de dimensions $4 \times 4 \times 16 \text{ cm}^3$. Le rapport massique MK/TC a été fixé à 0.33, pour assurer une bonne ouvrabilité des mélanges, particulièrement ceux fabriqués avec un rapport molaire Z($\text{H}_2\text{O}/\text{Na}_2\text{O}$) bas. Tandis que les trois

rappports molaires du système ($\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ (X) ; $\text{Na}_2\text{O}/\text{Al}_2\text{O}_3$ (Y) ; $\text{H}_2\text{O}/\text{Na}_2\text{O}$ (Z)) sont variés. Ensuite, nous avons procédé à l'optimisation du rapport MK/TC en utilisant l'algorithme présenté dans la section B.2. Tous les échantillons fabriqués ont été démoulés après 48 h et conservés dans des conditions contrôlées à une température de 20 ± 3 °C et une humidité relative supérieure à 80%. Les résistances à la compression et à la flexion sont déterminées suivant la norme NF-EN 196-1.

B.1 Optimisation du liant par un plan d'expériences

Afin d'optimiser le liant géopolymère dans la matrice terre-géopolymère, un plan d'expériences de second degré de type matrice composite centrée à trois facteurs a été élaboré à l'aide du logiciel AZURAD (Azurad). Les facteurs d'entrée du modèle sont les rapports molaires $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ (X), $\text{Na}_2\text{O}/\text{Al}_2\text{O}_3$ (Y) et $\text{H}_2\text{O}/\text{Na}_2\text{O}$ (Z). Chaque facteur a été réglé sur trois niveaux [bas (-1), centre (0) et haut (+1)] comme indiqué dans le tableau 2. Les limites inférieures et supérieures choisies pour chaque facteur ont été établies en se basant sur des résultats de la littérature (Juengsuwattananon et al., 2019) et en prenant en compte l'ouvrabilité des mélanges. Au total, dix-sept formulations ont été élaborées comme indiqué dans le tableau 3 (quinze pour le plan d'expériences, et deux pour la validation des modèles prédictifs). L'objectif principal de ce plan d'expériences est d'identifier l'influence de chaque facteur et de leur interaction sur les réponses du système, qui sont dans notre cas, les résistances à la compression et à la flexion. De plus, un modèle quadratique a été développé pour modéliser les réponses du système en fonction de chaque facteur et de leurs interactions en tout point du domaine expérimental, avec le polynôme quadratique suivant :

$$R = b_0 + b_1 X + b_2 Y + b_3 Z + b_{12} XY + b_{13} XZ + b_{23} YZ + b_{11} X^2 + b_{22} Y^2 + b_{33} Z^2 + \varepsilon$$

Où :

- b_0 : moyenne au centre du domaine
- $b_i(1,2,3)$: effets des paramètres (X, Y,Z)
- $b_{ij}(12,23,13)$: effets des interactions (XY,YZ,XZ)
- $b_{ii}(11,22,33)$: coefficients des termes quadratiques (X^2, Y^2, Z^2) ; ε : l'erreur

Tableau 2 : Les facteurs d'expériences et leur niveau.

Facteurs	Symbole	Niveau des facteurs		
		Bas (-1)	Centre (0)	Haut (+1)
X($\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$)	X	3	3.5	4
Y($\text{Na}_2\text{O}/\text{Al}_2\text{O}_3$)	Y	0.9	1	1.1
Z($\text{H}_2\text{O}/\text{Na}_2\text{O}$)	Z	20	23	26

Tableau 3 : Formulations du plan d'expériences.

Expériences	X($\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$)	Y($\text{Na}_2\text{O}/\text{Al}_2\text{O}_3$)	Z($\text{H}_2\text{O}/\text{Na}_2\text{O}$)	$\frac{m_{MK}}{m_{TC}}$
F1	3	0.9	20	0.33
F2	4	0.9	20	0.33
F3	3	1.1	20	0.33
F4	4	1.1	20	0.33
F5	3	0.9	26	0.33
F6	4	0.9	26	0.33

F7	3	1.1	26	0.33
F8	4	1.1	26	0.33
F9	3	1	23	0.33
F10	4	1	23	0.33
F11	3.5	0.9	23	0.33
F12	3.5	1.1	23	0.33
F13	3.5	1	20	0.33
F14	3.5	1	26	0.33
F15	3.5	1	23	0.33
F16	3.8	0.931	20.501	0.33
F17	3.6	0.91	21.07	0.33

B.2 Optimisation de la quantité du liant

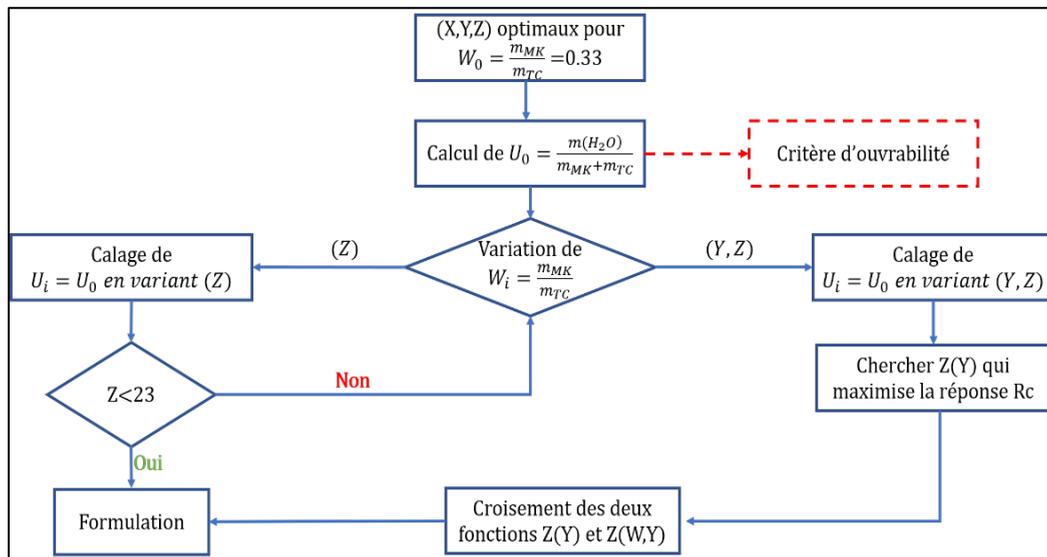


Figure 1 : Algorithme d’optimisation du rapport MK/TC.

Afin de minimiser l’impact environnemental du liant, la méthode décrite dans l’algorithme présenté dans la figure 1 a été suivie. Cette méthode consiste à fixer le rapport massique eau/ (terre + métakaolin) ($U_0 = E / (TC + MK)$), puis à faire varier le rapport massique ($W_i = MK / TC$) en diminuant la quantité du métakaolin. A chaque variation de ce rapport, un ajustement du rapport $U_i = U_0$ est effectué en modifiant les deux rapports molaires $Y (Na_2O) / Al_2O_3$ et $Z (H_2O / Na_2O)$. Au total, quatre formulations, désignées par W_0, W_1, W_2 et W_3 , ont été respectivement élaborées avec des rapports massiques $W_i = MK / TC$ de 33%, 26%, 21% et 16%. Les quatre formulations ont le même rapport molaire $X (SiO_2 / Al_2O_3)$ de 3.8 issu de l’optimisation par plan d’expériences. Le tableau 4 récapitule les différentes formulations élaborées, mettant en évidence les rapports massiques $W_i = MK / TC$ ainsi que les rapports molaires X, Y et Z correspondants. Des essais de résistance à la compression et à la flexion, ont été effectués à 7 et 28 jours. Par la suite, l’impact environnemental des quatre formulations a été évalué.

Tableau 4 : Formulations d'optimisation de W_i .

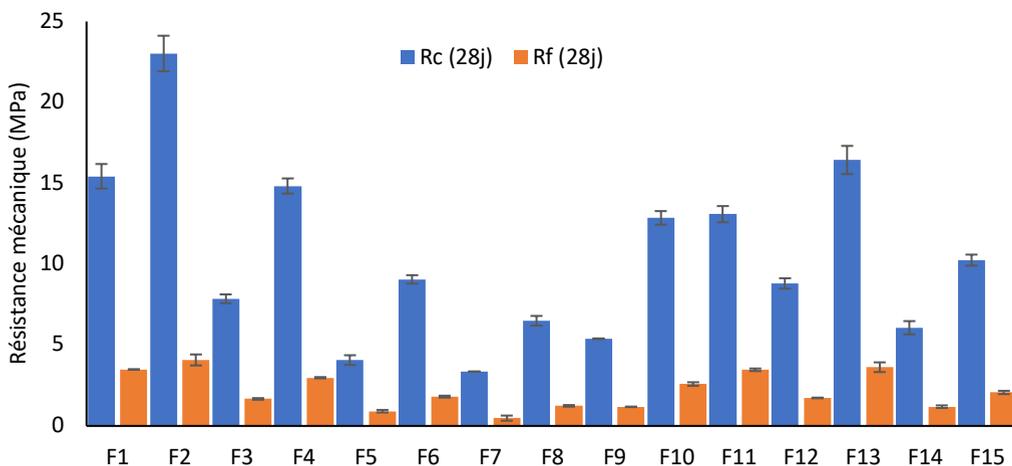
Formulations	Rapport molaire			Rapport massique	
	SiO_2/Al_2O_3	Na_2O/Al_2O_3	H_2O/Na_2O	$W_i = \frac{m_{MK}}{m_{TC}}$	$\frac{m(H_2O)}{m_{MK} + m_{TC}}$
W₀	3.8	0.931	20.501	0.333	0.226
W₁	3.8	1.025	22.557	0.26	0.226
W₂	3.8	1.118	24.596	0.21	0.226
W₃	3.8	1.254	27.590	0.16	0.226

III. RESULTAS ET DISCUSSIONS

A. Optimisation du liant géopolymère

A.1 Résistances à la compression et à la flexion

La figure 2 résume les résistances à la compression et à la flexion obtenues à 28 jours pour les quinze formulations du plan d'expériences. Les valeurs de la résistance à la compression varient entre 3.4 et 23.0 MPa, tandis que celles de la résistance à flexion varient entre 0.5 et 4.1 MPa. Les résistances mécaniques maximales sont obtenues avec la formulation numéro F2, qui est élaborée avec les rapports molaires $X(SiO_2/Al_2O_3)$ de 4, YNa_2O/Al_2O_3 de 0.9 et $Z(H_2O/Na_2O)$ de 20. L'effet de chaque rapport molaire sur les résistances mécaniques est discuté dans la section A.3.

**Figure 2 : Résistances à la compression et à la flexion des formulations.**

A.2 Validation des modèles de prédiction

Une analyse statistique a été réalisée afin de valider les modèles quadratiques qui décrivent les résistances à la compression et à la flexion en fonction des rapports molaires $[X(SiO_2/Al_2O_3)$,

$Y(\text{Na}_2\text{O}/\text{Al}_2\text{O}_3)$ et $Z(\text{H}_2\text{O}/\text{Na}_2\text{O})$]. Le tableau 5 présente les valeurs du coefficient de détermination R^2 , du R^2 ajusté et de la valeur de probabilité (valeur-p) des deux modèles.

Tableau 5 : Données statistiques des modèles prédictifs.

Données statistiques	Degré de liberté	R^2	R^2A	Valeur-p
Modèle de la résistance en compression (R_c)	5	0.995	0.987	0.0004 (<0.05)
Modèle de la résistance en flexion (R_f)	5	0.979	0.941	0.0011 (<0.05)
$R_c = 10,36 + 3,01X - 2,33 Y - 4,85Z - 0,308XY - 0,8XZ + 1,56YZ - 1,26 X^2 + 0,56 Y^2 + 0,86 Z^2$ (MPa)				
$R_f = 2,16 + 0,51X - 0,50Y - 1,04 Z + 0,04XY - 0,05 XZ + 0,263 YZ - 0,29 X^2 + 0,02 Y^2 + 0,22 Z^2$ (MPa)				

Les modèles se révèlent robustes avec des coefficients de détermination élevés, atteignant 0.995 pour la résistance à la compression et 0.979 pour la résistance à la flexion. Les valeurs-p des modèles, respectivement de 0.0004 et 0.0011 pour la résistance à la compression et à la flexion, sont inférieures à 0.05, ce qui confirme la significativité statistique des modèles quadratiques. Ainsi, ces modèles sont considérés comme ajustés et fiables. En complément de la validation statistique des modèles prédictifs, une validation expérimentale a été réalisée. Deux formulations ont été sélectionnées de manière aléatoire à l'intérieur du domaine expérimental. Les deux modèles ont ensuite été appliqués aux formulations choisies pour évaluer leur performance et leur capacité à prédire les résistances mécaniques. La comparaison entre les résultats expérimentaux et les prédictions des modèles, a confirmé leur efficacité et leur précision, avec des erreurs de prédictions comprises entre 1.26 % à 4.9 % comme indiqué dans le tableau 6.

Tableau 6 : Validation des modèles mathématiques.

Formulation	Rapport molaire			Résistance à la compression à 28 jours (MPa)			Résistance à la flexion à 28 jours (MPa)		
	X ($\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$)	Y ($\text{Na}_2\text{O}/\text{Al}_2\text{O}_3$)	Z ($\text{H}_2\text{O}/\text{Na}_2\text{O}$)	V.p	V.m	Différence %	V.p	V.m	Différence %
F16 (test 1)	3.8	0.931	20.501	19.66	20.00 ± 0.48	+1.7	3.90	3.95 ± 0.19	+1.26
F17 (test 2)	3.6	0.91	21.07	18.08	19.03 ± 0.67	+4.9	3.63	3.78 ± 0.27	+3.96
V.m : Valeur mesurée V.p : Valeur prédite									

A.3 Discussion sur l'évolution des résistances mécaniques en fonctions des rapports molaires

- Effet du rapport molaire ($\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$)

L'augmentation du rapport molaire $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ (X) de 3 à 4 a un effet favorable sur les résistances mécaniques. Pour des rapports molaires $\text{Na}_2\text{O}/\text{Al}_2\text{O}_3$ (Y=0.9) et $\text{H}_2\text{O}/\text{Na}_2\text{O}$ (Z=20) l'augmentation du rapport X($\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$) de 3 à 4 améliore respectivement de 50 % et 17 % la résistance à la compression et la résistance à la flexion. Les valeurs des coefficients b_1 qui traduisent l'effet de ce rapport molaire, obtenues après une analyse statique des résultats s'élèvent à 3.016 pour la résistance à la compression et 0.515 pour la résistance à la flexion. Cet effet favorable sur les

résistances mécaniques s’explique par l’augmentation des espèces [Si], qui favorise la réaction de géopolymérisation et la formation d’un gel N-A-S-H plus dense (Alumino-Silicates de Sodium Hydraté) (Duxson et al., 2007). Les valeurs négatives du coefficient b_{22} du terme quadratique X^2 , indiquent l’existence d’un optimum pour le rapport molaire SiO_2/Al_2O_3 , qui se situe entre 3.7 et 3.8, Cet optimum est mis en évidence par les surfaces de réponse de la résistance à la flexion $R=f(X, Z, Y=0.9)$ et $R=f(X, Y, Z=20)$ (figure 3).

▪ Effet du rapport molaire (Na_2O/Al_2O_3)

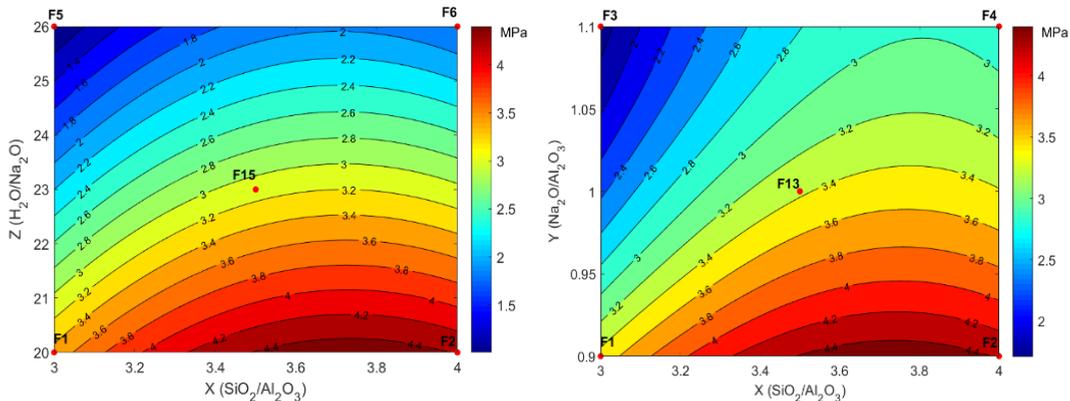


Figure 3 Surfaces de réponses de la résistance à la flexion, illustrant les effets des rapports molaires (X, Z) quand $Y=0.9$ (gauche) et (X, Y) quand $Z=20$ (droite)

Dans notre plan d’expériences, l’augmentation du rapport molaire Na_2O/Al_2O_3 (Y) de 0.9 à 1.1 entraîne une diminution des résistances mécaniques. Pour des rapports molaires SiO_2/Al_2O_3 ($X=4$) et H_2O/Na_2O ($Z=20$), cette augmentation réduit respectivement de 35.6% et 26.8 % la résistance à la compression et la résistance à la flexion. Cet effet négatif est aussi traduit par les coefficients b_2 (-2.33 et -0.505) du tableau 7. En effet, un excès en Na_2O par rapport à Al_2O_3 peut prématurer la précipitation du gel aluminosilicate, ce qui entraîne une diminution des propriétés mécaniques du géopolymère (Juengsuwattananon et al., 2019).

Tableau 7 : Effets des rapports molaires sur les résistances à la compression et à la flexion.

Terme	Coefficient	Valeur (Rc)	Effet (Rc)	Valeur (Rf)	Effet (Rf)
Moyenne au centre	b_0	10.361	-	2.16	-
$X(SiO_2/Al_2O_3)$	b_1	3.016	Positif	0.515	Positif
$Y(Na_2O/Al_2O_3)$	b_2	-2.331	Négatif	-0.505	Négatif
$Z(H_2O/Na_2O)$	b_3	-4.852	Négatif	-1.04	Négatif
XY	b_{12}	-0.308	N-S*	0.0493	N-S*
XZ	b_{13}	-0.803	N-S*	-0.053	N-S*
YZ	b_{23}	1.561	Positif	0.263	Positif
X^2	b_{11}	-1.264	E-Opti*	-0.298	E-Opti
Y^2	b_{22}	0.560	N-S*	0.021	N-S*
Z^2	b_{33}	0.865	N-S*	0.226	N-S*
N-S : Non significatif (valeur-p > 0.05) / E-Opti : Existence d’un optimum					

▪ Effet du rapport molaire (H_2O/Na_2O)

Dans cette étude, le rapport molaire $\text{H}_2\text{O}/\text{Na}_2\text{O}$ a été varié de 20 à 26 afin d'évaluer son influence sur l'ouvrabilité et les résistances mécaniques. L'augmentation de ce rapport molaire permet d'améliorer l'ouvrabilité de notre matériau en réduisant la viscosité de la solution alcaline. Cependant, cette amélioration de l'ouvrabilité s'accompagne d'une réduction drastique des performances mécaniques, comme en témoignent les coefficients b_3 de -4.85 et -1.04 (Tableau 7). Cette baisse des résistances mécaniques s'explique principalement par l'augmentation de la porosité et la réduction de la densité du matériau. Le rapport molaire $\text{H}_2\text{O}/\text{Na}_2\text{O}$ (Z) est étroitement lié à la quantité d'eau présente dans le système. Cette eau joue un rôle crucial dans le processus de dissolution des espèces Si-Al, mais ne participe pas au processus de polymérisation du géopolymère (Yusuf et al., 2014).

B. Optimisation du rapport massique métakaolin/terre-crue ($W_i = \frac{m_{MK}}{m_{TC}}$)

La figure 4 illustre l'évolution de la résistance à la compression à 7 et 28 jours, en fonction du rapport ($W_i = \text{MK}/\text{TC}$). En prenant $W_0 = 0.33$ comme formulation de référence, la résistance à la compression à 28 jours diminue de 24.4% pour W_1 , 31.5% pour W_2 et 66.5% pour W_3 . La baisse importante de la résistance à la compression de la formulation W_3 par rapport à W_0 s'explique d'une part, par le rapport molaire $\text{H}_2\text{O}/\text{Na}_2\text{O}$ très élevé (27.59), ne favorisant pas la formation d'un gel géopolymère performant. Et d'autre part, par la réduction du volume de la pâte géopolymère. L'augmentation de la valeur du rapport molaire $\text{H}_2\text{O}/\text{Na}_2\text{O}$ est conséquente à la quantité d'eau utilisée pour maintenir le rapport (eau / (terre + métakaolin)) constant à 0.226 (tableau 4), afin d'avoir une maniabilité acceptable du mélange terre-géopolymère. Par conséquent, il sera nécessaire d'utiliser des adjuvants tels que les superplastifiants pour les formulations dont le rapport ($W_i = \text{MK}/\text{TC}$) est inférieur à 21%, afin de réduire la quantité d'eau et ainsi, la valeur du rapport molaire $\text{H}_2\text{O}/\text{Na}_2\text{O}$.

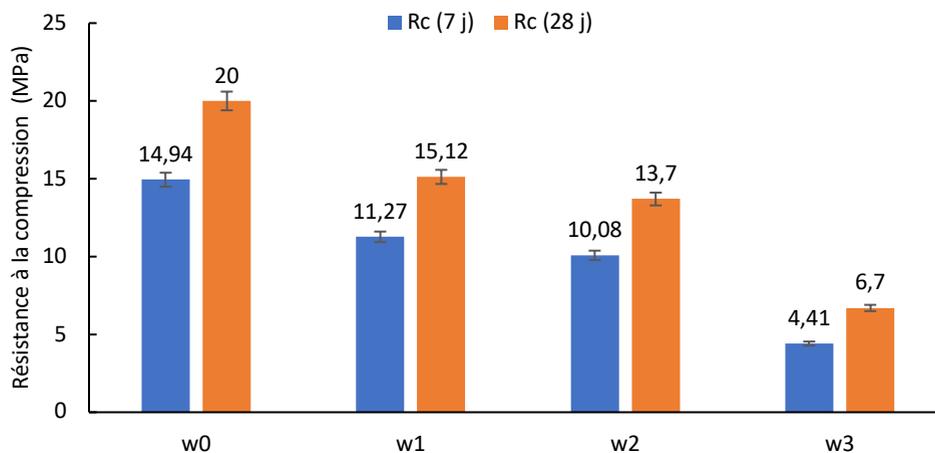


Figure 4 Résistance à la compression à 7 et 28 jours des formulations W_i

C. Analyse du cycle de vie des formulations W_i

L'objectif de cette partie de l'étude est de déterminer les impacts environnementaux des quatre formulations W_0 , W_1 , W_2 et W_3 . L'unité fonctionnelle choisie pour cette étude est la fabrication d'1 m^3 de terre crue stabilisée par un liant géopolymère (GPTC). Les limites du système étudié sont la production et le transport du métakaolin flash d'Argesco et des activateurs alcalins, ainsi que le transport et le tamisage de la terre crue (figure 5). L'analyse du cycle de vie des quatre formulations a été réalisée selon la norme ISO 14040, puis modélisée avec le logiciel openLCA en utilisant les

bases de données Ecoinvent v3.9. Le transport des matériaux est modélisé en utilisant la donnée « transport, freight, lorry 16-32 metric ton, EURO6 ». La distance totale parcourue par l'ensemble des matériaux s'élève à 930 km. L'énergie nécessaire pour le tamisage d'une tonne de terre crue est de 1,08 kWh, tandis que le malaxage d'un mètre cube de matériaux requiert 7,09 kWh (Glanz et al., 2023). Les calculs des impacts environnementaux ont été réalisés selon la méthode CML v4.8 2016. Seuls les bilans carbonés sont présentés dans cette partie. La figure 6 présente les résultats de l'analyse du cycle de vie obtenus pour l'indicateur de changement climatique (GPW 100), avec la

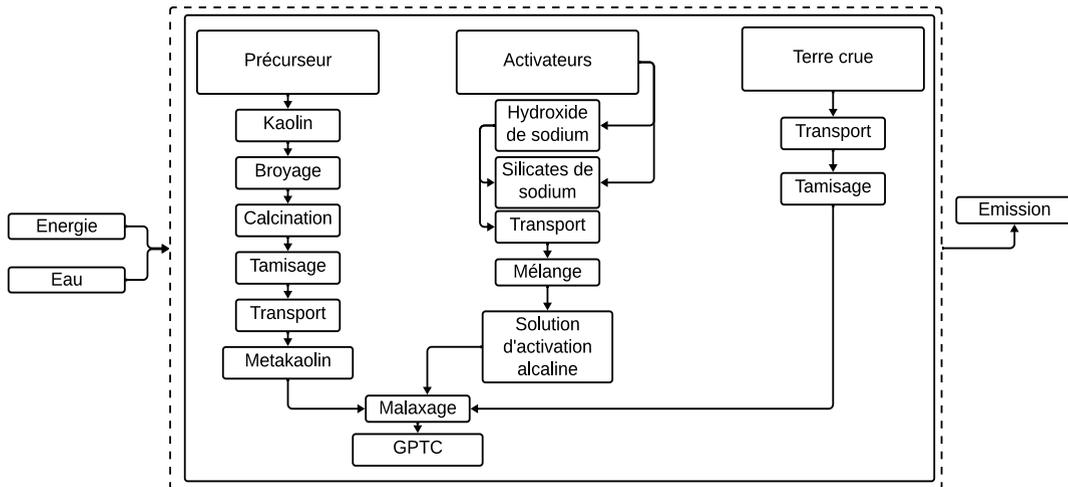


Figure 5 : Limites du système étudié.

contribution de chaque flux pour chaque formulation. L'empreinte carbone des formulations W₀, W₁, W₂ et W₃ est respectivement de 170.6, 148.1, 131.3 et 112.2 kg_{éq}CO₂/m³. On note une baisse comprise entre 32% et 55%, en comparaison à l'empreinte carbone d'un béton ordinaire de classe de résistance (C25/30). Le silicate de sodium se révèle être le principal contributeur au bilan carbone, avec des taux de contribution compris entre 40.2% et 46.3%. Le métakaolin, quant à lui, a une contribution comprise entre 26.6% et 30.6%. Le transport contribue également d'une manière significative avec des taux compris entre 19.6% et 20.3%. Afin de réduire l'impact environnemental des formulations, une utilisation d'activateurs alcalins plus écologiques est nécessaire, en recourant à de nouveaux processus de fabrication moins énergivores. En raison du bon compromis entre les performances mécaniques et environnementales, la formulation W₃ est retenue pour la fabrication de 30 ml de bordures de type P1 (500×200×80 mm³) dans le cadre d'un projet expérimental mené par l'entreprise Vinci construction en vue d'une mise en situation réelle.

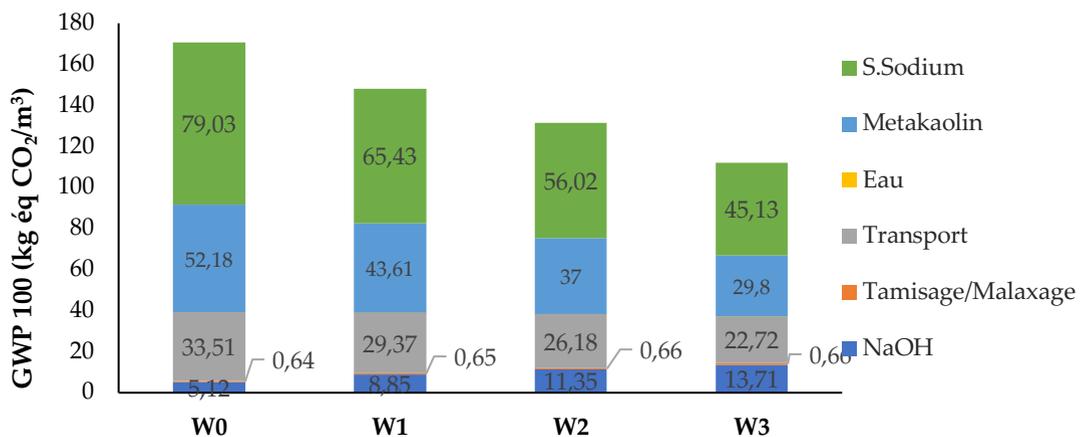


Figure 6 : Bilan carbone des formulations W_i.

IV. CONCLUSION

Cette étude a pour objectif d'analyser l'efficacité de la stabilisation de la terre crue à l'aide d'un liant géopolymère à base de métakaolin. Différents rapports molaires ont été étudiés. L'optimisation du liant dans la matrice terre-géopolymère, réalisée à l'aide d'un plan d'expériences de second degré, a démontré que l'augmentation du rapport molaire $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ améliore les performances mécaniques du matériau, avec l'existence d'un optimum à $X=3.8$ obtenu dans le cadre de cette étude. En revanche, l'augmentation des rapports molaires $\text{Na}_2\text{O}/\text{Al}_2\text{O}_3$ et $\text{H}_2\text{O}/\text{Na}_2\text{O}$ présente un effet défavorable sur les résistances mécaniques en raison de la quantité d'eau élevée présente dans le système. De plus, deux modèles prédictifs des résistances mécaniques ont été développés puis validés statistiquement et expérimentalement. L'optimisation du rapport massique métakaolin/terre-crue ($W_i = \text{MK}/\text{TC}$) a démontré qu'en deçà de 21%, les résistances mécaniques diminuent drastiquement en raison du rapport molaire $\text{H}_2\text{O}/\text{Na}_2\text{O}$ élevé, qui ne favorise pas la formation d'un gel géopolymère (N-A-S-H) performant. Enfin, une analyse du cycle de vie est réalisée pour les différentes formulations. Les résultats de cette dernière démontrent que le silicate de sodium est le plus grand contributeur au bilan carbone. Comparativement à l'empreinte carbone d'un béton ordinaire de classe de résistance (C25/30), nous observons une baisse de l'ordre de 55% des émissions de CO_2 , bien que les résistances ne soient pas équivalentes. Des études de durabilité, notamment la résistance aux cycles gel/dégel et humidification/séchage et le retrait de séchage sont en cours. Il est prévu d'exploiter les résultats obtenus à une échelle industrielle pour une utilisation dans la conception de bordures de type P1 ($500 \times 200 \times 80 \text{ mm}^3$).

REFERENCES

- Azurad.fr - Logiciel de plans d'expériences [WWW Document], n.d. URL <http://www.azurad.fr/logiciel-plans-experiences.php> (accessed 4.28.24).
- Barman, D., Dash, S.K., 2022. Stabilization of expansive soils using chemical additives: A review. *J. Rock Mech. Geotech. Eng.* 14, 1319–1342. <https://doi.org/10.1016/j.jrmge.2022.02.011>
- Davidovits, J., 2005. Geopolymer, Green Chemistry and Sustainable Development Solutions: Proceedings of the World Congress Geopolymer 2005. Geopolymer Institute.
- Duxson, P., Fernández-Jiménez, A., Provis, J.L., Lukey, G.C., Palomo, A., van Deventer, J.S.J., 2007. Geopolymer technology: the current state of the art. *J. Mater. Sci.* 42, 2917–2933. <https://doi.org/10.1007/s10853-006-0637-z>
- Glanz, D., Sameer, H., Göbel, D., Wetzels, A., Middendorf, B., Mostert, C., Bringezu, S., 2023. Comparative environmental footprint analysis of ultra-high-performance concrete using Portland cement and alkali-activated materials. *Front. Built Environ.* 9.
- Juengsuwattananon, K., Winnefeld, F., Chindapasirt, P., Pimraksa, K., 2019. Correlation between initial $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$, $\text{Na}_2\text{O}/\text{Al}_2\text{O}_3$, $\text{Na}_2\text{O}/\text{SiO}_2$ and $\text{H}_2\text{O}/\text{Na}_2\text{O}$ ratios on phase and microstructure of reaction products of metakaolin-rice husk ash geopolymer. *Constr. Build. Mater.* 226, 406–417. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2019.07.146>
- Shaaban, M., 2021. Sustainability of Excavation Soil and Red Brick Waste in Rammed Earth. *Civ. Eng. Archit.* 9, 789–798. <https://doi.org/10.13189/cea.2021.090320>
- Yusuf, M.O., Megat Johari, M.A., Ahmad, Z.A., Maslehuddin, M., 2014. Effects of $\text{H}_2\text{O}/\text{Na}_2\text{O}$ molar ratio on the strength of alkaline activated ground blast furnace slag-ultrafine palm oil fuel ash based concrete. *Mater. Des.* 1980–2015 56, 158–164. <https://doi.org/10.1016/j.matdes.2013.09.078>

Nouveau dispositif de fluage pour l'évaluation de l'effet de la précontrainte biaxiale sur les déformations différées du béton

Rita Tabchoury ^{1,2}

¹ Université de Toulouse, UPS, INSA, LMDC (Laboratoire Matériaux et Durabilité des Constructions),
135, avenue de Rangueil, F-31 077 Toulouse Cedex 04, France)

² IRSN, 31 Av. de la Division Leclerc, 92260 Fontenay-aux-Roses, France

RESUME De nombreux ouvrages en béton sont atteints de réactions de gonflement internes (RGI) pouvant affecter leur tenue en service. Pour être capable de modéliser l'évolution de leur comportement, des recherches doivent étudier les couplages avec des sollicitations mécaniques. De telles études demeurent néanmoins complexes à mettre en œuvre en laboratoire. Ceci est d'autant plus vrai pour un chargement en compression biaxiale représentatif des enceintes de confinement nucléaires précontraintes suivant deux directions. Or, le fluage du béton provoque des pertes de précontraintes pouvant compromettre leur fonction d'étanchéité si elles s'avéraient trop élevées dans certaines conditions. Un bâti original de fluage biaxial a été conçu pour tester des dalles en béton de 20x20x15 cm. Leurs déformations sont mesurées suivant les trois directions grâce à des capteurs à fibre optique noyés résistants aux conditions sévères nécessaires pour accélérer les RGI. L'analyse des résultats des essais réalisés montre que les déformations de fluage dépendent fortement des conditions de chargement. La distribution asymétrique des contraintes révèle l'importance de l'effet Poisson entre les deux directions. Les essais avec RGI étant toujours en cours, les résultats disponibles de fluage biaxial sans RGI constituent une base de données originales permettant de tester les modèles.

Mots-clefs Fluage Biaxial, Réactions de Gonflement Internes, expérimentations, Fibre Optique

I. INTRODUCTION

Les réactions de gonflement interne (RGI) constituent une problématique majeure pour de nombreux ouvrages en génie civil construits avant leur découverte. Ces pathologies pouvant se développer dans les bétons des ouvrages de génie civil nucléaire, elles pourraient affecter les caractéristiques mécaniques (module d'élasticité, résistances en traction et en compression) ainsi que les propriétés de transfert (perméabilité à l'air). Ces conséquences pourraient compromettre la sûreté des ouvrages. La réaction sulfatique interne (RSI) peut survenir dans les enceintes de confinement en raison de la nature massive de telles structures en béton. À un jeune âge, la réaction d'hydratation est exothermique, ce qui signifie que la chaleur générée au cœur par cette réaction n'aura pas le temps de s'évacuer ou de se dissiper à l'extérieur dans le cas de structures massives.

La présence de précontrainte, notamment dans les enceintes de confinement, atténue l'expansion liée à la pathologie dans les directions chargées, créant une anisotropie de déformations

potentiellement préjudiciable pour le comportement structural. En outre, l'élévation de la température dans les ouvrages influence les mécanismes du fluage et des RGI, entraînant une augmentation des cinétiques des déformations associées, justifiant ainsi son étude. Plusieurs essais de fluage biaxial ont été réalisés dans la littérature, le premier ayant été effectué en 1969 (Gopalakrishnan et al., 1969). Les résultats ont montré que le fluage sous compression biaxiale est inférieur à celui sous compression uniaxiale pour une même valeur de contrainte dans la direction donnée. Hilaire a réalisé un essai de fluage biaxial durant lequel les déformations dans les deux directions chargées ont été mesurées par corrélation d'images (Hilaire, 2014). L'évolution du fluage sous charge uniaxiale semble similaire au fluage sous charge biaxiale. Enfin, Kim et al. ont réalisé des essais de fluage, uniaxiaux, biaxiaux et triaxiaux. L'analyse des résultats a montré que les 3 valeurs de coefficient de Poisson, celui estimé lors du chargement, celui de fluage et enfin celui effectif (qui est la combinaison des deux) sont approximativement égaux pour chaque formulation de béton, et ils augmentent quand la résistance du béton augmente (Kim et al., 2005) (Kim et al., 2006). Des essais de compression biaxiale ont été réalisés à l'EDF en utilisant des vérins hydrauliques à faible débit pour assurer une stabilité de la contrainte appliquée sur les éprouvettes de béton (Charpin et al., 2018). Cependant, les déformations différées du béton ont été mesurées dans les deux directions de charge. Ce qui rend cette étude originale, c'est la mesure des déformations différées biaxiales du béton dans les trois directions de l'éprouvette, couplée avec les RGI.

Néanmoins, les évolutions des déformations dans toutes les directions chargées et libres d'un béton sous compression biaxiale atteint d'une RGI demeurent très peu étudiées. Cette étude a donc pour objectif d'évaluer le fluage en compression biaxiale, avec et sans couplage avec des RGI, afin de comprendre les mécanismes et couplages, et de tester, voire d'améliorer les modèles.

Afin d'atteindre cet objectif, huit bâtis de fluage de compression biaxiale ont été spécifiquement conçus pour permettre la réalisation d'essais couvrant l'ensemble des configurations Thermo-Hydro-Chemo-Mécanique (THCM). Diverses configurations de fluage ont été testées : compression uni-axiale, compression biaxiale, avec chargements symétriques et asymétriques. Les essais ont été réalisés avec des contraintes de 8,5 MPa et 12 MPa, représentatives de celles induites par les aciers de précontrainte verticaux et ortho radiaux des enceintes de confinement. La FIGURE 1 présente l'ensemble des configurations d'essais réalisés dans le cadre du programme expérimental avec quatre types de bétons, ainsi que conditions thermiques (températures de 20°C et 38 °C) et mécaniques (sans chargement, chargement uniaxial et biaxial). Le programme expérimental complet comprend 26 configurations d'essais.

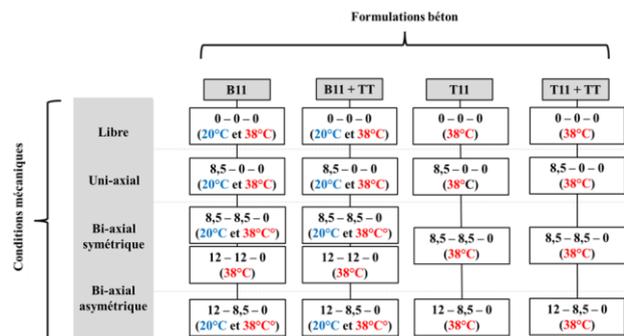


FIGURE 1. Programme expérimental indiquant les formulations ainsi que les configurations de charge

Le béton B11 constitue le matériau utilisé dans les enceintes de confinement des centrales nucléaires et sert de référence dans le cadre de cette étude. La composition de ce béton comprend un dosage de ciment de 400 kg/m³ avec un rapport E/C de 0,56, utilisant des granulats de nature calcaire. Le béton B11+TT est une version du béton B11 auquel est appliqué un Traitement Thermique (TT) au jeune âge pour favoriser le développement de la RSI. Le béton T11 présente une distribution granulaire similaire à celle du béton B11, à la différence que ses granulats sont réactifs afin de développer la Réaction Alkali-Granulat (RAG). Enfin, le béton T11+TT est traité thermiquement au jeune âge afin d'étudier les couplages entre la RAG et la RSI d'une part, ainsi qu'avec le fluage d'autre part.

II. BATI DE FLUAGE BIAXIAL

Un dispositif original de fluage en compression biaxiale a été mis au point afin de mesurer les évolutions des déformations différées des bétons due à la précontrainte biaxiale. Pour concevoir ce dispositif un cahier des charges listant toutes les caractéristiques et éléments nécessaires pour pouvoir appliquer les différentes conditions d'essais a été dressé :

- Les contraintes sont appliquées par l'intermédiaire de deux vérins hydrauliques capables d'exercer une contrainte d'au moins 12 MPa sur la surface des éprouvettes.
- Les vérins sont fixés sur un cadre métallique de forte rigidité pour limiter les déformations parasites de ce dernier pendant l'essai de fluage.
- L'ensemble cadre et vérins est capable de maintenir les contraintes pendant de longues périodes (environ 6 mois), et de résister aux conditions thermo-hydriques des configurations d'essais, notamment une immersion dans une eau dont la concentration en produits lixiviés du béton augmente dans le temps.

Sa masse et son gabarit ont été optimisés de manière à tester des échantillons de béton de taille suffisante pour des mesures dans des zones non perturbées par ses conditions aux limites, et à ce qu'il puisse être déplacé avec les moyens de manutention disponibles au laboratoire. En d'autres termes, un calcul élastique a été réalisée avec Cast3m pour modéliser le gabarit et son comportement, démontrant que les effets de frettage sont négligeables dans les zones centrales de l'éprouvette. La FIGURE 2 présente le schéma et les photos d'un bâti biaxial. Comme défini dans le cahier des charges, il est constitué de 2 vérins hydrauliques qui sont fixés à un cadre métallique de grande rigidité. Une plaque métallique est utilisée pour répartir la force du vérin sur la totalité de la surface de l'échantillon de béton. La pression est appliquée par l'intermédiaire d'une pompe hydraulique manuelle et elle est ajustée à l'aide d'un manomètre. La déformation de fluage du béton, en particulier lors des premiers jours de chargement, entraîne une perte de pression du vérin. Pour pallier cette perte de pression, chaque vérin est associé à un accumulateur d'azote qui la compense. Les échantillons de béton sont des parallélépipèdes 20x20x15cm.

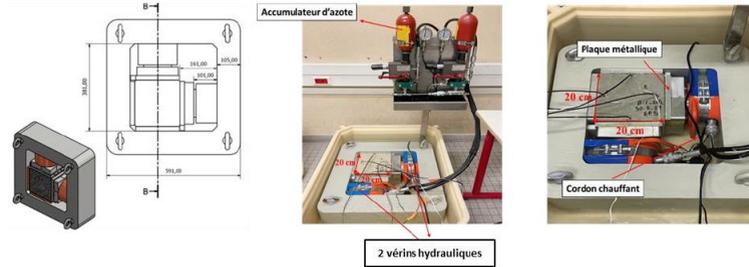


FIGURE 2. Bâti de fluage bi-axial avec ses différents éléments constitutifs

A. Suivi des déformations des éprouvettes

Dans le cadre de cette thèse, les déformations du béton sont mesurées à l'aide d'un réseau de capteurs à fibre optique. La fibre optique est un câble, constitué de fibres de verre, qui peut transmettre des données à grande vitesse. Pour interroger la fibre optique, la méthode de diffusion de Rayleigh a été retenue. Le phénomène de diffusion de Rayleigh est un phénomène élastique qui se produit lorsque le photon incident est diffusé par les atomes de silice présents dans la fibre optique (Maurin et al., 2020). Le profil réflectométrique est obtenu en utilisant la technique de OFDR (Optical Frequency Domain Reflectometry) combinée à des mesures OBR (Optical Backscatter Reflectometry). Cette combinaison de techniques permet d'obtenir des mesures de déformation précises et réparties le long de la fibre optique. La fibre optique sélectionnée pour l'étude (NEUBREX FN-SILL3) permet d'obtenir des mesures réparties avec une résolution spatiale de 0,65 mm. Le choix s'est porté sur cette fibre de par son aptitude à pouvoir enregistrer des mesures dans des conditions relativement sévères avec des échantillons immergés dans de l'eau basique à 38° C sur des durées d'environ 6 mois. Elle doit également résister à la cure thermique au jeune âge avec une température de palier à 80 °C. Le positionnement des fibres optiques noyées dans le béton est illustré dans la FIGURE 3, permettant ainsi la mesure des déformations en 3D : les deux directions longitudinales dans le plan et la direction transversale hors plan. Les fibres optiques sont maintenues et fixées pendant le coulage du béton à l'aide de fils de nylon attachés aux moules dans trois directions.

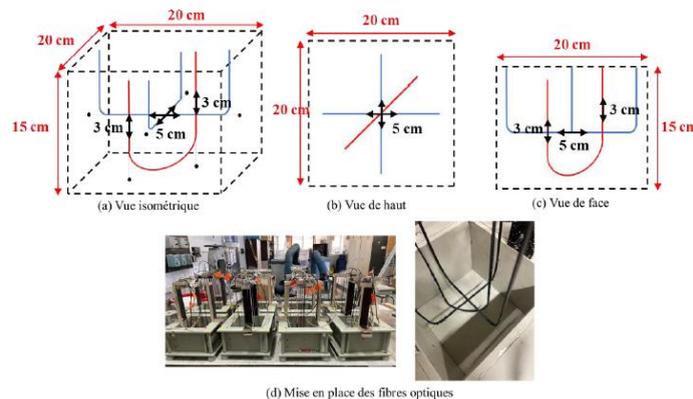


FIGURE 3. Instrumentation des fibres optique dans les 3 directions du moule

B. Conditions Thermo-Hydro-Mécanique (THM)

Les conditions thermo-hydro-mécaniques (THM) sont les suivantes :

- Maintien de la température de conservation dans l'eau : les éprouvettes de béton sont maintenues à deux températures différentes, soit $20^{\circ}\text{C} \pm 1^{\circ}\text{C}$, soit $38^{\circ}\text{C} \pm 1^{\circ}\text{C}$. La solution de conservation est chauffée à 38°C à l'aide d'une résistance de chauffe-eau électrique d'une puissance de 100 W ou 200 W, selon le volume d'eau à chauffer. Un thermomètre est immergé dans l'eau pour surveiller en permanence sa température. Les éprouvettes maintenues à une température de 20°C sont placées dans une salle climatisée à cette même température.
- Application des conditions mécaniques : deux types de bâtis de fluage en compression ont été utilisés pour réaliser les essais du programme expérimental : des bâtis de fluage uniaxial déjà disponibles au LMDC et des dispositifs de fluage biaxial mis au point spécifiquement pour cette étude.

III. PRESENTATION ET EXPLOITATION DES RESULTATS

Dans cette partie, seuls les résultats des bétons B11 et B11+TT seront présentés. Les essais sur T11 et T11+TT sont toujours en cours. Pour le béton B11, la résistance à la compression varie entre 37,6 MPa et 43,9 MPa suivant les coulages, tandis que pour le béton B11+TT, les valeurs se situent entre 23,1 MPa et 31,4 MPa. Pour le béton B11, les valeurs du module de Young varient entre 28,8 GPa et 33,7 GPa pour les différents coulages. En revanche, pour le béton B11+TT, ces valeurs se situent entre 27 GPa et 28,5 GPa. Les variations entre les gâchées de béton s'expliquent par l'hétérogénéité des granulats, ce qui conduit à des résultats dispersés (Hilaire, 2014).

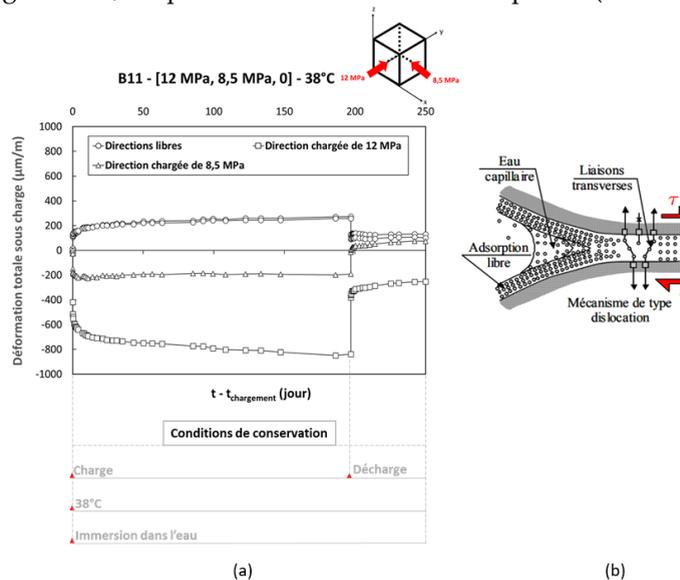


FIGURE 4. (a) Déformation totale sous charge B11 [12 MPa, 8,5 MPa, 0] 38°C (b) Mécanisme du fluage propre à long terme (Ulm et al., 1999)

A. Effet du chargement asymétrique sur un béton sain (le béton B11 de référence)

La FIGURE 4 présente les évolutions des déformations mesurées suivant les 3 directions pour une éprouvette de béton B11 soumise à une charge biaxiale asymétrique de 12 et 8,5 MPa, et maintenue à une température de 38°C dans l'eau. Tout d'abord, ces résultats démontrent la capacité de ces capteurs à fibre optique à mesurer dans de telles configurations d'essais. Au moment de la charge, des déformations élastiques de contraction se produisent dans les deux

directions chargées (12 et 8,5 MPa) alors qu'une déformation élastique d'extension due à l'effet Poisson est mesurée dans la direction non chargée. Une fois la charge maintenue, le phénomène de fluage débute dans les directions chargées. Comme attendu, le fluage dans la direction la plus chargée (12 MPa) est supérieur par rapport à celle moins chargée (8,5 MPa).

Le rapport de fluage entre la direction 8,5 et 12 MPa est éloigné du rapport des contraintes entre la direction 8,5 et 12 MPa. Par conséquent, dans le cas d'un chargement biaxial asymétrique, la direction la plus chargée montre un fluage plus important que le chargement biaxial symétrique, tandis que la direction moins chargée montre un fluage plus réduit que le chargement biaxial symétrique. Cette différence est plus accentuée pour le béton B11+TT.

La cinétique de fluage est élevée à court terme, puis elle s'atténue avec le temps, comme observé habituellement dans le cas d'essais plus classiques de fluage en compression uniaxiale pour des contraintes modérées n'induisant pas de fluage tertiaire. La variation de la cinétique peut être expliquée par le mécanisme du fluage à long terme. L'application de la charge induit une relaxation de la micro-contrainte dans les zones d'adsorptions empêchées situées à l'échelle des nanopores de la pâte de ciment (FIGURE 4(b)). Ce mécanisme entraîne le glissement des feuilles de C-S-H, provoquant une contraction dans le béton. Par la suite, les forces de liaison se relâchent avec le temps, et d'autres sites deviennent alors des sites potentiels de rupture ou de fluage. Ce processus en chaîne épuise successivement les sites de fluage activés par la charge mécanique, conduisant au vieillissement observé dans la cinétique du fluage en fonction de l'âge du matériau (Ulm et al., 1999). En ce qui concerne la direction non chargée, la poursuite de l'extension est observée, attribuable à l'effet Poisson de fluage et à l'absorption d'eau.

Après une période de 200 jours sous charge, l'éprouvette est déchargée, entraînant une recouvrance instantanée se manifestant par une extension dans les directions initialement chargées et une contraction dans la direction libre de charge. Une recouvrance réversible différée se produit ensuite mettant en évidence la part irréversible du fluage.

B. Effet du traitement thermique

Pour les parties à venir, les résultats seront montrés en soustrayant la déformation élastique instantanée des déformations totales sous charge. Cette opération s'avère essentielle pour faciliter l'analyse comparative entre les différentes éprouvettes de béton.

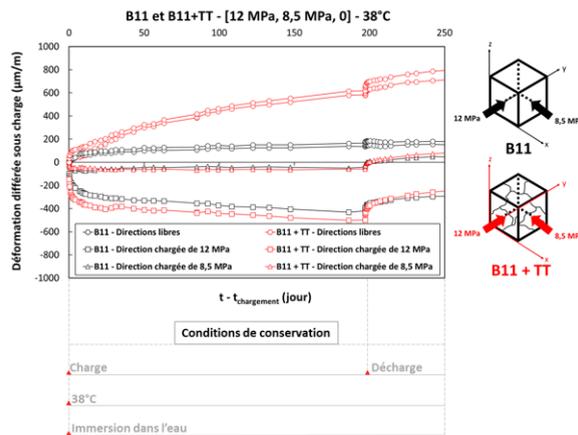


FIGURE 5. Déformation différée sous charge B11 et B11+TT [12 MPa, 8,5 MPa, 0] 38°C

La FIGURE 5 illustre les déformations différées sous charge sur une période de 250 jours pour deux essais de fluage biaxial soumis à des charges asymétriques de 12 MPa et 8,5 MPa, pour les bétons B11 et B11+TT. Ce graphique permet de comparer les résultats de fluage entre le béton de référence et le béton traité thermiquement à un jeune âge. Il est important de noter que les charges asymétriques de 12 MPa et 8,5 MPa ont été choisies, car elles représentent la valeur de la précontrainte appliquée dans les enceintes de confinement.

La FIGURE 5 montre que la déformation de fluage dans la direction la plus chargée, à 12 MPa, est plus prononcée pour le béton B11+TT. Deux hypothèses potentielles peuvent expliquer cette plus grande déformation de fluage du béton B11+TT, mettant en évidence l'impact du traitement thermique au jeune âge sur la déformation de fluage :

- La réduction de la résistance à la compression du béton : Il est essentiel de noter que le traitement thermique entraîne une diminution de la résistance à la compression du béton. Suite au traitement thermique du béton, une dilatation thermique se produit au sein des éprouvettes. Cependant, du fait que le coefficient de dilatation thermique de la pâte de ciment est plus élevé que celui des granulats, une dilatation différentielle se manifeste, entraînant l'apparition de microfissures à l'interface entre la pâte de ciment et les granulats. Ceci explique la réduction de la résistance à la compression après le traitement thermique au jeune âge (Heinz & Ludwig, 1987).
- La variation des structures de C-S-H : Le fluage à long terme du béton est le résultat de la réorganisation des silicates de calcium hydratés (C-S-H) suite à leur glissement. Le traitement thermique au jeune âge joue un rôle crucial en modifiant la structure et la densité des C-S-H, ce qui a un impact direct sur le comportement de fluage du béton (Sellier et al., 2016).

En revanche, aucune différence significative n'est observée entre les deux types de béton dans la direction la moins chargée (8,5 MPa). Ce comportement s'explique par le fait que le béton traité thermiquement subit une plus grande déformation dans la direction la plus chargée (12 MPa), où la contrainte est plus élevée, et qu'il pourrait compenser cette déformation dans l'autre direction ou dans la direction moins chargée (8,5 MPa).

Concernant, les déformations dans les directions libres non chargées, le béton B11+TT montre une extension significative par rapport au béton B11. De plus, après la décharge à 200 jours, tant dans les directions soumises à des charges que dans les directions libres du béton B11 + TT, on observe une extension légèrement plus importante par rapport aux déformations de recouvrance observées pour le B11. En conséquence, des interrogations surgissent quant au possible développement de la RSI. Afin de confirmer la présence d'ettringite différée (indiquant le développement de la RSI), des analyses au Microscope Électronique à Balayage (MEB) ont été réalisées dans le cadre de cette thèse.

C. Détermination du potentiel de gonflement avec le MEB

Afin de vérifier le développement de la RSI dans le béton B11+TT, des observations au MEB ont été réalisées sur différentes éprouvettes de béton B11+TT ayant subi des conditions de chargement

variées (essais libres de contrainte, essais de chargement uni axial et essais de chargement biaxial). La FIGURE 6 illustre la formation d'ettringite différée à l'interface entre la pâte de ciment et le granulat (FIGURE 6(a)), ainsi que dans la pâte de ciment elle-même (FIGURE 6(b)). Bien que ce test ne soit pas de nature quantitative, les échantillons soumis à une charge biaxiale présentent un niveau significativement plus élevé de fissures et d'ettringite par rapport aux échantillons non soumis à une charge.

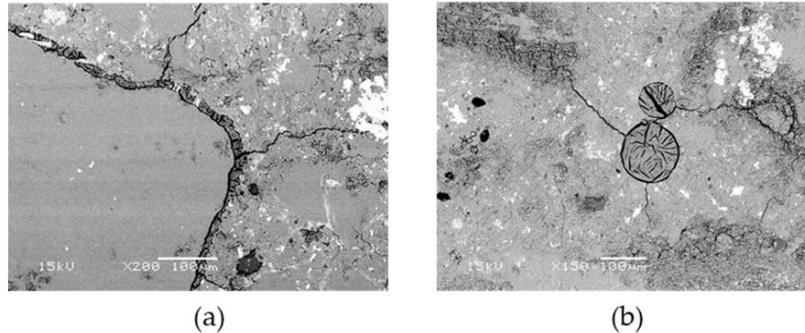


FIGURE 6. Observations au MEB

D. Effet du niveau de chargement

La FIGURE 7 présente les déformations différées sous charge d'un béton de type B11 soumis à deux conditions de chargement : une charge uni-axiale de 8,5 MPa 1D - [8,5 MPa, 0, 0] et une charge bi-axiale asymétrique de 12 MPa et 8,5 MPa 2D - [12 MPa, 8,5 MPa, 0], à une température de 38° C. Pour le chargement bi-axiale, seule la direction chargée à 8,5 MPa est montrée sur la FIGURE 7.

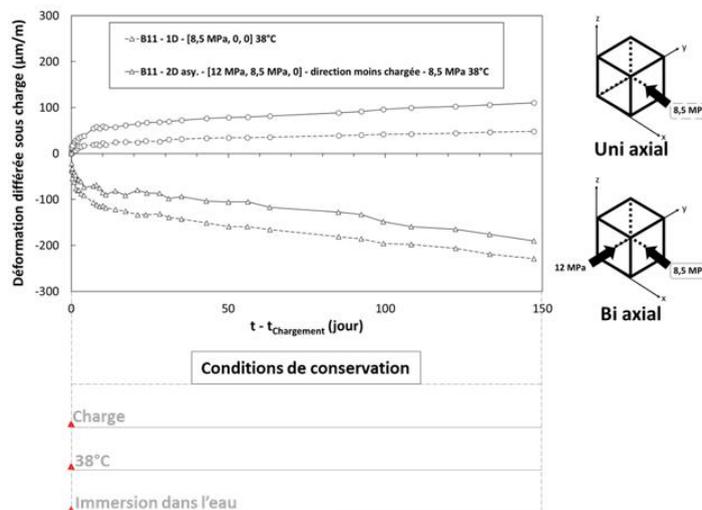
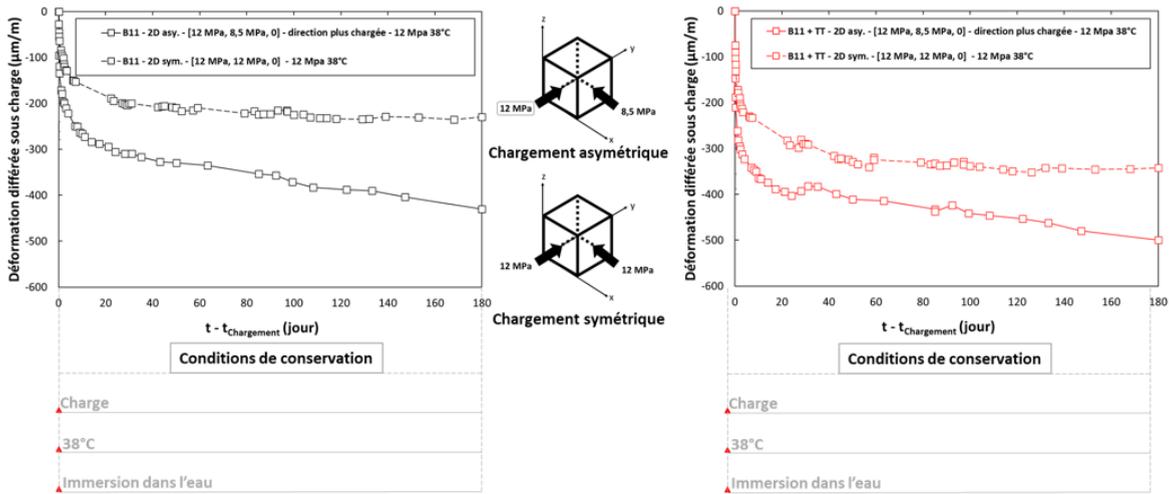


FIGURE 7. Effet du niveau de chargement B11

Les résultats indiquent que la déformation en fluage uni axial (à 8,5 MPa) est plus importante que celle en fluage biaxial (avec la direction chargée à 8,5 MPa). Il convient de noter que le fluage biaxial dans la direction chargée à 8,5 MPa est réduit en raison de la compensation causée par la deuxième direction chargée à 12 MPa. Par conséquent, l'effet de Poisson pour le fluage biaxial entre les directions chargées réduit les déformations en fluage. En conclusion, la déformation en fluage biaxial est réduite par rapport au fluage uni axial.

E. Effet de l'anisotropie du chargement



FIGURES 8. Effet de l'anisotropie du chargement 2D symétrique et 2D asymétrique

Les FIGURES 8 présentent les déformations différées sous charge dans deux conditions de chargement pour les bétons B11 et B11+TT : une charge biaxiale symétrique de 12 MPa 2D - [12 MPa, 12 MPa, 0] et une charge biaxiale asymétrique de 12 MPa et 8,5 MPa 2D - [12 MPa, 8,5 MPa, 0], à une température de 38 °C. Dans le cas du chargement asymétrique, le graphique ne montre que la direction la plus chargée (12 MPa). Ainsi, la comparaison se fait désormais entre deux éprouvettes soumises à une charge de 12 MPa, l'une de manière symétrique et l'autre de manière asymétrique. Les résultats indiquent que le fluage en condition asymétrique est plus prononcé que le fluage en condition symétrique dans ce contexte.

Pour l'éprouvette soumise à une charge symétrique, les deux directions chargées à 12 MPa ont un effet de report lié au coefficient de Poisson l'une sur l'autre, réduisant ainsi le potentiel de fluage ou le développement complet du fluage dans les directions chargées à 12 MPa. En revanche, dans le cas de l'éprouvette soumise à une charge asymétrique, le fluage dans la direction à 12 MPa est atténué par l'effet Poisson induit par l'autre direction chargée à 8,5 MPa (qui est inférieure à 12 MPa). Cela explique pourquoi, dans ce cas, l'effet du chargement asymétrique dans la direction chargée à 12 MPa est plus important que celui de chargement symétrique. Par conséquent, la déformation de report liée à l'effet Poisson qui existe entre les directions chargées conduit à une modification de la déformation de fluage dans chaque direction.

IV. CONCLUSION

En conclusion, le travail expérimental effectué consiste à évaluer le fluage en compression biaxiale, avec et sans couplage avec des RGI, afin de comprendre les mécanismes et couplages, et de tester, voire améliorer les modèles.

- Un travail effectué s'est concentré sur la validation du dispositif de fluage biaxial et sur la maîtrise de ce nouveau dispositif ainsi que la maîtrise du système d'extensométrie par fibre optique pour obtenir des données originales sur le fluage en compression biaxiale.

Suite à ce programme expérimental, les premiers résultats obtenus peuvent être présentés sous plusieurs aspects :

- Le traitement thermique appliqué au béton pour déclencher la RSI a un impact sur les caractéristiques du matériau, entraînant une diminution de la résistance en compression du béton traité thermiquement. En conséquence, à charge égale, le taux de chargement de fluage d'un béton non traité est plus faible que celui d'un béton soumis au traitement thermique.
- Les résultats obtenus dans ce travail permettent d'établir que le fluage dans une direction chargée ne dépend pas uniquement du chargement appliqué dans cette direction spécifique, mais également des chargements présents dans les autres directions. En d'autres termes, les interactions entre les différentes directions de chargement jouent un rôle crucial dans le comportement du fluage du matériau sous chargement bi-axial.
- L'effet du coefficient de Poisson est particulièrement observable lors d'un chargement bi-axial asymétrique. Dans cette configuration, la direction de chargement la moins sollicitée (8,5 MPa) présente une réduction significative du fluage, tandis que la direction la plus chargée (12 MPa) montre une déformation de fluage beaucoup plus prononcée. En conséquence, la direction la moins chargée joue un rôle essentiel dans la compensation du fluage qui est plus important dans la direction la plus chargée.

REFERENCES

- Charpin, L., Le Pape, Y., Coustabeau, É., Toppani, É., Heinfling, G., Le Bellego, C., Masson, B., Montalvo, J., Courtois, A., & Sanahuja, J. (2018). A 12 year EDF study of concrete creep under uniaxial and biaxial loading. *Cement and Concrete Research*, 103, 140-159.
- Gopalakrishnan, K. S., Neville, A. M., & Ghali, A. (1969). *Creep Poisson's Ratio of Concrete Under Multiaxial Compression*.
- Heinz, D., & Ludwig, U. (1987). Mechanism of secondary ettringite formation in mortars and concretes subjected to heat treatment. *Special Publication*, 100, 2059-2072.
- Hilaire, A. (2014). *Etude des déformations différées des bétons en compression et en traction, du jeune au long terme : Application aux enceintes de confinement*. École normale supérieure de Cachan-ENS Cachan.
- Kim, J.-K., Kwon, S. H., Kim, S. Y., & Kim, Y. Y. (2005). Experimental studies on creep of sealed concrete under multiaxial stresses. *Magazine of Concrete Research*, 57(10), 623-634.
- Kim, J.-K., Kwon, S. H., & Kim, Y. Y. (2006). Analytical studies on creep of sealed concrete under multiaxial stresses using a microplane model. *Magazine of Concrete Research*, 58(1), 9-20.
- Maurin, L., Makil, H., Bourbotte, J.-M., Hamrita, H., Jouvin, G., Kondrasovs, V., Rougeault, S., Cheymol, G., Maskrot, H., & Barbot, L. (2020). Long length SPNDs and Distributed Optical Fiber Sensors for Severe Accident remote monitoring and their contribution to Nuclear Safety in the post-Fukushima context. *SAMMI 2020-OECD/NEA Specialist Workshop on Advanced Measurement Method and Instrumentation for enhancing Severe Accident Management in an NPP addressing Emergency, Stabilization and Long-term Recovery Phase*, 1009.
- Sellier, A., Multon, S., Buffo-Lacarrière, L., Vidal, T., Bourbon, X., & Camps, G. (2016). Concrete creep modelling for structural applications : Non-linearity, multi-axiality, hydration, temperature and drying effects. *Cement and Concrete Research*, 79, 301-315.
- Ulm, F.-J., Coussy, O., & Bažant, Z. P. (1999). The "Chunnel" fire. I: Chemoplastic softening in rapidly heated concrete. *Journal of engineering mechanics*, 125(3), 272-282.

Experimental investigation on the threshold saturation degree for the liquefaction potential of unsaturated soil

Youssef Shamas ^{1,2}

¹ INSA Rouen Normandie, Normandie Univ, LMN UR 3828, F-76000, Rouen, France

² Normandie Université, UNIHAVRE, Laboratoire Ondes et Milieux Complexes, CNRS UMR 6294, Le Havre, France

RESUME La liquéfaction est un phénomène dangereux observé principalement dans les sols sans cohésion, est bien documentée dans des conditions de pleine saturation. Cette étude explore le potentiel de liquéfaction du matériau de sable Hostun RF sous chargement dynamique dans un appareil triaxial. L'objectif de cette étude se concentre sur l'analyse du potentiel de liquéfaction du matériau de sable Hostun RF sous chargement dynamique dans un appareil triaxial. Trois tests, avec une contrainte effective initiale de 100 kPa, examinent l'influence de la densité du sol et du degré de saturation sur le potentiel de liquéfaction. Le premier test, présentant une densité relative de 71% et un degré de saturation de 96%, représente un échantillon relativement dense. Le deuxième test, avec une densité relative initiale de 55% et un degré de saturation de 85%, montre une liquéfaction sous des charges dynamiques contrôlées par la déformation dans des conditions non drainées. En revanche, le troisième test explore un échantillon peu saturé avec une densité relative de 55% et un degré de saturation initial de 62%, ne révélant aucune potentialité de liquéfaction même après 50 cycles de charge appliquée. Ces résultats suggèrent l'existence d'un seuil de degré de saturation pour la liquéfaction du sable, influencé à la fois par la densité relative initiale.

Mots-clefs Liquéfaction, Sol Non-Saturé, Sable Hostun RF, Essai Triaxial Dynamique

I. INTRODUCTION

Liquefaction is a dangerous phenomenon occurring mainly in cohesionless soils. Studies has shown the existence of liquefaction in fully saturated soils. When the pores between the soil particles is fully saturated, under specific loading, liquefaction may commence. When a static or dynamic load is exerted rapidly on the saturated soil, the water in the pores handles the exerted pressure (Seed, Arango and Chan, 1975). This causes the increase in the pore water pressure, leading to increase in pressure applied on the soil particles and push them apart from each other. This leads to the loss in the connection between the soil particles, which start to act as a liquid having no resistance to loading. In other words, during liquefaction, particularly in loose sands, soil particles tend to compress under loading, causing an increase in pore water pressure to match the total pressure. This rapid increase in pore pressure cancels the soil's effective stress, transforming it into a liquid-like state. Real life examples of earthquakes causing liquefaction have

been investigated specifying its enormous danger in inducing damage to roads and buildings due to settlements and tilting (Onoue *et al.*, 2011; Tokimatsu *et al.*, 2019; Report and Borders, 2024).

Various factors such as soil density, depth underground, and saturation degree play a critical role in determining whether liquefaction will take place or not. Previously, studies have shown that liquefaction is related exclusively to fully saturated soils. The uncertainties in numerically simulating the static liquefaction potential of saturated soils are highlighted by Huang *et al.* (Huang *et al.*, 2024). However, recent studies have demonstrated that liquefaction may also occur in unsaturated soils (Takeshi, 1977; Vernay *et al.*, 2015), depending on various and undetermined parameters. Several studies have focused on the liquefaction potential of unsaturated soils, studying different properties such as residual soil strength post-liquefaction (Tran *et al.*, 2022a, 2023), and investigating the impact of saturation degree on the behavior of the sand in a dense state on its liquefaction potential (Tran *et al.*, 2022b).

This study focuses on analyzing different parameters in order to better understand the liquefaction potential of Hostun sand RF material under dynamic loading in a triaxial apparatus. To evaluate the influence of soil density and saturation degree on liquefaction potential, three tests were conducted with an initial effective stress of 100 kPa. The first test involved a relatively dense sample with a relative density of 71% and a saturation degree of 96%. The second test, with an initial relative density of 55% and a saturation degree of 85%, showed liquefaction under strain-controlled dynamic loads in undrained conditions. Wherever, the third test explored an unsaturated sample with an initial saturation degree of 62% and a relative density of 55%, which showed no liquefaction potential even after 50 cycles of applied load. These results suggest that there is a threshold saturation degree for sand liquefaction, influenced by both initial relative density and isotropic consolidation. Moreover, they have significant implications for the understanding and prevention of soil liquefaction in various geotechnical contexts.

II. Materials and Methods

A. Hostun Sand RF

Hostun RF sand is used as a testing reference material in France for analyzing geotechnical properties and specially liquefaction phenomena (Pan, Yang and Cai, 2020). This sand is characterized by clear fine quartz and a uniform grain distribution. Its distribution is found in the liquefiable zone of soils as defined in the literature for the potentially liquefiable soils by Iwasaki (Iwasaki, 1986) (FIGURE 1). Hostun sand is well recognized for its grain-specific weight of 26.2 kN/m³, with a minimum void ratio of 0.648 and a maximum of 1.061 and a friction angle of 40° (TABLE 1). This sand has 10% of its particles with a diameter smaller than 200µm (D₁₀) and 60% of them with a diameter smaller than 400µm (D₆₀) Further information on Hostun RF sand is listed by (Amat, 2007; Goudarzy, König and Schanz, 2018).

TABLE 1. Specifications of Hostun RF Sand

Grain specific weight (kN/m ³)	e _{max}	e _{min}	D ₁₀ (µm)	D ₆₀ (µm)	Friction angle (°)
26.2	1.061	0.648	200	400	40

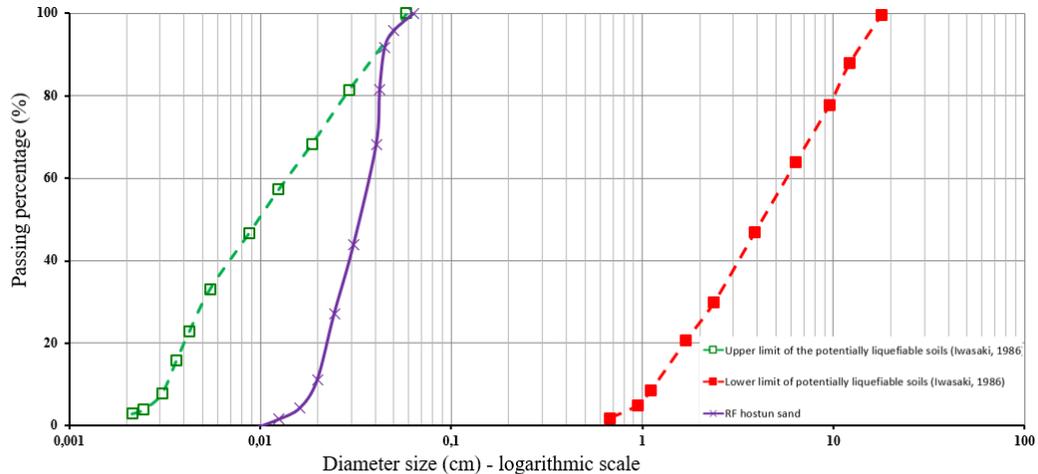


FIGURE 1. Particle Size Distribution of Hostun Sand RF in the potentially Liquefiable Domain (Iwasaki 1986)

B. Sample Preparation

Three different methods are frequently used for reconstructing soil samples in the literature: wet tamping, dry deposition, and water sedimentation. (Amini and Qi, 2000) has found no significant difference in the resistance to liquefaction between soil prepared using wet tamping and sedimentation methods. In this study, wet damping method is employed for its capability to achieve a wide range of relative densities for soil samples. The reconstituted samples are prepared using dried sand with a specific quantity of water to create a mixture with an initial water content of 8%. Then, the mixture is divided into 5 equal layers by mass and compacted layer by layer in a latex membrane placed inside a mold. The layers are compacted evenly to reach a final specimen of 70mm diameter and 140mm of height controlling the needed relative density.

The sample is reconstructed on the triaxial cell base, with filter paper and a porous stone positioned at both the bottom and top. A top cap is then placed on top of the sample to ensure the proper water drainage system, facilitating flow from the bottom of the sample towards the top.

A flexible latex membrane is used to maintain the sample and to prevent direct contact between the sample and the applied water simulating the confining pressure.

All the steps followed during the sample preparation phase are stated in the FIGURE 2.

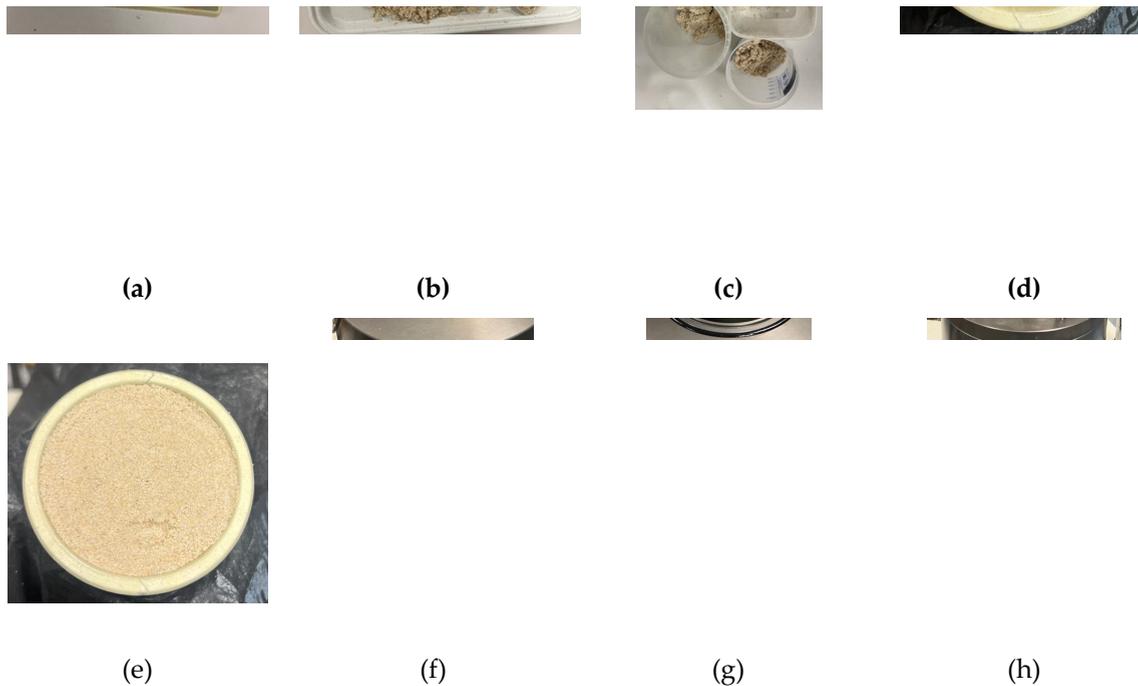


FIGURE 2. Steps for sample preparation

a- Dry sand. b- Mixture of sand and water. c- Division of the mixture into five equal parts. d- First compacted layer. e- Fifth and final compacted layer. f- Sample inside latex membrane with filter paper, porous stone and filter paper on the bottom and top of the sample. g- horizontality verification of the sample. h- Placing the cell and the axial transducer.

C. Dynamic Triaxial Apparatus

Dynamic Triaxial apparatus is used to simulate the application of an earthquake in soils. The earthquake waves typically have an impact on wide area, preventing water from draining quickly even in sandy soils with good permeability. One approach to replicate these circumstances involves subjecting the sample to cyclic loading in the undrained condition within a triaxial cell.

In order to replicate the actual soil conditions in the underground, the confining pressure experienced by soil at different depths underground is simulated by applying a pressure on the sample using water. An elastic latex membrane is employed to prevent direct contact between the sample and the water responsible for applying the confining pressure. The confining pressure is controlled by a Pneumatic Automatic Pressure Controller (PAPC). Additionally, the sample's saturation degree is monitored and regulated using a Hydraulic Automatic Pressure Controller (HAPC). This latter is used for applying the back pressure on the sample and recording the water volume changes. This back pressure is applied from both ends of the sample, and the pore water pressure is measured at the bottom using another transducer. Shamas et al. (Shamas *et al.*, 2024) have documented and analyzed the uncertainties associated with these experimental apparatuses.

III. Test Procedure

The initial step involves achieving the necessary initial saturation degree for the sample. This is done by flowing de-aired water from the bottom to the top of the sample, while applying a small cell pressure around it to maintain a constant effective stress. This process effectively removes most of the large air bubbles from the sample. Subsequently, a simultaneous increase in both back and cell pressure is applied until a specific volume change in water is reached corresponding to the volume change in the air inside the sample. This ensures having the required saturation degree, which is confirmed through a B-check that examines the measured change in pore pressure relative to a given change in cell pressure.

Next, the sample undergoes consolidation by maintaining the reached back pressure and increasing the cell pressure to establish a difference of 100 kPa between the applied pore pressure and cell pressure. When a stable volume change is reached, an undrained dynamic test is done on the sample under strain-controlled conditions. Seed and Idriss (SEED, H. B., & IDRIS, 1982) observed that the predominant direction of wave propagation is in the vertical orientation. In this study, a dynamic axial load is imposed on the sample by controlling a dynamic axial strain on the sample. The double amplitude of this applied strain starts with 2% as constant for 10 consecutive cycles with a frequency of 0.0125Hz or 0.00625Hz. However, if the sample is not liquefied, the double amplitude of the strain is increased to 3% for ten consecutive cycles. Same goes after that for 4% and then for the double amplitude (DA) of 5%. The latter is applied until reaching an asymptote in pore pressure change (Figure 3). A silicone funnel is used on top of the sample to apply suction between the piston and the sample, combining them together during the dynamic test. Hence this combination allows the application of the double amplitude with compressive and tensile axial strain, without affecting the sample itself.

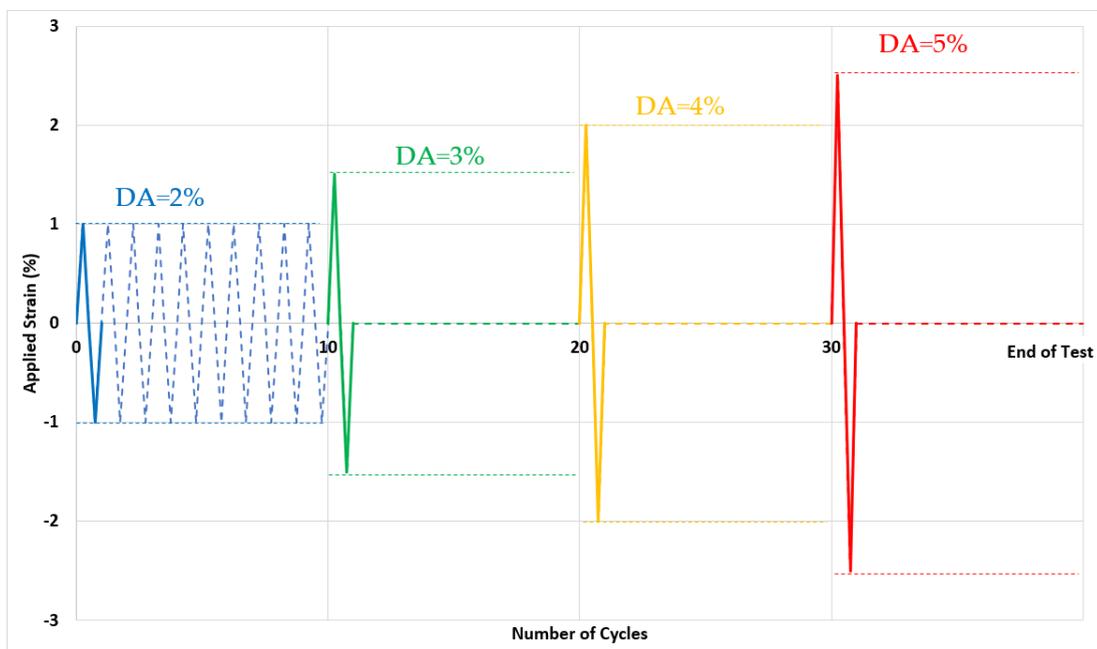


FIGURE 3. Strain-controlled cyclic loading

Following this liquefaction test, the sample is reconsolidated by removing the excess pore water pressure accumulated during the applied loading. Finally, a second ramp is done where the sample attains a fully saturated state. The full saturation is verified by a second B-check with a B-value exceeding 0.95 (Chaney, 1978). The sample is then removed, and its final state is determined from the calculated water content (FIGURE 4). The state of the sample and its saturation degree in each phase is confirmed using these final data combined with the recorded volume change in the pressure controllers.

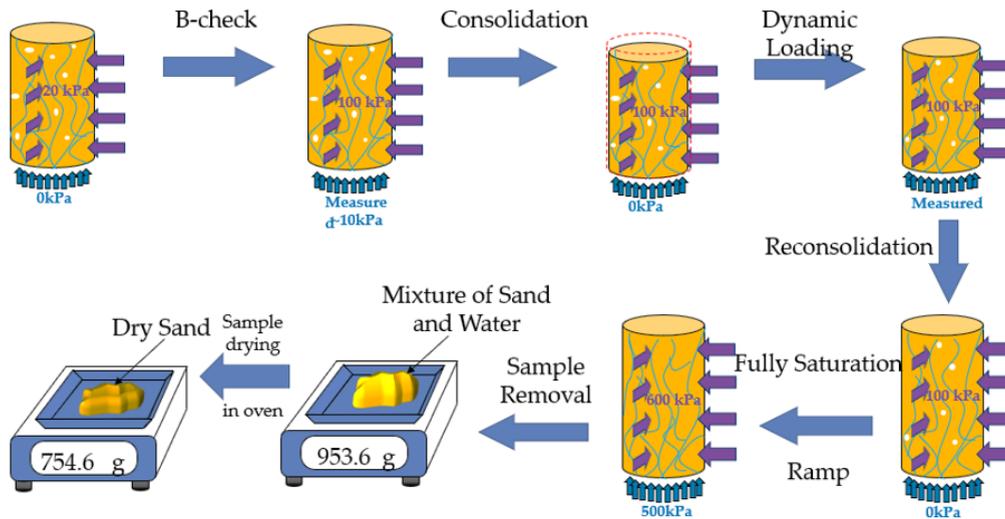


FIGURE 4. All steps followed during the test

For a sample with an initial saturation degree of 60%, a different technique is followed. This sample is directly placed in the triaxial test using the wet damping method, ensuring its required initial saturation degree. Consequently, the test starts directly from the third step in the previous listed phases, which is the B-check. Subsequently, all other steps follow the same procedure.

IV. Results and Discussion

A test is considered to be liquefied when the pore pressure is increased to reach the applied confining pressure. In other words, when the effective stress reaches zero, the sample is in liquefaction state.

It's significant that in specific tests, where only a 2% double amplitude is applied, the sample liquefies in less than 10 cycles. On the other hand, some tests require more cycles, reaching a 4% in double amplitude of applied strain, a total of 27 cycles are needed to reach the liquefaction. However, there is a case where a sample, despite reaching a 5% amplitude in applied strain corresponding to 17 cycles under this applied strain (or 47 cycles from the beginning of the loading phase), does not show any liquefaction potential.

Two tests with different initial relative densities exhibit liquefaction. Whereas, one test with a 56% relative density, before the dynamic load, and a low initial saturation degree does not present any liquefaction behavior. The summarized results of the tests are presented in TABLE 2.

TABLE 2. Summary of the performed tests

Test Number	Initial Void ratio	Initial relative density (%)	Initial saturation degree (%)	Number of applied cycles	Test Result
1	0.83	55	85	27	Liquefaction
2	0.82	56	62	47	No Liquefaction
3	0.76	71	96	7	Liquefaction

The sample in test 3 with an initial relative density of 71% reaches liquefaction rapidly, at the seventh cycle, with only using the strain load of a double amplitude of 2%. The saturation degree for this specimen, recorded before the undrained test, is 97.8% (after the consolidation step and before loading phase). Despite being highly saturated but not fully saturated, this condition facilitates the liquefaction of the sample. Additionally, in the liquefied state, the sample's strength decreases rapidly to reach zero (FIGURE 5). This is related to the rapid increase in the pore water pressure, reaching the initial effective stress as depicted in FIGURE 6. All this leads to liquefaction where the soil particles lose their connections. The decrease in the deviatoric stress with respect to the change in the mean effective stress is shown in FIGURE 7. This shows that the initial slope between the deviatoric stress and the mean effective stress has a ratio of 1 to 3 (in path from point a to b in FIGURE 7).

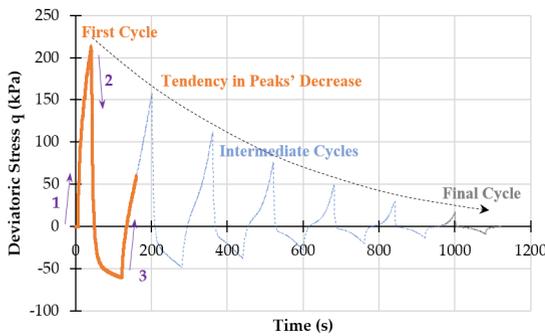


FIGURE 5. Decrease in deviatoric stress along time

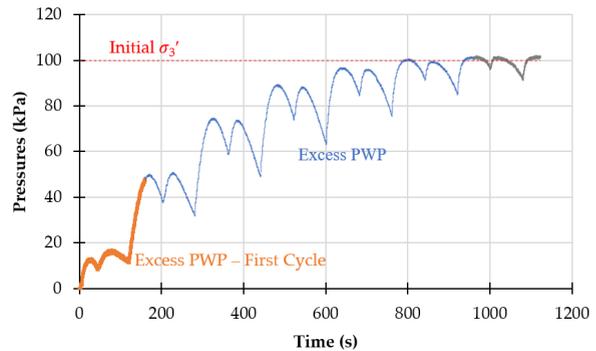


FIGURE 6. Evolution of the Pore Water Pressure to reach the initial effective stress

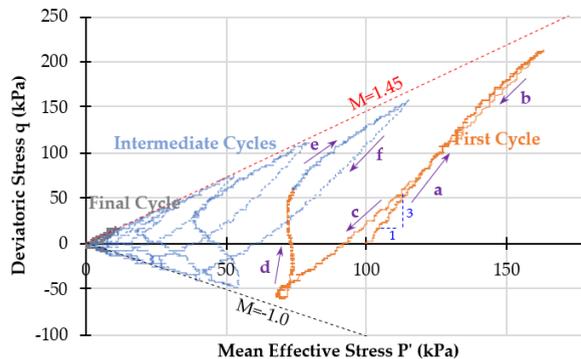


FIGURE 7. Deviatoric stress vs mean effective stress

The second test (Test 2) shows no liquefaction and all the results are presented in FIGURES 8, 9 and 10. The sample has a relative density of 55% and an initial saturation degree of 62% before the undrained test. The test is stopped after a total of 47 cycles (from the beginning of the loading phases), corresponding to 17 cycles under the strain loading of a double amplitude of 5%. FIGURE 8 presents the change in the deviatoric stress with respect to the applied strain with double amplitudes of 2%, 3%, 4%, and 5%, showing the first cycle in each loading step. There is no obvious decrease in the maximum deviatoric stress reached in each loading phase. There is only a slight decrease in the modulus of the sample. The initial stress applied was 100 kPa, while the pore pressure slightly increases, reaching only 12 kPa and stabilizing at this level (FIGURE 9). FIGURE 10 shows clearly the evolution of the pore pressure from 0 to 12 kPa.

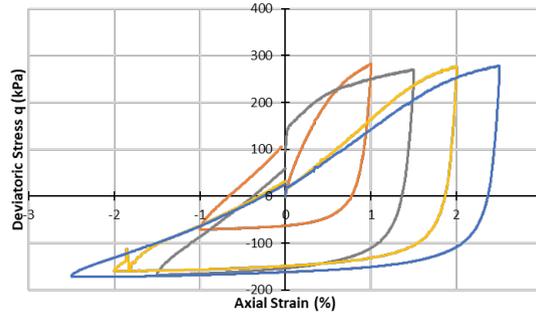


FIGURE 8. Decrease in deviatoric stress along time

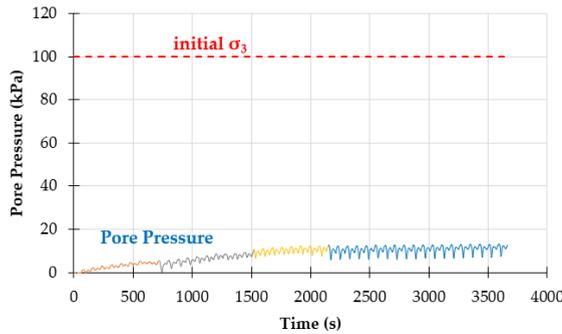


FIGURE 9. Pore pressure change with time

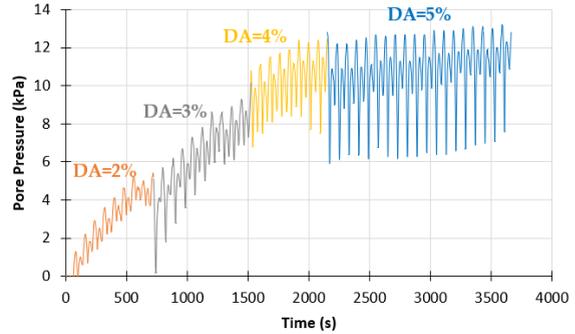


FIGURE 10. Zoom-in to the pressure change zone

V. Conclusion

Several experiments are conducted on reconstituted Hostun RF sand to study liquefaction potential in unsaturated soil, based on specific parameters. The results highlight the critical influence of saturation degree in preventing liquefaction; whereas, unsaturated samples can liquefy under specific conditions. Additionally, relative density emerges as a contributing factor to the material's liquefaction potential. Further research is needed to precisely define the thresholds of these influencing parameters to avoid liquefaction. Furthermore, a comprehensive examination of various parameters simultaneously is essential for discovering their connections and understanding how they influence the liquefaction phenomenon.

This study verifies the existence of liquefaction potential in the unsaturated soils. Moreover, it demonstrates the evolution of the pore pressure during the undrained test to reach liquefaction.

Finally, this study shows that there is a threshold related to many factors, including the saturation degree and relative density, to liquefy or not the soil.

REFERENCES

- Amat, A.S. (2007) 'Elastic Stiffness Moduli of Hostun Sand', *University of Bristol*, (June), pp. 1–61.
- Amini, F. and Qi, G.Z. (2000) 'Liquefaction Testing of', *Manager*, 126(March), pp. 208–217.
- Chaney, R.C. (1978) 'Saturation Effects on the Cyclic Strength of Sands', in. Available at: <https://api.semanticscholar.org/CorpusID:137553265>.
- Goudarzy, M., König, D. and Schanz, T. (2018) 'Interpretation of small and intermediate strain characteristics of Hostun sand for various stress states', *Soils and Foundations*, 58(6), pp. 1526–1537. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.sandf.2018.09.002>.
- Huang, W.H. *et al.* (2024) 'Uncertainties of Numerical Simulation for Static Liquefaction Potential of Saturated Soils BT - Proceedings of the 6th International Symposium on Uncertainty Quantification and Stochastic Modelling', in J.E.S. De Cursi (ed.). Cham: Springer International Publishing, pp. 1–15.
- Iwasaki, T. (1986) 'Soil liquefaction studies in Japan: state-of-the-art', *Soil Dynamics and Earthquake Engineering*, 5(1), pp. 2–68. Available at: [https://doi.org/10.1016/0267-7261\(86\)90024-2](https://doi.org/10.1016/0267-7261(86)90024-2).
- Onoue, A. *et al.* (2011) 'Review of topographic and soil conditions for liquefaction-related damage induced by the 2007 off Mid-Niigata Earthquake', *Soils and Foundations*, 51(3), pp. 533–548. Available at: <https://doi.org/10.3208/sandf.51.533>.
- Pan, K., Yang, Z.X. and Cai, Y.Q. (2020) 'Flow liquefaction potential of loose sand: stress path envelope and energy-based evaluation', *Canadian Geotechnical Journal*, 58(11), pp. 1783–1789. Available at: <https://doi.org/10.1139/cgj-2019-0366>.
- Report, F.P. and Borders, G.W. (2024) 'Noto Hanto (=Peninsula) Earthquake January 1', 6. Available at: https://www.google.com/url?sa=t&rct=j&q=&esrc=s&source=web&cd=&ved=2ahUKEwif1_CI7OeFAxXZRaQEHy-VBCsQFnoECDAQAQ&url=http%3A%2F%2Fwww.hssmge.gr%2FNoto%2520HANTO%25202024%2520Ground%2520Motions.pdf&usg=AOvVaw3KLINrjZII4zAWJFw1vUt&opi=89978449.
- SEED, H. B., & IDRISSE, I.M. (1982) 'Ground motions and soil liquefaction during earthquakes.', *IEEE Industry Applications Magazine*, 13(2), pp. 78–79. Available at: <https://doi.org/10.1109/MIA.2007.322261>.
- Seed, H.B., Arango, I. and Chan, C.K. (1975) 'Evaluation of soil liquefaction potential for level ground during earthquakes: A summary report', p. 113. Available at: <http://www.osti.gov/servlets/purl/7146067>.
- Shamas, Y. *et al.* (2024) 'Uncertainties of Experimental Tests on Cyclic Liquefaction Potential of Unsaturated Soils BT - Proceedings of the 6th International Symposium on Uncertainty Quantification and Stochastic Modelling', in J.E.S. De Cursi (ed.). Cham: Springer International Publishing, pp. 30–41.
- Takeshi, N. (1977) 'NII-Electronic Library Service', *Chemical Pharmaceutical Bulletin*, 57(534), pp.

364–370. Available at: <http://www.mendeley.com/research/geology-volcanic-history-eruptive-style-yakedake-volcano-group-central-japan/>.

Tokimatsu, K. *et al.* (2019) 'Liquefaction-induced settlement and tilting of buildings with shallow foundations based on field and laboratory observation', *Soil Dynamics and Earthquake Engineering*, 124(May 2018), pp. 268–279. Available at: <https://doi.org/10.1016/j.soildyn.2018.04.054>.

Tran, K.-H. *et al.* (2022a) 'Effect of saturation on liquefaction potential and residual strength: laboratory investigation', *European Journal of Environmental and Civil Engineering*, 26(15), pp. 7480–7502. Available at: <https://doi.org/10.1080/19648189.2021.1999333>.

Tran, K.-H. *et al.* (2022b) 'Investigation of the influence of saturation degree on the cyclic behaviour of fine clear sand', *Academic Journal of Civil Engineering*, 40(1), pp. 66–70. Available at: <https://doi.org/10.26168/ajce.40.1.17>.

Tran, K.-H. *et al.* (2023) 'Liquefaction of unsaturated soils- volume change and residual shear strength', *European Journal of Environmental and Civil Engineering*, 27(3), pp. 1144–1164. Available at: <https://doi.org/10.1080/19648189.2022.2075471>.

Vernay, M. *et al.* (2015) 'Etude du comportement des sols non saturés à la liquéfaction'. Available at: <https://hal.archives-ouvertes.fr/hal-01167662>.

Conception et caractérisation de blocs de terre comprimée à base de sédiments de dragage

Sarah NASSAR

Université de Bordeaux, UMR 5295, Institut de Mécanique et d'Ingénierie (I2M), CNRS, Esplanade des Arts et Métiers, 33405 Talence, France

RESUME Le secteur de la construction s'efforce de relever les défis environnementaux actuels de diverses manières. Les blocs de terre comprimée (BTC) semblent être une alternative prometteuse aux éléments de maçonnerie conventionnels. Ils ne sont pas cuits et présentent une inertie thermique permettant de réduire la consommation d'énergie dans les constructions. En parallèle, la valorisation des déchets en tant que matériaux recyclés est une pratique à renforcer pour limiter la quantité de déchets produits mais aussi celle des matières premières utilisées. Chaque année, plusieurs milliers de mètres cubes de sédiments de dragage du bassin d'Arcachon sont stockés dans le but d'être valorisés. Leur utilisation pour la fabrication des BTC est alors d'un double intérêt. La problématique de la variabilité des sédiments a poussé à étudier la compatibilité de plusieurs prélèvements de différents ports du bassin avec les performances visées. De même, l'influence de plusieurs paramètres de fabrication, notamment la pression de compactage, le type et le pourcentage de stabilisant (paillis de lin, chanvre, copeaux de bois) sur la performance des blocs a été étudiée. L'augmentation de la pression de compactage statique permet d'améliorer les propriétés mécaniques et la durabilité notamment pour la résistance à la compression et à la vapeur d'eau. L'intégration de paillis de lin, de chanvre et de copeaux de bois à 0,5%, et 1% a diminué le taux de retrait et amélioré les propriétés mécaniques des blocs. De plus, une analyse environnementale est menée pour évaluer les impacts potentiels du BTC fabriqué.

Mots-clés bloc de terre comprimée, sédiments, valorisation

I. INTRODUCTION

Dans le cadre de la transition écologique, la France s'engage à considérer des pratiques écoresponsables pour réduire l'impact environnemental de toutes ses activités (LOI n° 2020-105 du 10 février 2020 relative à la lutte contre le gaspillage et à l'économie circulaire (1), 2020). L'économie circulaire est reconnue comme l'un des objectifs pour un développement durable. Au niveau du secteur du bâtiment, la construction en terre est une pratique millénaire mais qui gagne actuellement de l'intérêt grâce aux avantages qu'elle présente. Les blocs de terre comprimée (BTC) sont des éléments de maçonnerie à base de terre crue avec ou sans stabilisant. Il s'agit alors de terre peu transformée qui ne nécessite pas une énergie de fabrication importante et d'un matériau non dénaturé donc facilement réversible en fin de vie. En outre, des murs en BTC, dans une habitation, assurent un confort thermique et réduisent ainsi la consommation d'énergie. Ils ont une conductivité thermique comprise entre 0.5 et 2 W/m.K (Van Damme and Houben, 2018). Les BTC sont dix fois plus efficaces que les briques cuites quant à la régulation de l'humidité. De plus, les émissions CO₂ des BTC sont moins importantes que celles des matériaux conventionnels. Elles sont

de l'ordre de 22 kg CO₂/tonne, soit une réduction d'au moins 90% par rapport aux briques et aux blocs béton. (Pacheco-Torgal and Jalali, 2012).

En parallèle, au niveau de l'activité portuaire, des opérations de dragage sont incontournables et engendrent des quantités importantes de sédiments. Ces derniers peuvent être considérés comme une ressource pour plusieurs filières en fonction de leurs caractéristiques. Sur le plan des matériaux de construction, il serait particulièrement intéressant d'explorer la valorisation des sédiments dans les BTC. Peng et al. (Peng et al., 2020) ont employé des sédiments lacustres en Chine pour la production de BTC tandis que Mymrin et al. (Mymrin et al., 2017) ont exploité des sédiments portuaires au Brésil. En France, les réglementations concernant les opérations de dragage évoluent (*LOI n° 2016-816 du 20 juin 2016 pour l'économie bleue*, 2016), incitant ainsi au développement de filières de gestion.

Il existe des recommandations sur la granulométrie et la plasticité des terres destinées à la fabrication des BTC (Houben and Boubekur, 1998). Certains essaient d'adapter leur mélange comme (Serbah et al., 2018) et (Abbou et al., 2020) qui ont rajouté du sable 0/4. En effet, des propriétés satisfaisantes des blocs sont recherchées notamment au niveau de la performance mécanique et la durabilité. La résistance à la compression minimale attendue pour le bloc est de l'ordre de 1 MPa (Mansour et al., 2016). Les chercheurs s'efforcent d'améliorer les propriétés des blocs en les stabilisant, généralement par l'ajout de liant hydraulique (Abbou et al., 2020), d'activateur pour géopolymériser (Omar Sore et al., 2018) ou par ajout de fibres (Danso et al., 2015). Le choix du type de stabilisation devrait aussi être adapté à la nature du sol (Firoozi et al., 2017).

Par ailleurs, l'évaluation écologique du bloc va dépendre du type et pourcentage de stabilisation. Van Damme and Houben (Van Damme and Houben, 2018) critiquent la stabilisation notamment du point de vue environnemental. Ainsi, une évaluation de cet impact doit être investiguée par une analyse de cycle de vie (Fabbri et al., 2022).

Les sédiments du bassin d'Arcachon en France font l'objet de cette étude. La possibilité de les valoriser dans la fabrication de BTC est investiguée. Des blocs non stabilisés et d'autres incorporant des additions végétales à plusieurs pourcentages sont fabriqués et testés au niveau de leur résistance à la compression et leur perméabilité à la vapeur d'eau. L'impact environnemental des blocs est aussi évalué.

II. MATERIAUX ET METHODES

A. Matériaux

Les blocs de terre comprimée sont fabriqués à partir de sédiments de dragage du bassin d'Arcachon, situé dans le sud-ouest de la France. Des prélèvements effectués dans huit ports différents sont soumis à des essais géotechniques en laboratoire (Nassar et al., 2023) pour évaluer leur adéquation à la production des BTC (Houben and Boubekur, 1998). Les sédiments du port d'Audenge sont retenus et leurs propriétés sont présentées dans le tableau 1. Ajoutons que la quantité d'eau est un paramètre critique qui affecte les propriétés du mélange. Au laboratoire, les sédiments sont séchés à l'air libre et des blocs cubiques de 10cm de côté à des teneurs en eau différentes sont fabriqués. Il s'agit de retrouver le pourcentage d'eau auquel correspond la densité

sèche maximale et ceci pour un compactage statique allant de 2 à 10 MPa. La teneur en eau optimale trouvée est de 18% pour les pressions de compactage considérées dans cette étude (partie II.B).

D'autre part, des additions végétales sont incorporées dans les mélanges. Il s'agit de paillis de lin et de chanvre et des copeaux de bois. La longueur des particules est étudiée à l'aide du logiciel ImageJ suivant les recommandations de (Amziane et al., 2017). Leurs propriétés sont évaluées et présentées dans le tableau 2.

TABLEAU 1. Caractéristiques des sédiments

Caractéristiques	Propriétés	Sédiments d'Audenge
Granularité NF EN ISO 17892-4	Gravier (2-5 mm) (%)	2,7
	Sable (0.02-2 mm) (%)	50,9
	Limon (0.002-0.02 mm) (%)	23,2
	Argile (<0.002mm) (%)	23,2
Limites d'Atterberg NF EN ISO 17892-12	Limite de liquidité (%)	36
	Limite de plasticité (%)	26
Argilosité	Indice de plasticité (%) NF EN ISO 17892-12	10
	Valeur de bleu de méthylène VBS (g/100g sol) NF EN 17542-3	2,6

TABLEAU 2. Caractéristiques des additions végétales

	Longueur (mm)	Absorption d'eau
Paillis de lin	5-15	320%
Paillis de chanvre	1-10	322%
Copeaux de bois	5-8	98%

B. Formulations et fabrication

Des blocs cubiques de 10 cm de côté sont fabriqués à la teneur en eau optimale. Les mélanges sont placés dans un moule conçu au laboratoire et sont comprimés à l'aide d'un piston par une presse électrique délivrant une force arrivant jusqu'à 100 kN. Les pressions de compactage considérées sont 2, 4, 6 et 10 MPa pour étudier l'effet de la pression de compactage. De plus, pour une pression de 4 MPa, des paillis de lin et de chanvre et des copeaux de bois sont incorporés à 0,5% et 1,0% de la masse sèche de la terre. Les BTC confectionnés sont placés dans une salle conditionnée à une température de 20°C et une humidité relative de 50%.

C. Essais de caractérisation

La résistance à la compression est la propriété la plus recherchée des BTC (Turco et al., 2021). Elle est investiguée sur des blocs de masse stabilisée à l'aide d'une presse électrique. Trois échantillons de chaque mélange sont testés. Les blocs sont placés entre deux plaques en téflon pour éviter le frottement (Olivier et al., 1997) et une force est appliquée en continu à 2 mm/min jusqu'à rupture de l'échantillon. Les blocs sont testés dans la direction de compactage.

Une autre propriété assez intéressante est le caractère hygroscopique du matériau, examiné dans le cadre de cette étude à travers la perméabilité à la vapeur d'eau, selon ("NF EN ISO 12572," 2016). Il s'agit d'imposer un gradient de pression partielle de vapeur et de tester la capacité du matériau à transporter la vapeur d'eau. Pour cet essai, les blocs ont une section de 10 cm*10 cm mais une hauteur de 2 cm afin de minimiser le temps de stabilisation (Figure 1). Chaque bloc est placé au-dessus d'une coupelle où une humidité relative de 80% est imposée par une solution saline saturée de sulfate d'ammonium. Pour assurer l'étanchéité des parois et avoir un flux unidirectionnel, l'éprouvette est bien scellée à la coupelle par du silicone et ses bords sont couverts par un ruban adhésif en aluminium. L'assemblage est placé dans une enceinte régulée à 20°C et 50% d'humidité relative. La réponse gravimétrique des éprouvettes permet de calculer leur perméance (W) à la vapeur d'eau et en déduire leur perméabilité (δ), exprimée en (kg/m.s.Pa) suivant l'équation (1) avec (d), en mètres, étant l'épaisseur de l'éprouvette et (W) exprimée en (kg/m².s.Pa).

$$\delta = W \times d \quad (1)$$



FIGURE 1. Assemblages de l'essai de perméabilité à la vapeur d'eau

D. Evaluation environnementale

Une analyse de cycle de vie (ACV) est menée sur le logiciel « SimaPro » pour évaluer l'impact environnemental des blocs fabriqués, du berceau à la porte. Les étapes considérées sont alors l'extraction des matières premières, le transport et la fabrication. L'unité fonctionnelle choisie est un BTC cubique de 10cm de côté assurant une résistance à la compression de l'ordre de 3,5 MPa.

Les matériaux et procédés considérés reposent sur les bases de données EcoInvent ("Ecoinvent Database," 2020), Agribalyse 3.1.1 ("Agribalyse 3.1.1," 2023) et de la Confédération Européenne du Lin et du Chanvre ("Alliance for European Flax-Linen & Hemp," 2022). L'impact est étudié à l'aide de la méthode d'évaluation de la Commission Européenne PEF - Product Environmental Footprint.

D'autre part, l'intérêt environnemental des BTC réside aussi au niveau du confort thermique (Van Damme and Houben, 2018) qu'ils assurent dans les habitations et qui engendre la réduction de la consommation énergétique des usagers. Une simulation thermique est alors lancée sur le logiciel « Pléiades » pour investiguer ces consommations.

III. RESULTATS

A. Résistance à la compression

La résistance à la compression (R_c) est évaluée pour étudier l'effet de la pression de compactage et du type et pourcentage de fibres. Les résultats sont montrés dans les figures 2 et 3.

Selon la figure 2, la pression de compactage conditionne la résistance à la compression des blocs. Pour des pressions plus importantes, la contrainte maximale atteinte est plus élevée. Ceci a aussi été observé par Taallah et al (Taallah et al., 2014) pour leurs blocs stabilisés par du ciment. En effet, une plus grande pression de compactage permet de réduire la porosité et d'améliorer la densité. En outre, les BTC testés présentent une stabilité mécanique acceptable ayant des résistances dépassant 1 MPa (Mansour et al., 2016). Une étude sur la résistance de l'assemblage serait aussi importante (Fabbri et al., 2022).

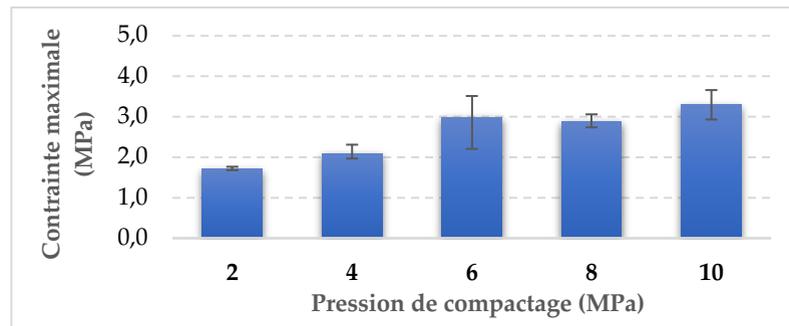


FIGURE 2. Effet de la pression de compactage des BTC non stabilisés sur la résistance à la compression

D'autre part, les blocs compactés à 4 MPa sont stabilisés et leur performance mécanique est montrée dans la figure 3. Une amélioration remarquable est notée avec l'incorporation de paillis de lin et de chanvre et des copeaux de bois. Toutefois, une addition de 1% est moins efficace que celle de 0,5%.

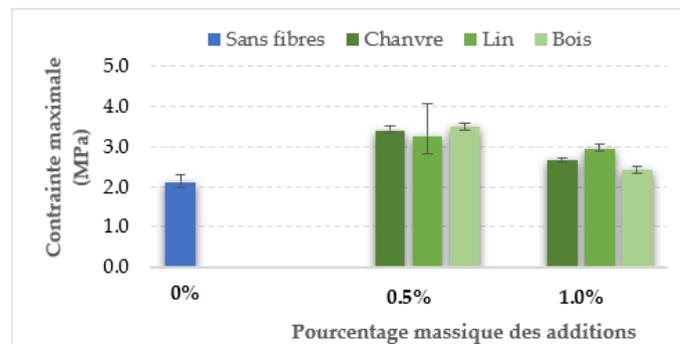


FIGURE 3. Effet du type et pourcentage d'additions sur la résistance à la compression des blocs comprimés à 4MPa

Cette tendance a été observée aussi par d'autres chercheurs. Eslami et al. (Eslami et al., 2022) ont rajouté des fibres de palme à leurs adobes et ont retrouvé un pourcentage optimal de 0,25% pour lequel la résistance est maximale. Selon les résultats de la figure 3, les trois types d'additions à 0,5% présentent des résistances équivalentes mais une variabilité est notée avec les paillis de lin. Ceci peut s'expliquer par la variabilité des sédiments et celle des longueurs des fibres de lin. Quant à l'addition à 1%, elle a été plus avantageuse avec le lin et moins avec le bois. En fait, les fibres permettent aussi de limiter la propagation de la fissuration par pontage et leur longueur peut jouer un rôle comme peut être le cas du lin avec des longueurs plus importantes que le bois dans cette étude. Danso et al. (Danso et al., 2015) ont utilisé trois types de fibres pour deux sols différents et ont aussi expliqué l'augmentation de la résistance par une bonne adhérence fibres - matrice et le frottement entre eux. Toutefois, pour un certain ratio, la présence de fibres n'est plus bénéfique

comme ils peuvent s'enchevêtrer et ne plus bien adhérer à la matrice avec une augmentation de la zone de transition interfaciale et par la suite devenir moins efficaces voire défavorables. Certains chercheurs ne trouvent pas d'intérêt à l'ajout de fibres pour améliorer la résistance à la compression et retrouvent même une diminution de cette résistance comme avec l'ajout du coton (Algin and Turgut, 2008). Cependant, les fibres confèrent une plus grande ductilité (Paul et al., 2023) aux éprouvettes.

B. Perméabilité à la vapeur d'eau

Le facteur de résistance à la vapeur d'eau, noté μ , est calculé à partir de la perméabilité du matériau à la vapeur d'eau (δ) et la perméabilité de l'air à la vapeur d'eau (δ_{air}), comme montré dans l'équation (2).

$$\mu = \frac{\delta_{air}}{\delta} \quad (2)$$

Les facteurs couramment observés pour les BTC varient généralement entre 6 et 15 (Haffar, 2021). Des résultats appartenant à cet intervalle sont observés dans la figure 4. Tout d'abord, la perméabilité des éprouvettes est évaluée pour étudier l'effet de la pression de compactage. L'augmentation de cette pression entraîne une diminution de la perméabilité des éprouvettes. En effet, cette propriété révèle la porosité du matériau et sa tortuosité (Romano et al., 2021). Les BTC compactés à une plus grande pression sont plus denses et présentent moins de porosité et donc sont moins perméables à la vapeur d'eau.

D'autre part, pour une même pression de compactage de 4 MPa, l'effet du type et pourcentage des additions végétales est étudié. Pour un même type de fibres, l'augmentation du ratio entraîne une variation relative du facteur de résistance et les éprouvettes avec 1% d'additions sont légèrement plus perméables à la vapeur d'eau par rapport aux BTC non fibrés, sans avoir un véritable impact. En présence de fibres, la perméabilité est due à la zone de transition interfaciale des fibres dans la matrice et à la tortuosité des pores connectant les fibres (Romano et al., 2021). De plus, les fibres elles-mêmes ne sont pas imperméables et ne présentent pas de facteurs de résistance importants (Buratti et al., 2020). Des fractions massiques plus importantes pourraient présenter un effet plus marquant.

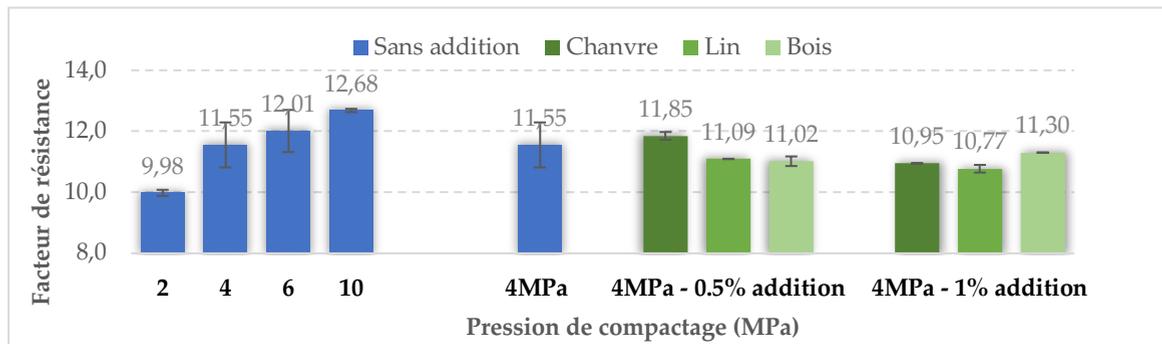


FIGURE 4. Effet de la pression de compactage et du type et pourcentage d'additions sur le facteur de résistance à la vapeur d'eau

Ajoutons que le type de fibres joue également un rôle sur la perméabilité en fonction de leur propre résistance, de leur taille ainsi que de leur enchevêtrement et la connectivité des pores dans

la matrice. A noter que la nature de la terre, sa fraction argileuse et sa minéralogie ont un effet sur les propriétés de transport (McGregor et al., 2016).

La perméabilité des BTC est une propriété importante qui signale le risque de condensation si le matériau ne présente pas une bonne respirabilité (Romano et al., 2021) lui permettant de faire rentrer et ressortir la vapeur d'eau. De plus, les constructions en terre sont reconnues pour leur capacité à réguler passivement l'humidité et assurer un confort. Ainsi, ils vont absorber l'excès d'humidité et la relarguer quand l'humidité baisse afin d'établir un équilibre (McGregor et al., 2016). Cela réduit les consommations d'énergie des systèmes de ventilation et de chauffage (Osanyintola and Simonson, 2006) et est investiguée dans le paragraphe III.C. Par contre, le béton, par exemple, ne possède pas cette propriété de régulation et présente un facteur de résistance dépassant 200 (Kuenzel, 1995). La qualité de l'air intérieur est de grande importance et affecte la vie quotidienne des occupants et leur productivité (Fabbri et al., 2022; Kuenzel, 1995). Toutefois, les propriétés hygroscopiques de la terre vont affecter d'autres propriétés du matériau comme la conductivité thermique et la résistance mécanique. Champiré et al. (Champiré et al., 2016) ont étudié la performance mécanique de BTC non stabilisés à différentes conditions d'humidité. Leurs résultats mettent en évidence l'influence de l'humidité et ils incitent à considérer un facteur de sécurité dans cette évaluation.

C. Evaluation environnementale

Les procédés de fabrication du BTC avec les entrées et les sorties sont montrés dans la figure 5 où le cadre de l'ACV est bien défini.

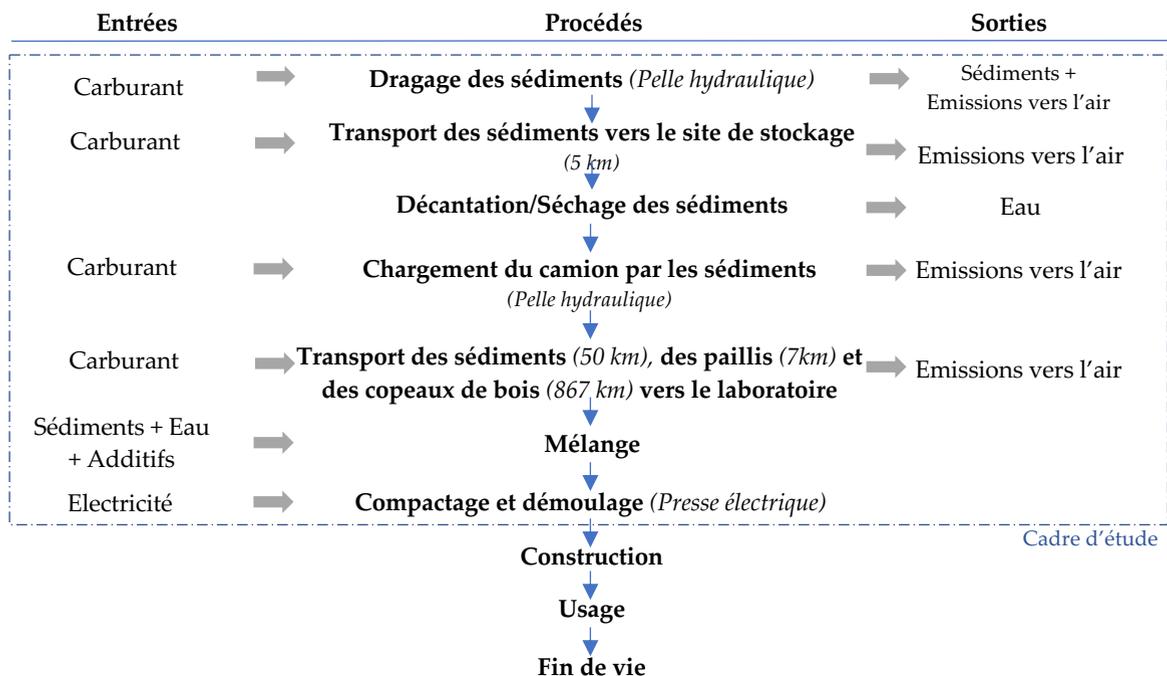


FIGURE 5. Diagramme des entrées et sorties des procédés du cadre d'étude du BTC

Le BTC étudié est à base de sédiments de dragage qui sont des déchets valorisés. Ainsi, leur extraction n'est pas due à la production des BTC mais il s'agit d'une opération inévitable. Néanmoins, pour cette analyse, l'extraction est incluse pour considérer le cas le moins favorable

(Monteiro et al., 2024). Les sédiments sont prélevés par dragage mécanique et acheminés vers un site de stockage à l'air libre pour ensuite être transportés au laboratoire. La quantité d'eau est optimisée et le mélange est soumis à un compactage statique par une presse électrique. Les carburants et les émissions vers l'air montrés dans la figure 5 sont spécifiés dans les bases de données et inclus dans les procédés.

A noter que la quantité d'eau ajoutée au laboratoire dépend de l'humidité initiale des sédiments au moment de leur réception, qui est fonction des conditions climatiques sur le site de stockage et de la durée de stockage. Des sédiments peu humides ont été réceptionnés dans ce cas mais une étude de sensibilité pourrait être menée. La figure 6 présente des résultats d'impacts globaux des BTC de cette étude, fabriqués au laboratoire.

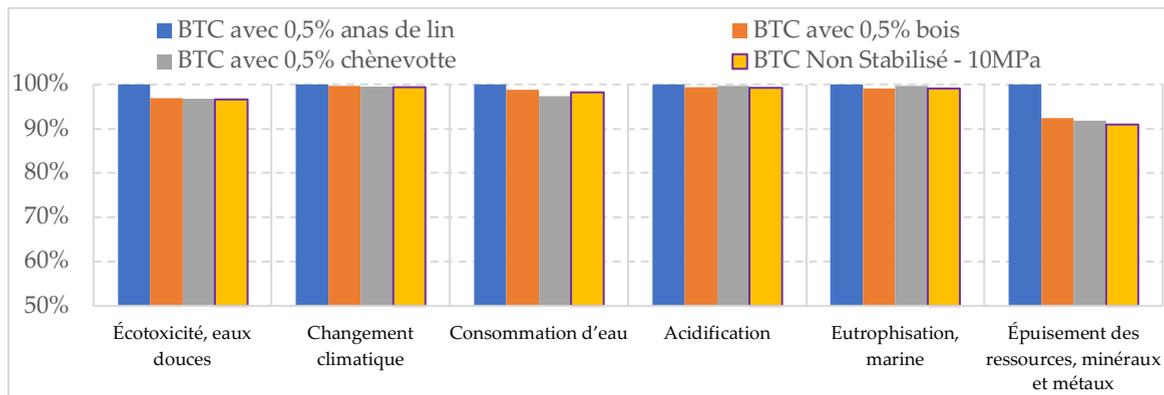


FIGURE 6. Comparaison relative des BTC pour quelques catégories d'impact

Des différences minimales sont notées pour les catégories d'impact présentées, notamment pour le changement climatique. Le BTC avec 0,5% d'anas de lin semble relativement plus impactant pour d'autres catégories comme la consommation d'eau, l'épuisement de ressources minérales et métaux et l'écotoxicité d'eaux douces. Une analyse de contribution est indispensable pour mieux comprendre les résultats et proposer des possibilités d'amélioration. L'opération de dragage a été la plus impactante et est responsable de plus de 50% des émissions CO₂. Quant aux distances de transport, elles peuvent être réduites par la délocalisation du site de fabrication vers un endroit proche du site de stockage avec l'usage de fibres locales.

Par ailleurs, une chambre est simulée avec des murs en BTC non stabilisés, ayant les caractéristiques identifiées au laboratoire comme la résistance à la vapeur d'eau discutée dans cet article et une conductivité thermique de 0.7 W/m.K. Des variantes (Aide-mémoire du thermicien, 1987) du matériau sont testées pour la même paroi et une diminution des besoins de chauffage, de 21% par rapport au béton et de 12% par rapport à la terre cuite, est obtenue avec ces BTC.

V. CONCLUSIONS

En conclusion, les BTC sont une alternative assez intéressante pour la maçonnerie lui assurant une stabilité mécanique. L'optimisation du compactage et de la stabilisation éco-responsable permet de répondre aux besoins du bâtiment. Les sédiments de dragage sont une ressource potentielle pour les matériaux de construction. Leur variabilité granulométrique permet de les valoriser dans différents matériaux. Dans cette étude, les sédiments du port d'Audenge du bassin d'Arcachon

correspondent bien aux convenances des BTC. Des propriétés mécaniques et hygroscopiques sont présentées tout en étudiant les effets de la pression de compactage et du type et pourcentage des additions végétales ajoutées. L'augmentation de la pression et la présence de fibres sont avérées bénéfiques avec certaines limitations. Le pourcentage de fibres doit être optimisé pour aboutir à de meilleurs résultats en résistance mécanique. L'évaluation environnementale des blocs est indispensable. Une étude de la fin de vie du matériau est nécessaire pour compléter l'ACV et d'autres propriétés seront étudiées comme l'absorption capillaire, la résistance à l'abrasion, etc., pour investiguer la performance des blocs et leur durabilité.

REFERENCES

- Abbou, M., Semcha, A., Kazi-Aoual, F., 2020. Stabilization of compressed earth block clayey materials from Adrar (Algeria) by lime and crushed sand. *J. Build. Mater. Struct.* <https://doi.org/10.34118/jbms.v7i1.137>
- Agribalyse 3.1.1 [WWW Document], 2023. URL <https://agribalyse.ademe.fr/app>
- Algin, H.M., Turgut, P., 2008. Cotton and limestone powder wastes as brick material. *Constr. Build. Mater.* 22, 1074–1080. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2007.03.006>
- Alliance for European Flax-Linen & Hemp [WWW Document], 2022. URL <https://allianceflaxlinenhemp.eu/fr> (accessed 4.19.24).
- Amziane, S., Collet, F., Lawrence, M., Magniont, C., Picandet, V., Sonebi, M., 2017. Recommendation of the RILEM TC 236-BBM: characterisation testing of hemp shiv to determine the initial water content, water absorption, dry density, particle size distribution and thermal conductivity. *Mater. Struct.* 50, 167. <https://doi.org/10.1617/s11527-017-1029-3>
- Buratti, C., Belloni, E., Merli, F., 2020. Water vapour permeability of innovative building materials from different waste. *Mater. Lett.* 265, 127459. <https://doi.org/10.1016/j.matlet.2020.127459>
- Champiré, F., Fabbri, A., Morel, J.-C., Wong, H., McGregor, F., 2016. Impact of relative humidity on the mechanical behavior of compacted earth as a building material. *Constr. Build. Mater.* 110, 70–78. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2016.01.027>
- Danso, H., Martinson, D.B., Ali, M., Williams, J.B., 2015. Physical, mechanical and durability properties of soil building blocks reinforced with natural fibres. *Constr. Build. Mater.* 101, 797–809. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2015.10.069>
- Ecoinvent Database, 2020. URL <https://ecoinvent.org/the-ecoinvent-database/>
- Eslami, A., Mohammadi, H., Mirabi Banadaki, H., 2022. Palm fiber as a natural reinforcement for improving the properties of traditional adobe bricks. *Constr. Build. Mater.* 325, 126808. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2022.126808>
- Fabbri, A., Morel, J.C., Aubert, J.-E., Bui, Q.-B., Gallipoli, D., Ventura, A., Reddy, V.B.V., Hamard, E., Pelé-Peltier, A., Abhilash, H.N., 2022. An overview of the remaining challenges of the RILEM TC 274-TCE, testing and characterisation of earth-based building materials and elements. *RILEM Tech. Lett.* <https://doi.org/10.21809/rilemtechlett.2021.149>
- Firoozi, Ali Akbar, Guney Olgun, C., Firoozi, Ali Asghar, Baghini, M.S., 2017. Fundamentals of soil stabilization. *Int. J. Geo-Eng.* <https://doi.org/10.1186/s40703-017-0064-9>
- Haffar, N.A., 2021. Efficient stabilization with hydraulic binders of local earth for building construction applications (phdthesis). Université de Lyon.
- Houben, H., Boubekour, S., 1998. Compressed earth blocks : standards (Guide Séries Technologies No. 11).
- Kuenzel, H., 1995. Simultaneous heat and moisture transport in building components. One- and two-dimensional calculation using simple parameters. Fraunhofer IBP.
- LOI n° 2016-816 du 20 juin 2016 pour l'économie bleue, 2016. , 2016-816.

- LOI n° 2020-105 du 10 février 2020 relative à la lutte contre le gaspillage et à l'économie circulaire (1), 2020. , 2020-105.
- Mansour, M.B., Jelidi, A., Cherif, A.S., Jabrallah, S.B., 2016. Optimizing thermal and mechanical performance of compressed earth blocks (CEB). *Constr. Build. Mater.* 104, 44–51. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2015.12.024>
- McGregor, F., Heath, A., Maskell, D., Fabbri, A., Morel, J.-C., 2016. A review on the buffering capacity of earth building materials. *Proc. Inst. Civ. Eng. Constr. Mater.* 169, 241–251. <https://doi.org/10.1680/jcoma.15.00035>
- Monteiro, L., Feraille, A., Saliba, J., yanez-Godoy, H., Saiyouri, N., 2024. Life cycle analysis of sediment valorization by means of geopolymerization from laboratory to industrial scale. *Constr. Build. Mater.* 411, 134598. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2023.134598>
- Mymrin, V., Stella, J.C., Scremim, C.B., Pan, R.C.Y., Sanches, F.G., Alekseev, K., Pedroso, D.E., Molinetti, A., Fortini, O.M., 2017. Utilization of sediments dredged from marine ports as a principal component of composite material. *J. Clean. Prod.* 142, 4041–4049. <https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2016.10.035>
- Nassar, S., Saliba, J., Saiyouri, N., 2023. Investigation of the possible valorization of dredged sediments in compressed earth blocks. *Mater. Today Proc.* <https://doi.org/10.1016/j.matpr.2023.06.164>
- NF EN ISO 12572, 2016.
- Olivier, M., Mesbah, A., El Gharbi, Z., Morel, J.C., 1997. Test method for strength tests on blocks of compressed earth. *Mater. Struct. Constr.* 30, 515–517. <https://doi.org/10.1007/bf02486394>
- Omar Sore, S., Messan, A., Prud'homme, E., Escadeillas, G., Tsobnang, F., 2018. Stabilization of compressed earth blocks (CEBs) by geopolymer binder based on local materials from Burkina Faso. *Constr. Build. Mater.* 165, 333–345. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2018.01.051>
- Osanyintola, O.F., Simonson, C.J., 2006. Moisture buffering capacity of hygroscopic building materials: Experimental facilities and energy impact. *Energy Build.* 38, 1270–1282. <https://doi.org/10.1016/j.enbuild.2006.03.026>
- Pacheco-Torgal, F., Jalali, S., 2012. Earth construction: Lessons from the past for future eco-efficient construction. *Constr. Build. Mater.* 29, 512–519. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2011.10.054>
- Paul, S., Islam, M.S., Hossain, M.I., 2023. Suitability of Vetiver straw fibers in improving the engineering characteristics of compressed earth blocks. *Constr. Build. Mater.* 409, 134224. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2023.134224>
- Peng, Y., Peng, X., Yang, M., Shi, H., Wang, W., Tang, X., Wu, Y., 2020. The performances of the baking-free bricks of non-sintered wrap-shell lightweight aggregates from dredged sediments. *Constr. Build. Mater.* 238, 117587. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2019.117587>
- Romano, Grammatikos, S., Riley, M., Bras, A., 2021. Analysis of dynamic moisture movement within bio-based earth mortars. *Constr. Build. Mater.* 306, 124862. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2021.124862>
- Serbah, B., Abou-Bekr, N., Bouchemella, S., Eid, J., Taibi, S., 2018. Dredged sediments valorisation in compressed earth blocks: Suction and water content effect on their mechanical properties. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2017.10.043>
- Taallah, B., Guettala, A., Guettala, S., Kriker, A., 2014. Mechanical properties and hygroscopicity behavior of compressed earth block filled by date palm fibers. *Constr. Build. Mater.* 59, 161–168. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2014.02.058>
- Turco, C., Paula Junior, A.C., Teixeira, E.R., Mateus, R., 2021. Optimisation of Compressed Earth Blocks (CEBs) using natural origin materials: A systematic literature review. *Constr. Build. Mater.* <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2021.125140>
- Van Damme, H., Houben, H., 2018. Earth concrete. Stabilization revisited. Rep. UNEP SBCI Work. GROUP LOW-CO2 ECO-Effic. Cem.-BASED Mater. 114, 90–102. <https://doi.org/10.1016/j.cemconres.2017.02.035>

Mécanique de l'endommagement non-local avec interactions évolutives pour la modélisation des matériaux quasi-fragiles : endommagement anisotrope et approche Eikonale à gradient implicite

Breno Ribeiro Nogueira^{1,2}

¹ Université Paris-Saclay, CentraleSupélec, ENS Paris-Saclay, CRNS, LMPS – Laboratoire de Mécanique Paris-Saclay

² Università degli Studi del Molise, DiBT

E-mail : breno.ribeiro_nogueira@ens-paris-saclay.fr

RESUME La prédiction de la fissuration est essentielle pour évaluer la durabilité d'une structure sous chargement complexe. Dans un formalisme thermodynamique, ce processus non linéaire peut être décrit de manière continue par une variable d'endommagement. Ce travail a pour but de fournir un cadre théorique et numérique pour le développement des modèles d'endommagement non-locaux à gradient implicite avec interactions évolutives. L'attention est portée sur l'approche Eikonale (ENLG), où les interactions évolutives sont considérées *via* une métrique Riemannienne dépendante de l'endommagement. Le modèle est dérivé suivant le formalisme des milieux micromorphes basé sur la géométrie différentielle, ce qui permet de montrer que la dissipation respecte le second principe de la thermodynamique. Ensuite, le modèle ENLG est couplé à un modèle d'endommagement anisotrope avec un tenseur d'ordre deux. L'anisotropie induite par l'endommagement est naturellement considérée dans le comportement et dans les interactions. Des cas test sont étudiés, tout en mettant en évidence les aspects numériques associés.

Mots-clés Quasi-fragiles, non-local, endommagement anisotrope, gradient implicite, Eikonale

I. CONTEXTE ET MOTIVATIONS

Dans la pratique actuelle, les normes de calcul (e.g., Eurocode) se concentrent sur des analyses d'état limite concernant la capacité portante (Etat Limite Ultime) ou le fonctionnement en service (Etat Limite de Service), avec l'utilisation de coefficients de sécurité. La description fine des mécanismes de rupture et la manière dont l'énergie se dissipe sont souvent excessivement simplifiés ou complètement négligés. Cette approche est généralement acceptée pour des raisons pragmatiques : les structures dimensionnées peuvent, dans la majorité des cas, résister aux efforts subis au cours de leurs durées de vie. Étant donné que les résistances ne sont pas réellement connues, cela implique des ouvrages certainement surdimensionnés.

Dans un contexte de changement climatique, le surdimensionnement des structures est directement lié à la consommation des ressources naturelles, et ainsi aux émissions de gaz à effet de serre. En 2018, IEA (2019) a estimé que 11% de l'énergie utilisée et des émissions CO₂ liées aux procédés

venaient du secteur de production des matériaux de construction (e.g., ciment, acier et verre). Cela implique que l'on doit réduire la part des matériaux utilisés en excès dans l'industrie et sur chantier. Ainsi, il devient indispensable de mieux comprendre les mécanismes de dégradation (i.e., apparition de micro et macro fissures et leur influence sur les propriétés mécaniques) et la durabilité des matériaux afin de réduire les marges introduites par les simplifications de modélisation. Particulièrement, l'étude de l'enclenchement et de la propagation des fissures est essentielle afin d'estimer les performances structurelles de manière plus réaliste.

Ces approches sont déjà mises en œuvre pour les structures dites sensibles, où il peut être nécessaire d'avoir une information fine sur les processus de fissuration. Par exemple, l'ouverture de fissure est une donnée d'entrée essentielle à l'estimation du taux des fuite dans les parois des enceintes nucléaires. Dans ce contexte, les prédictions doivent fournir des informations fiables à propos de la durée de vie de ces structures. L'étude de la dégradation des matériaux a donc un rôle fondamental dans ces situations.

II. INTRODUCTION

Dans le cas des matériaux quasi-fragiles, une phase initiale de microfissuration diffuse est observée avant coalescence dans une macro fissure. Cela se traduit par un comportement adoucissant à l'échelle macroscopique, lié à une dégradation progressive des propriétés élastiques. Dans un cadre thermodynamique, cela peut être décrit de manière continue (homogénéisée) par une variable d'état d'endommagement scalaire D ou tensorielle \mathbf{D} (FIGURE 1). Cependant, le problème mécanique aux limites devient mal posé lorsque la réponse présente un comportement adoucissant (i.e. chute de la contrainte avec l'augmentation des nonlinéarités). Dans un contexte de modélisation numérique par les éléments finis, la solution présente une dépendance du maillage.

L'objectivité de la réponse vis-à-vis du maillage peut être retrouvée par l'utilisation de modèles non-locaux, faisant intervenir une longueur caractéristique, et par conséquent, des interactions avec le voisinage. Sous forme intégrale (Pijaudier-Cabot and Bazant, 1987), l'approche consiste à moyennner une quantité locale pilotant l'évolution de l'endommagement par un produit de convolution faisant intervenir une longueur caractéristique. Une approximation de cette méthode, à gradient implicite (GNL), a été introduite par (Peerlings et al., 1996), où le champ non-local est solution d'une équation différentielle du type Helmholtz. Dans les deux cas, l'objectivité de la réponse est retrouvée.

Néanmoins, ces approches classiques ne prennent en compte que des interactions isotropes et constantes, ce qui les limitent dans la description de la totalité du processus de fissuration. Lorsqu'on s'intéresse à analyser les faciès de fissuration et décrire le comportement de la fissure de manière plus fine, il est nécessaire de faire appel à des méthodes modifiées. Dans la littérature, ces approches sont définies par des interactions non-locales évolutives, de sorte que le domaine d'interaction est progressivement réduit jusqu'à l'amorçage équivalente d'une macro fissure (e.g., (Giry et al., 2011; Vandoren and Simone, 2018)). Les réponses des modèles non-locaux avec ou sans interactions évolutives, en termes de régularisation, effets de bord et diffusion de l'endommagement, ont été comparées à l'aide d'un problème unidimensionnelle en dynamique explicite par Ribeiro Nogueira et al., 2022 .

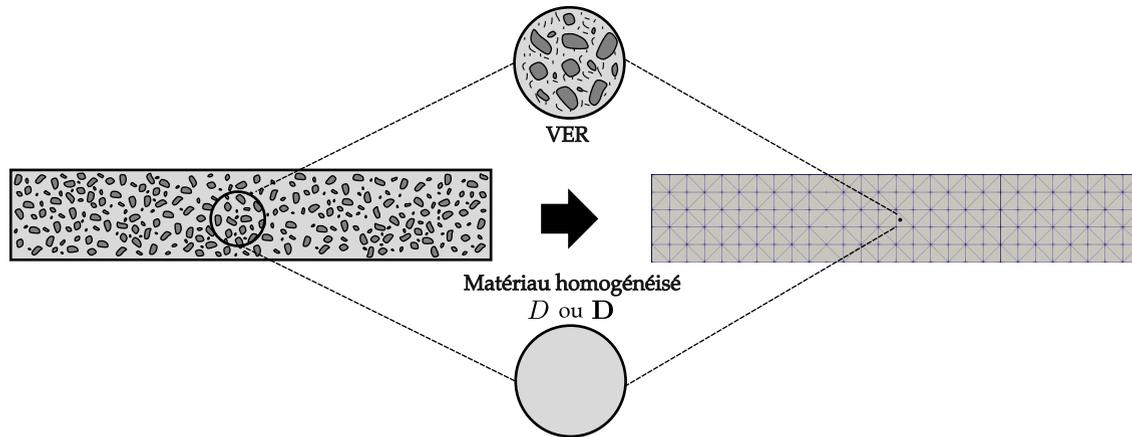


FIGURE 1. Hypothèse de modélisation : microfissures à l'échelle du volume élémentaire représentatif (VER) décrites de manière homogénéisée par l'endommagement.

Tout d'abord, dans cette contribution, la formulation du modèle ENLG par l'approche micromorphe (Forest, 2009) est rappelée. Celle-ci fait intervenir une métrique Riemannienne, qui dépend de l'état endommagé du matériau, dans l'énergie libre d'Helmholtz (Ribeiro Nogueira et al., 2024). Ce choix est en lien direct avec la considération que l'endommagement est supposé courber l'espace où les interactions non-locales sont calculées (Desmorat et al., 2015; Rastello et al., 2018; Ribeiro Nogueira et al., 2023, 2024, 2022; Thierry et al., 2020). Dans un second temps, les réponses des modèles ENLG et GNL sont comparées dans le cas d'endommagement isotrope pour des analyses en deux dimensions. Ensuite, le modèle ENLG est couplé à un modèle d'endommagement anisotrope tensoriel (Desmorat, 2016) lors de la simulation numérique des structures en deux dimensions en mode I et en mode mixte de fissuration.

III – FORMULATION ET SOLUTION

Dans le cadre de la mécanique des milieux continus, le tenseur des contraintes $\boldsymbol{\sigma}$, exprimé au point \boldsymbol{x} du domaine Ω , est une fonctionnelle du tenseur de déformations $\boldsymbol{\varepsilon}$ dans ce même point (FIGURE 2 gauche). Le principe de base des modèles non-locaux est le fait que le comportement non linéaire n'est plus défini localement, i.e., la relation est enrichie par ce qui se passe également au voisinage à une distance $l_{x\xi}$ (FIGURE 2 droite). Le domaine d'interaction est défini en fonction d'une longueur caractéristique l_c .

En ce qui concerne les approches à gradient implicite dérivées du formalisme micromorphe, cela revient à considérer l'effet des gradients dans l'énergie libre, qui s'écrit dans notre cas (Ribeiro Nogueira et al., 2024) :

$$\rho\psi(\boldsymbol{\varepsilon}, \mathbf{D}, \bar{\boldsymbol{e}}, \nabla\bar{\boldsymbol{e}}) = \rho\psi_0(\boldsymbol{\varepsilon}, \mathbf{D}) + \frac{1}{2}h(\boldsymbol{e} - \bar{\boldsymbol{e}})^2 + \frac{1}{2}hc \|\bar{\nabla}\bar{\boldsymbol{e}}\|_{\mathbf{g}}^2 \quad (1)$$

où $\rho\psi_0$ est un potentiel d'état lié au modèle d'endommagement choisi. Ici, \boldsymbol{e} est la déformation équivalente locale, $\bar{\boldsymbol{e}}$ est celle non-locale, $\bar{\nabla}$ dénote le gradient dans une variété courbée et \mathbf{g} est une métrique Riemannienne (voir Ribeiro Nogueira et al., 2024 pour plus de détails).

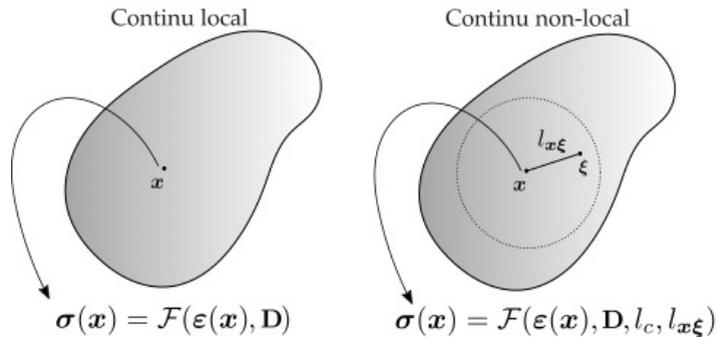


FIGURE 2. Différences entre les approches locales et non-locales

La norme Riemannienne est telle que $\|\tilde{\nabla}\bar{\epsilon}\|_{\mathbf{g}}^2 = \tilde{\nabla}\bar{\epsilon} \cdot \mathbf{g} \cdot \tilde{\nabla}\bar{\epsilon} = d\bar{\epsilon} \cdot \mathbf{g}^{-1} \cdot d\bar{\epsilon} = \|d\bar{\epsilon}\|_{\mathbf{g}}^2$, avec $d\bar{\epsilon}$ une 1-forme différentielle ou covecteur. Le paramètre c est homogène au carré d'une longueur (interne) et h est homogène à une rigidité. On peut montrer que l'équation du type Helmholtz pour le modèle ENLG est :

$$\bar{\epsilon} - \frac{c}{\sqrt{\det \mathbf{g}}} \nabla \cdot (\sqrt{\det \mathbf{g}} \mathbf{g}^{-1} \cdot \nabla \bar{\epsilon}) = e \quad \text{dans } \Omega \quad (2)$$

avec la condition limite $\mathbf{g}^{-1} \cdot \nabla \bar{\epsilon} \cdot \mathbf{n} = 0$ sur le bord $\partial\Omega$. On considère que $h \ll \|\mathbb{E}\|$, où \mathbb{E} est le tenseur d'élasticité de Hooke. Ainsi, on peut écrire le comportement comme $\boldsymbol{\sigma}(\boldsymbol{\epsilon}, \mathbf{D}) = \boldsymbol{\sigma}_0 = \rho \partial \psi_0 / \partial \boldsymbol{\epsilon}$. L'évolution de l'endommagement est contrôlée par la fonction critère $f = \bar{\epsilon} - \kappa$, avec κ une variable d'histoire respectant les conditions de charge-décharge de KKT.

Soient les espaces fonctionnels suivants :

$$\begin{aligned} \mathcal{U} &= \{\mathbf{w} \mid \mathbf{w} \in H^1(\Omega), \mathbf{w} = \mathbf{u}^d \text{ sur } \partial\Omega_u\} \\ \mathcal{U}(0) &= \{\mathbf{w} \mid \mathbf{w} \in H^1(\Omega), \mathbf{w} = \mathbf{0} \text{ sur } \partial\Omega_u\} \\ \mathcal{V} &= \{\mathbf{w} \mid \mathbf{w} \in H^1(\Omega)\} \end{aligned}$$

où H^1 est l'espace de Sobolev de carré intégrable et le déplacement imposé sur le bord $\partial\Omega_u$ est noté \mathbf{u}^d . Le problème consiste donc à trouver le champ de déplacement $\mathbf{u} \in \mathcal{U}$ et le champ de déformation équivalente non-locale $\bar{\epsilon} \in \mathcal{V}$, tels que :

$$\int_{\Omega} \boldsymbol{\sigma}(\boldsymbol{\epsilon}(\mathbf{u}), \mathbf{D}) : \boldsymbol{\epsilon}(\mathbf{v}) \, d\Omega = \int_{\partial\Omega_F} \mathbf{t}^d \cdot \mathbf{v} \, dS \quad \forall \mathbf{v} \in \mathcal{U}(0) \quad (3)$$

$$\int_{\Omega} \sqrt{\det \mathbf{g}} \bar{\epsilon} \eta \, d\Omega + \int_{\Omega} c \sqrt{\det \mathbf{g}} (\mathbf{g}^{-1} \cdot \nabla \bar{\epsilon}) \cdot \nabla \eta \, d\Omega = \int_{\Omega} \sqrt{\det \mathbf{g}} e \eta \, d\Omega \quad \forall \eta \in \mathcal{V} \quad (4)$$

où on a introduit les champs tests \mathbf{v} et η . Le vecteur traction imposée sur le bord $\partial\Omega_F$ est noté \mathbf{t}^d . Il s'agit d'un problème aux éléments finis non-linéaire et couplé. Dans le cas où la métrique Riemannienne se réduit à celle Euclidienne, i.e., $\mathbf{g} = \mathbf{I}$ (le tenseur identité), on retrouve toutes les équations du modèle GNL. Le modèle ENLG est donc une généralisation de la formulation proposée par Peerlings et al., 1996. La résolution numérique employée ici met en place un processus itératif du type point fixe au niveau global. Dans ce travail, les formulations variationnelles sont implémentées dans un code du CEA Saclay basé sur le logiciel FreeFem (Badri et al., 2021). Au niveau des points de Gauss, l'intégration des lois de comportement se fait *via* le générateur de code Mfront (Helfer et al., 2015).

III – RÉSULTATS : ENDOMMAGEMENT ISOTROPE

Dans le cas d'endommagement isotrope, i.e., la variable d'endommagement D est un scalaire, le tenseur métrique s'écrit en deux dimensions $\mathbf{g} = \mathbf{I}_2/(1 - D)$, avec \mathbf{I}_2 le tenseur identité dans le plan. L'état et le comportement se simplifient, tels que :

$$\rho\psi_0(\boldsymbol{\epsilon}, D) = \frac{1}{2}(1 - D)\boldsymbol{\epsilon} : \mathbb{E} : \boldsymbol{\epsilon} \quad \text{et} \quad \boldsymbol{\sigma} = (1 - D)\mathbb{E} : \boldsymbol{\epsilon} \quad (5)$$

L'évolution de l'endommagement est supposée suivre une loi du type exponentielle :

$$D = 1 - \frac{\kappa}{\kappa_0} \left(1 - \alpha + \alpha e^{-B_t(\kappa - \kappa_0)} \right) \quad (6)$$

avec κ_0 le seuil d'endommagement, B_t un paramètre de fragilité et α un paramètre qui permet la prise en compte de contraintes résiduelles. La déformation équivalente utilisée est celle du type Von Mises. L'exemple traité ici est celui d'une poutre en flexion 4 points (FIGURE 3). Les paramètres modèle utilisés pour cette simulation sont donnés dans (Ribeiro Nogueira et al., 2024).

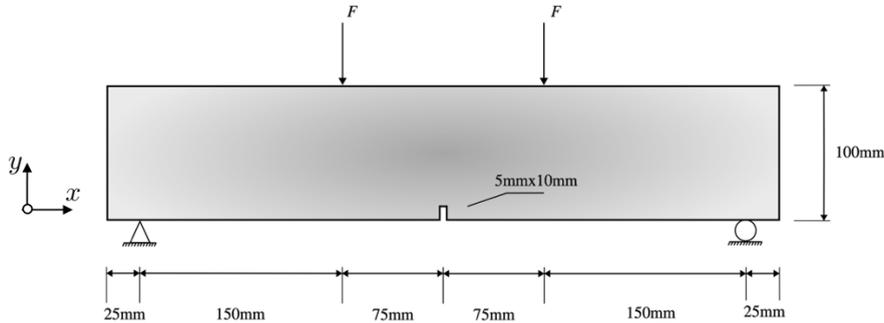


FIGURE 3. Flexion 4 points : géométrie et conditions limites.

Sur la FIGURE 4 (gauche), on observe convergence de la réponse structurelle vis-à-vis du maillage pour les deux modèles (GNL et ENLG avec des temps de calcul similaires). Pour un même jeu de paramètres, la réponse avec le modèle ENLG dissipe moins d'énergie lorsque comparé avec le modèle GNL, et par conséquent, est plus fragile dans cette situation. Le profil d'endommagement obtenu par le modèle ENGL est plus réaliste que celui fourni par le modèle GNL (FIGURE 4 droite). En effet, lorsqu'on supprime en post-traitement les éléments plus endommagés (i.e., $D > 0.995$), on observe que le modèle ENLG relocalise l'endommagement dans la zone régularisée sur une ligne d'éléments, ce qui représente l'équivalent d'une macro fissure.

Toutefois, cette localisation à la rupture n'est pas observée pour le modèle GNL, où l'endommagement se diffuse sur une zone élargie non négligeable. Le comportement de relocalisation du modèle ENLG est essentiel pour la description complète du processus de fissuration, de manière à réaliser la transition entre endommagement diffus (microfissures réparties) et rupture (coalescence dans une macro fissure). Néanmoins, dans le cas de l'endommagement isotrope, il n'est pas possible de décrire une direction préférentielle de dommage. En réalité, chaque élément aperçoit l'endommagement dans toutes les directions. Sous décharge/compression, les microfissures ne peuvent pas être refermées avec ce type d'approche. Une autre conséquence est la dégradation de la rigidité également de manière isotrope.

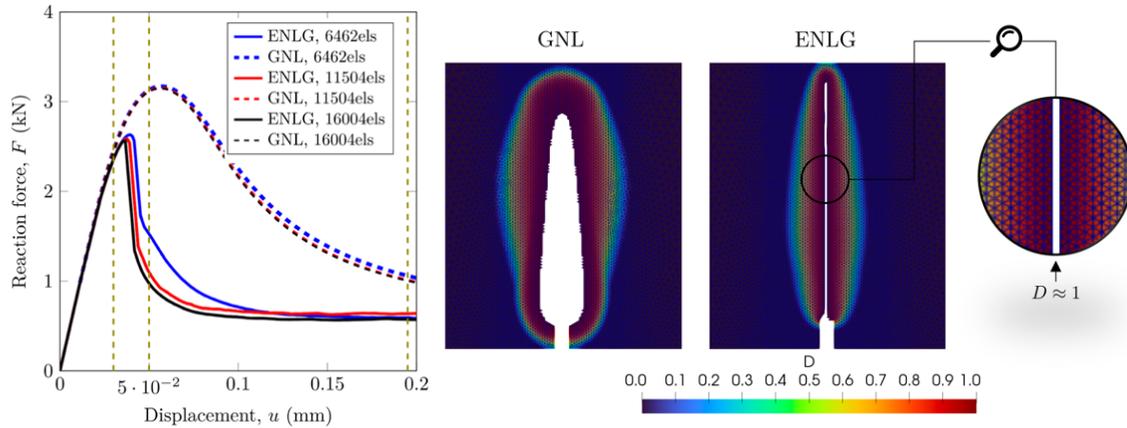


FIGURE 4. Flexion 4 points : réponse structurale (gauche) et profils d'endommagement (droite) à la fin de la simulation pour GNL (temps de calcul d'environ 12 minutes) et ENLG (temps de calcul d'environ 12 minutes) (Ribeiro Nogueira et al., 2024).

Dans le cas de chargement non-proportionnel (e.g., traction suivie de compression dans la direction perpendiculaire), ce modèle ne sera pas capable de reproduire ce qui est observé expérimentalement.

III – RÉSULTATS : ENDOMMAGEMENT ANISOTROPE

Dans cette partie, on couple la régularisation par le modèle ENLG avec un modèle de comportement à endommagement anisotrope (Desmorat, 2016). La fonction critère reste la même, mais la variable d'histoire passe par une consolidation en fonction de l'endommagement, telle que $\kappa = \kappa_0 + SR_v^s(\text{tr}\mathbf{H} - 3)$, avec $\mathbf{H} = (\mathbf{I} - \mathbf{D})^{-1/2}$ la variable de Ladevèze et S et s des paramètres matériaux. Ce changement de variable permet de modéliser la limite des valeurs propres d'endommagement lorsqu'elles tendent vers l'unité. La fonction de triaxialité R_v est calculée par l'expression donnée dans (Desmorat, 2016), faisant apparaître un autre paramètre matériau B . Le comportement s'écrit en fonction du tenseur de Hooke effectif :

$$\boldsymbol{\sigma} = \tilde{\mathbb{E}} : \boldsymbol{\epsilon} \quad \tilde{\mathbb{E}} = \begin{cases} 2G \left[\mathbf{H}^{-1} \underline{\otimes} \mathbf{H}^{-1} - \frac{\mathbf{H}^{-2} \otimes \mathbf{H}^{-2}}{\text{tr} \mathbf{H}^{-2}} \right] + \frac{3K}{\text{tr} \mathbf{H}^2} \mathbf{I} \otimes \mathbf{I} & \text{si } \text{tr} \boldsymbol{\epsilon} > 0 \\ 2G \left[\mathbf{H}^{-1} \underline{\otimes} \mathbf{H}^{-1} - \frac{\mathbf{H}^{-2} \otimes \mathbf{H}^{-2}}{\text{tr} \mathbf{H}^{-2}} \right] + K \mathbf{I} \otimes \mathbf{I} & \text{sinon} \end{cases}$$

avec G et K les modules de cisaillement et de compressibilité, respectivement. Enfin, l'évolution de l'endommagement est donnée par une amplitude $\dot{\lambda}$ et une direction \mathbf{P} fonction de la partie positive du tenseur de déformation :

$$\dot{\mathbf{H}} = \dot{\lambda} \mathbf{P} \quad \mathbf{P} = \frac{\langle \boldsymbol{\epsilon} \rangle}{\|\langle \boldsymbol{\epsilon} \rangle\|}$$

Suivant la définition de la métrique Riemannienne, on peut la réécrire en fonction de la variable de Ladevèze, telle que $\mathbf{g} = \mathbf{H}^2$. Le premier cas test proposé avec endommagement anisotrope est celui de la poutre en flexion 4 points (FIGURE 3). Les paramètres utilisés dans cette simulation sont $c = 4 \text{ mm}^2$, $\kappa_0 = 7.5 \cdot 10^{-5}$, $S = 2.6 \cdot 10^{-4}$, $s = 4.9$, $B = 5/3$, $E = 38000 \text{ MPa}$ et $\nu = 0.18$. La FIGURE 5 (gauche) montre les maillages déformés obtenus avec les approches GNL et ENLG.

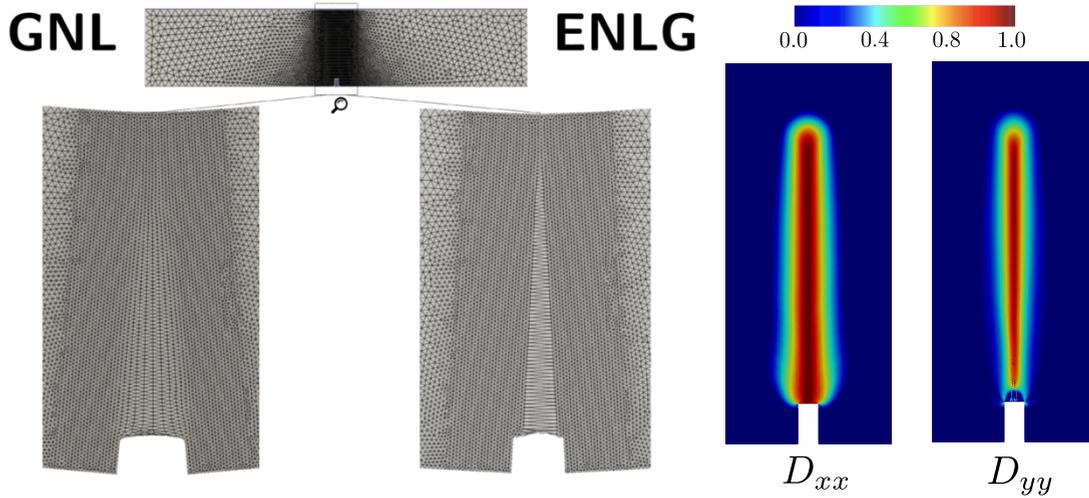


FIGURE 5. Flexion 4 points anisotrope : Comparaison des maillages déformés pour GNL et ENLG (gauche). Profils des composantes diagonales du tenseur d’endommagement (droite).

On peut observer que la déformation est diffusée au sein de plusieurs éléments pour le modèle GNL, ce qui montre le comportement de diffusion de l’endommagement sur une zone non négligeable, déjà observé pour le cas isotrope. Au contraire, le modèle ENLG anisotrope relocalise ces déformations sur une ligne d’éléments, montrant la capacité de la méthode à décrire un comportement équivalent à une macro fissure dans un cadre continu. La FIGURE 5 (droite) montre les profils des composantes D_{xx} et D_{yy} du tenseur d’endommagement. Différemment du cas isotrope, on note que la direction x ici est préférentielle, de manière que l’endommagement est plus important dans cette direction. Cela indique que les fissures équivalentes sont verticales (perpendiculaires à x). L’endommagement dans la direction y est moins important. On peut observer qu’en pointe d’entaille la composante D_{yy} est presque nulle, alors que l’endommagement se développe plutôt dans la composante D_{xx} . Une fois que ce dernier atteint une valeur suffisamment grande, une fissure équivalente commence à se propager et on observe une croissance de la composante D_{yy} . Cela met en évidence le caractère multiaxial de la propagation en pointe de fissure, qui n’est pas observé en pointe d’entaille à cause des effets de bord. En effet, le modèle ENLG ne prend en compte ces effets que lorsque un nouveau bord est créé par une fissure, et non dans le cas des bords déjà existants dans le domaine (Ribeiro Nogueira et al., 2022).

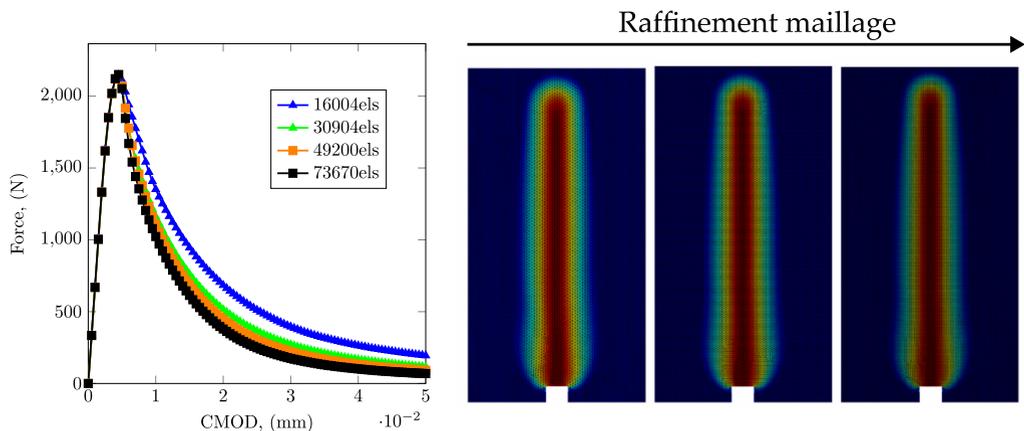


FIGURE 6. Flexion 4 points anisotrope : convergence de la réponse structurelle (gauche) et du profil d’endommagement D_{xx} (droite) vis-à-vis du maillage. Les temps de calcul vont d’environ 30 min pour le

maillage grossier à 5 heures pour le maillage le plus fin. L'élément le plus petit a une taille caractéristique de 0.3 mm.

La FIGURE 6 (gauche) montre les réponses structurales obtenues pour différents maillages éléments finis. Malgré la nécessité d'un nombre important d'éléments pour obtenir convergence, on observe que le modèle ENLG est capable de régulariser la réponse. De même, on observe convergence des champs d'endommagements obtenus lorsque que le maillage est raffiné (FIGURE 6 droite).

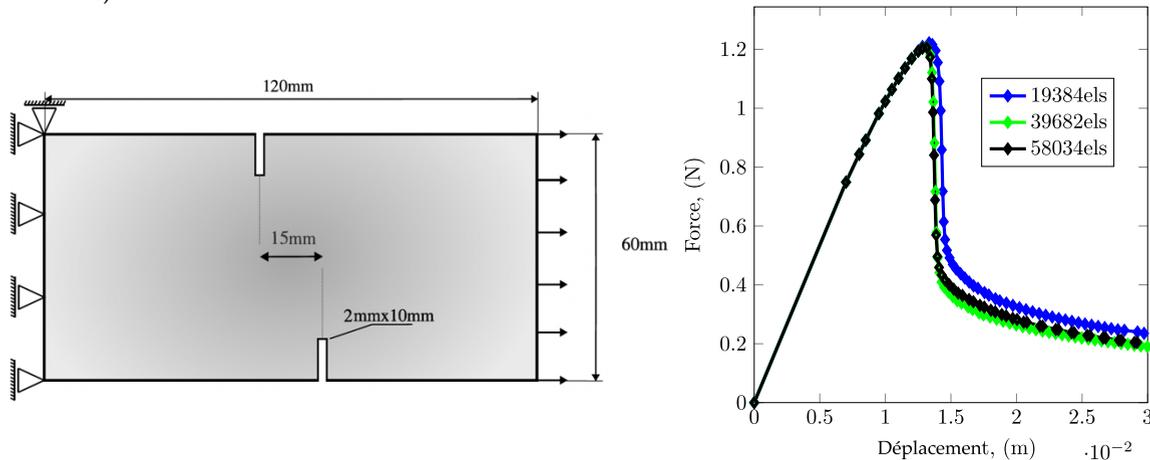


FIGURE 7. Test de Shi : géométrie et conditions limites (gauche) et convergence de la réponse structurale vis-à-vis du maillage (droite).

En dernier, on propose d'étendre l'analyse à la fissuration en mode mixte avec le test de Shi (FIGURE 7 gauche). Il s'agit d'une éprouvette doublement entaillée en traction. L'asymétrie des positions des entailles engendre une courbure des chemins de fissurations, ce qui est observé expérimentalement (Shi et al., 2000). La convergence des réponses structurales vis-à-vis du maillage est montrée sur la (FIGURE 7 droite).

Les valeurs propres, en ordre décroissante, du tenseur d'endommagement à la fin de la simulation sont données sur la FIGURE 8 (a). Le profil de D_1 montre clairement qu'une macro fissure équivalente se développe suivant une certaine direction préférentielle. Un endommagement moins important, mais non négligeable, est observé dans le profil de D_2 . Cela montre, encore une fois, que l'état de sollicitation en extension est plutôt multiaxial dans la zone fissurée. Le champ de déplacement résultant est affiché sur la FIGURE 8 (b). Deux zones sont observées en bleu et en rouge, séparées par l'apparition des sauts, i.e., des discontinuités équivalentes (ici régularisées de manière continue), dans le champ de déplacement provoquées par les fissures. Ceci est en adéquation avec les observations expérimentales (Shi et al., 2000).

Enfin, les directions principales (i.e., les vecteurs propres du tenseur d'endommagement) sont donc associés à chaque endommagement principal. Ainsi, dans un élément, des fissures équivalentes s'ouvrent perpendiculairement à la première direction principale. La FIGURE 8 (c) montre les macro fissures équivalentes associées à des valeurs de $D_1 > 0.999$ obtenues par post-traitement. Ce post-traitement simple de l'endommagement anisotrope continu fournit des informations essentielles concernant l'enclenchement et la direction de propagation. Le caractère courbé des chemins de fissuration est ici mis en évidence par ces directions. Cette analyse s'avère impossible lors des simulations ne prenant en compte que les modèles d'endommagement isotrope.

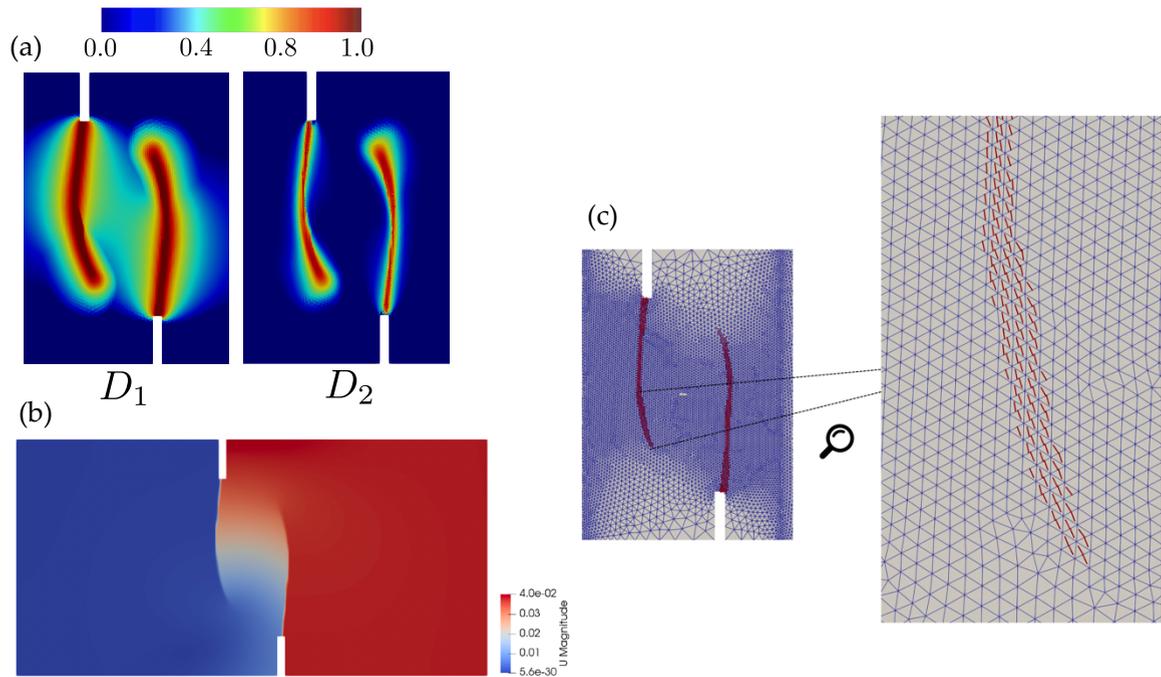


FIGURE 8. Test de Shi : (a) profils des valeurs propres du tenseur d'endommagement, (b) champ de déplacement à la fin de la simulation, (c) représentation des fissures équivalentes (perpendiculaires aux directions principales associées à l'endommagement principal) au sein des éléments.

IV – CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Les propriétés de régularisation et de description de la fissuration du modèle ENLG ont été brièvement résumées dans ce travail. En particulier, il a été montré que la méthode permet de décrire des réponses quasi-fragiles avec des chemins de fissuration réalistes. Dans une perspective de transition entre endommagement et rupture, les zones fortement endommagées peuvent être utilisées comme indication d'où placer une discontinuité forte au sein des éléments, et en particulier, dans quelle direction. Ainsi, on pourra modéliser l'intégralité du processus de dégradation, depuis l'enclenchement de la microfissuration jusqu'à l'amorçage d'une macro fissure. En perspective, il est envisagé d'étendre ces développements aux structures en béton armé à grande échelle (e.g., enceintes nucléaires). Dans un premier temps, il devient nécessaire de considérer les développements ici présentés dans un formalisme en trois dimensions. Étant donnée la généralisation directe des formulations, l'implémentation s'avère être juste une question technique du point de vue numérique. Certes, cela demandera des moyens de calcul plus importants, avec un temps d'analyse qui peut devenir rapidement exorbitant. Vu le caractère à gradient de la méthode, une implémentation prenant en compte les techniques de calcul parallèle est envisageable à court terme.

REFERENCES

IEA. (2019). Global status report for buildings and construction 2019 (tech. rep.). International Energy Agency.

- Badri, M.A., Rastiello, G., Foerster, E., 2021. Preconditioning strategies for vectorial finite element linear systems arising from phase-field models for fracture mechanics. *Comput. Methods Appl. Mech. Eng.* 373, 113472. <https://doi.org/10.1016/j.cma.2020.113472>
- Desmorat, R., 2016. Anisotropic damage modeling of concrete materials. *Int. J. Damage Mech.* 25, 818–852. <https://doi.org/10.1177/1056789515606509>
- Desmorat, R., Gatuingt, F., Jirásek, M., 2015. Nonlocal models with damage-dependent interactions motivated by internal time. *Eng. Fract. Mech.* 142, 255–275. <https://doi.org/10.1016/j.engfracmech.2015.06.015>
- Forest, S., 2009. Micromorphic Approach for Gradient Elasticity, Viscoplasticity, and Damage. *J. Eng. Mech.* 135, 117–131. [https://doi.org/10.1061/\(ASCE\)0733-9399\(2009\)135:3\(117\)](https://doi.org/10.1061/(ASCE)0733-9399(2009)135:3(117))
- Giry, C., Dufour, F., Mazars, J., 2011. Stress-based nonlocal damage model. *Int. J. Solids Struct.* 48, 3431–3443. <https://doi.org/10.1016/j.ijsolstr.2011.08.012>
- Helfer, T., Michel, B., Proix, J.-M., Salvo, M., Sercombe, J., Casella, M., 2015. Introducing the open-source mfront code generator: Application to mechanical behaviours and material knowledge management within the PLEIADES fuel element modelling platform. *Comput. Math. Appl.* 70, 994–1023. <https://doi.org/10.1016/j.camwa.2015.06.027>
- Ribeiro Nogueira, B., 2023. Numerical simulations of concrete specimens with the gradient-enhanced Eikonal non-local damage model. *Acad. J. Civ. Eng.* 41, 303–312. <https://doi.org/10.26168/ajce.41.1.30>
- Peerlings, R.H.J., De Borst, R., Brekelmans, W. a. M., De Vree, J.H.P., 1996. Gradient Enhanced Damage for Quasi-Brittle Materials. *Int. J. Numer. Methods Eng.* 39, 3391–3403. [https://doi.org/10.1002/\(SICI\)1097-0207\(19961015\)39:19<3391::AID-NME7>3.0.CO;2-D](https://doi.org/10.1002/(SICI)1097-0207(19961015)39:19<3391::AID-NME7>3.0.CO;2-D)
- Pijaudier-Cabot, G., Bazant, Z.P., 1987. Nonlocal Damage Theory. *J. Eng. Mech.* 113, 1512–1533. [https://doi.org/10.1061/\(ASCE\)0733-9399\(1987\)113:10\(1512\)](https://doi.org/10.1061/(ASCE)0733-9399(1987)113:10(1512))
- Rastiello, G., Giry, C., Gatuingt, F., Desmorat, R., 2018. From diffuse damage to strain localization from an Eikonal Non-Local (ENL) Continuum Damage model with evolving internal length. *Comput. Methods Appl. Mech. Eng.* 331, 650–674. <https://doi.org/10.1016/j.cma.2017.12.006>
- Ribeiro Nogueira, B., Giry, C., Rastiello, G., Gatuingt, F., 2022. One-dimensional study of boundary effects and damage diffusion for regularized damage models. *Comptes Rendus Mécanique* 350, 507–546. <https://doi.org/10.5802/crmeca.137>
- Ribeiro Nogueira, B., Rastiello, G., Giry, C., Gatuingt, F., Callari, C., 2024. Differential geometry-based thermodynamics derivation of isotropic and anisotropic eikonal non-local gradient (ENLG) damage models using a micromorphic media framework. *Eng. Fract. Mech.* 295, 109670. <https://doi.org/10.1016/j.engfracmech.2023.109670>
- Shi, C., van Dam, A.G., van Mier, J.G.M., Sluys, B., 2000. Crack Interaction in Concrete, in: Wittmann, F.H. (Ed.), *Materials for Buildings and Structures*. Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim, FRG, pp. 125–131. <https://doi.org/10.1002/3527606211.ch17>
- Thierry, F., Rastiello, G., Giry, C., Gatuingt, F., 2020. One-dimensional Eikonal Non-Local (ENL) damage models: Influence of the integration rule for computing interaction distances and indirect loading control on damage localization. *Mech. Res. Commun.* 110, 103620. <https://doi.org/10.1016/j.mechrescom.2020.103620>
- Vandoren, B., Simone, A., 2018. Modeling and simulation of quasi-brittle failure with continuous anisotropic stress-based gradient-enhanced damage models. *Comput. Methods Appl. Mech. Eng.* 332, 644–685. <https://doi.org/10.1016/j.cma.2017.12.027>

Etude du rôle des déformations locales résultant de sollicitations hydriques dans l'altération des pierres de construction par desquamation en plaques

Mohamad DAHER

LaMé EA 7494, Université d'Orléans, 8 rue Léonard de Vinci, 45072 Orléans France

RESUME Cette étude contribue à la compréhension des processus d'altération des pierres de construction en conditions réelles. En effet, la desquamation en plaques est une forme d'altération des pierres calcaires comme le tuffeau, pierres des châteaux de la Loire, dont les mécanismes de formation sont encore mal connus. Parmi les hypothèses émises pour expliquer ce phénomène, les déformations différentielles provoquées par l'humidification partielle de la pierre pourraient être à l'origine de la fissuration. Des études antérieures ont prouvé la limitation de l'utilisation de jauges de contrainte pour la surveillance mécanique en raison de la taille et de la nature locale de la mesure. La technique de corrélation d'images numériques (CIN) s'est avérée être une méthode significative sans contact et non destructive pour les mesures de déformation en plein champ de divers matériaux, y compris les roches naturelles et donc hétérogènes. Dans ce travail, nous avons étudié les paramètres de la CIN et le processus d'étalonnage afin d'identifier la meilleure configuration pour travailler avec un matériau poreux sous charge mécanique et hydrique. Notre objectif est de calibrer un système de mesure qui sera utilisé pour mesurer la dilatation hydrique, où des études antérieures ont démontré que l'ordre des déformations détectées est compris entre 10^{-5} et 10^{-4} .

Mots-clefs Corrélation d'images numériques (CIN), tuffeau, desquamation en plaque, calibration, mesures hydriques

I. INTRODUCTION

Le tuffeau est un calcaire blanc, tendre et poreux. Il a été largement utilisé comme matériau de construction dans la région du val de la Loire en France en raison de sa disponibilité abondante et de ses propriétés telles que sa blancheur et sa légèreté (Beck et al., 2003). L'une des formes les plus courantes de dégradation du tuffeau est la desquamation en plaque qui est défini comme le détachement superficiel de fines couches de pierre, de quelques millimètres à quelques centimètres, parallèlement à la zone exposée aux changements environnementaux (Beck and Al-Mukhtar, 2010). De nombreuses hypothèses ont été proposées pour déterminer les paramètres régissant le processus d'endommagement de desquamation (Benavente et al., 2008), mais aucune n'a jamais été validée expérimentalement (Janvier-Badosa et al., 2015). L'une des hypothèses explique que la cristallisation et l'accumulation du gypse dans le matériau vont générer des hétérogénéités dans les pierres, ce qui initierait une fissuration progressive des pierres (Janvier-Badosa et al., 2014). Les déformations thermo-hydro chimiques induites dans les pierres par les variations environnementales sont censées jouer un rôle majeur dans la dégradation de la pierre. Des études antérieures ont montré l'intérêt de la mesure locale des déformations à l'aide d'une jauge de contrainte par rapport à la mesure globale. Cependant, l'utilisation de la jauge de contrainte a montré des limites en raison de sa taille, ce qui rend impossible l'observation de caractéristiques de dimensions inférieures, et en raison de son aspect local, ce qui la rend très sensible à l'hétérogénéité du matériau. De plus, le collage de la jauge à la surface peut localement impacter le transfert d'eau et par conséquent perturber les mesures (Hassine et al., 2018).

Ainsi, l'utilisation d'une technique de mesure non locale et sans contact pour évaluer le champ de déformation permettrait de surmonter les limites des jauges de contrainte. Notre objectif au-delà de l'étalonnage de l'essai mécanique, est de calibrer un système de mesure qui sera utilisé pour mesurer la dilatation hydrique, où des études précédentes ont démontré que l'ordre des déformations détectées est compris entre 10^{-5} et 10^{-4} .

La technique de corrélation d'images numériques (CIN) appartient à la classe des méthodes sans contact. L'acquisition d'images est réalisée et stockée sous forme numérique. Ensuite, l'analyse d'images est appliquée pour estimer les déplacements et les déformations du champ complet sur la base de l'analyse des images numériques prises d'un motif à la surface d'un échantillon (Sutton et al., 2000). La CIN nécessite une configuration spécifique pour l'acquisition d'images. Cette configuration comprend une caméra, un système d'éclairage et une surface cible avec un motif CIN (Sutton et al., 2009). La caméra doit avoir une haute résolution pour capturer des images de haute qualité de la surface. Le système d'éclairage doit fournir un éclairage constant et uniforme de la surface, sans créer d'ombres ou de reflets qui pourraient interférer avec la mesure (Segouin, 2019). Le motif sur la surface doit être conçu pour maximiser la précision et la résolution de la mesure. En plus de la caméra et du système d'éclairage, la configuration CIN nécessite également un réglage minutieux du triangle d'exposition, qui se compose de l'ouverture du diaphragme, du temps d'exposition et du réglage ISO. La technique CIN s'appuie sur une diversité d'outils numériques développés pour mesurer avec précision les champs de déformation. Cette étude vise à fournir une configuration CIN optimisée pour les pierres blanches, tendres et poreuses. Après cette phase, on termine par l'objectif principale où des mesures de déformations durant un test d'imbibition est réalisée. Dans cette méthode, on travaille avec des variables plus complexes, où l'ordre de déformation qu'on cherche à mesurer varie de 1 à 100 micromètres avec un changement de couleur détecté. Les résultats de cette campagne ont montré l'exigence des calculs d'incertitudes approfondies afin qu'on puisse définir et valider ces mesures.

II. Matériaux et méthodes

A. Acquisition d'images, propriétés des matériaux et essais mécaniques/hydriques

La configuration de l'acquisition d'image a été effectuée à l'aide d'un Canon EOS 5D MARK IV et l'objectif est un Canon EF 100mm f/2.8L Macro IS USM. La FIGURE 1 montre la configuration de l'expérience CIN et du système d'acquisition d'images. Sur la partie droite de l'image, la caméra est reliée à un portable afin d'avoir une acquisition en direct et automatique des images en fonction du temps. Sur la gauche, l'échantillon est placé sous le capteur de pesage avec les sources d'éclairage placées pour obtenir un contraste suffisant. Sur la droite, un exemple de la région d'intérêt est présenté avec l'histogramme de niveaux de gris lié à l'image.

Les pierres étudiées sont des matériaux naturels et complexes avec une grande porosité et une texture particulière. Le tuffeau est connu pour sa couleur blanche, sa texture homogène et ses grains fins. Les principales caractéristiques de cette roche sont sa porosité et sa perméabilité élevées, ce qui rend ce matériau sensible aux variations d'humidité, à la pluie et aux infiltrations d'eau. Le tuffeau est composé de plusieurs minéraux, dont les proportions varient d'une roche à l'autre. Les principaux minéraux sont le quartz, la calcite, la silice amorphe et les minéraux argileux. De plus, la couleur, les caractéristiques physiques et la composition chimique sont également susceptibles de varier d'un gisement à l'autre (Beck et al., 2003). Le TABLEAU 1 résume les principales propriétés du tuffeau.

TABLEAU 1 Principales propriétés du tuffeau (Beck et al., 2003)

Tuffeau	Propriétés
Couleur	Blanc - beige clair (sec) Verdâtre (saturé)
Composition minéralogique	Calcaire siliceux, calcite (50 %), opale (30 %), quartz (10 %), minéraux argileux (10 %)
Résistance à la compression non confinée	10 MPa
Densité apparente	1.3
Porosité	45 %

Des cubes d'arête de 8 cm rectifiés ont été testés. À l'origine, les spécimens sont coupés à l'aide d'une scie classique pour les matériaux de construction comme les pierres et le béton. Les éprouvettes obtenues risquent d'avoir une face non rectifiée en raison de la scie elle-même. Le processus de rectification se fait à l'aide d'une machine 3R mini-matic. Les essais mécaniques sont appliqués à l'aide d'une SYNTAXE 3R avec un capteur de pesage d'une capacité de 50 kN. La FIGURE 1 montre une illustration de l'essai de compression pour une forme cubique. La charge appliquée a été progressivement augmentée jusqu'à 50% de la résistance à la compression, qui est de 11 MPa à l'état sec pour le tuffeau (Beck, 2006). La force maximale appliquée n'a pas dépassé 35 kN pour l'échantillon cubique.

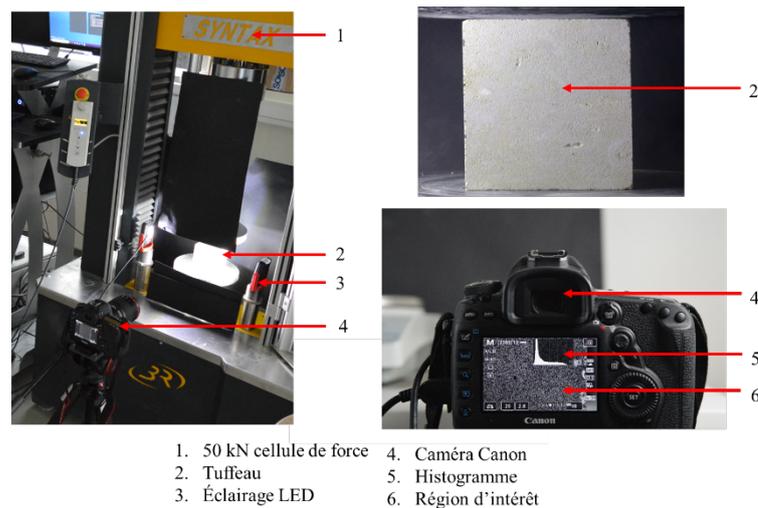


FIGURE 1 Mise en place expérimentale de la CIN

Une chose importante à prendre en compte dans notre expérience est la mise en place du test. La FIGURE 2 présente un exemple du comportement réel de la réponse mécanique des matériaux rocheux. Cette réponse est caractérisée par une phase perturbée entre 0 et 15% de la résistance de la pierre. Le début de la partie élastique commence une fois que les microfissures préexistantes ont été fermées et que la porosité a été écrasée (Guéguen and Palciauskas, 1992). Cette phase est considérée comme mal définie et correspond dans notre expérience à la mise en place. Pour cela, les images considérées seront prises entre 30 et 50% de la résistance maximale, ce qui correspond bien à la phase élastique reproductible du comportement. Ce comportement ne dépend que du matériau qui a des propriétés intrinsèques (Beck and Al-Mukhtar, 2004).

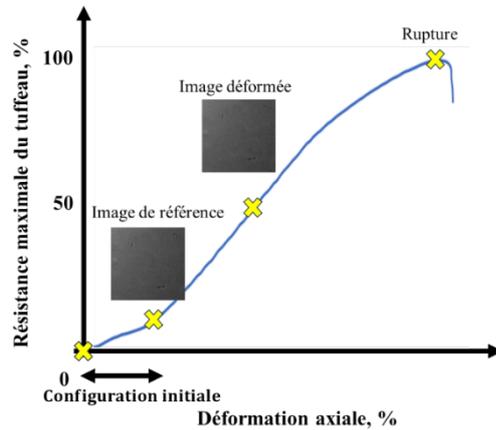


FIGURE 2 La réponse mécanique des matériaux rocheux lors de l'essai de compression

Des échantillons en pierre, ont été utilisés pour réaliser les mesures de déformation pendant un test d'imbibition. Les éprouvettes sont placées sur une grille enveloppée de papier absorbant qui permet une alimentation permanente en eau pendant l'essai. Lorsque la pierre est en contact avec l'eau, l'air qui remplit la porosité est remplacé par l'eau sans appliquer de pression externe. Ce phénomène d'imbibition capillaire est dû à la mouillabilité de l'eau dans un milieu poreux. Les mesures de déformations par CIN ont été faites sur une échelle plus petite que les essais mécaniques. Des mesures moyennes sur des jauges virtuelles ont été effectués afin d'être comparé avec les mesures des jauges de contraintes faites antérieurement. La FIGURE 3 montre la zone d'intérêt et la jauge virtuelle utilisée durant les mesures.

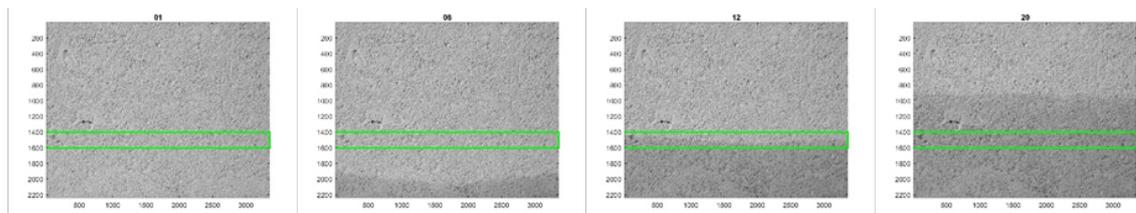


FIGURE 3 Zone d'intérêt et la jauge virtuelle utilisée (en vert) pendant un test d'imbibition

B. Paramètres CIN

1. Exposition, éclairage et texture CIN

Le processus comprend deux phases principales, la première est l'acquisition des images numériques et la seconde est le traitement numérique des images pour obtenir les résultats souhaités en termes de déplacement complet du champ. L'acquisition des images nécessitait le contrôle de différents paramètres et facteurs liés à l'image elle-même. Une image bien exposée doit avoir un histogramme uniformément réparti sur toute la plage d'intensité, sans aucune région sous-exposée ou surexposée. D'autre part, le contraste de l'image doit respecter certaines règles adéquates pour le traitement des algorithmes CIN, où la texture de la surface du matériau doit être constituée de petites caractéristiques distribuées de manière aléatoire qui peuvent être facilement suivies par l'algorithme de corrélation. Dans notre cas, la texture naturelle de l'échantillon est comparée à une texture appliquée (mouchetis artificiel) pour vérifier si le motif naturel est suffisant pour l'analyse CIN. Ceci est basé sur plusieurs facteurs, tels que la taille des spots où au moins 4 pixels de diamètre sont recommandés. En outre, la taille physique des éléments utilisés dans l'application prévue en simulation, où l'on considère que chaque élément doit contenir au moins 3-4 taches mouchetées (Reu, 2014). Nous avons choisi la plus petite valeur d'ouverture du diaphragme $f/2.8$, ce qui signifie que nous maximisons la quantité de lumière entrant dans l'appareil photo. Les valeurs ISO les plus basses sont choisies dans notre

expérience en raison de la lumière suffisante que nous avons des LED. Les deux sources de lumière ont été placées en diagonale sur l'échantillon. Le TABLEAU 2 récapitule tous les paramètres pris en compte pour chaque image.

TABLEAU 2 Paramètres d'acquisition et d'éclairage

N	Éclairage A (Puissance/Température)	Éclairage B (Puissance/Température)	Temps d'exposition
1	100% 3300k	100% 3300k	1/50
2	100% 4400k	100% 4400k	1/50
3	100% 5600k	100% 5600k	1/50
4	100% 5600k	100% 5600k	1/25
5	10% 5600k	100% 5600k	1/25
6	10% 5600k	100% 5600k	1/50

De plus, nous savons qu'avec un mouchetis artificiel, nous optimisons la texture et la taille de l'élément par rapport à un moucheté naturel. Cependant, l'histogramme en niveaux de gris n'est pas le seul facteur à prendre en compte, la taille des éléments utilisés dans l'analyse CIN a un impact significatif sur la précision et la fiabilité des résultats et doit être testée et comparée entre la moucheture naturelle et artificielle pour vérifier la plus pratique pour le processus de calcul.

2. Principe théorique de la DIC et des outils numériques

La méthode CIN s'appuie sur une diversité d'outils numériques développés pour mesurer avec précision les champs de déformation. Le déplacement de la surface du matériau est mesuré en comparant les images de la surface avant et après la déformation. Le traitement d'un ensemble d'images est réalisé par l'application d'un algorithme de corrélation. L'objectif de l'algorithme est de détecter la distribution du motif sur la surface, puis d'estimer le champ de déplacement en minimisant la différence entre le déplacement de l'image mesuré à l'aide des méthodes des moindres carrés (Équation 2). Les équations détaillées ci-dessous décrivent la dérivation de la solution d'un problème CIN (Hild and Roux, 2008). Les images d'origine et déformées sont considérées comme une fonction scalaire de la coordonnée spatiale. Chaque pixel discret des coordonnées x se voit attribuer une valeur en niveaux de gris. Les fonctions $f(x)$ et $g(x)$ représentent respectivement l'image de référence et l'image déformée. Le champ de déplacement est défini par $u(x)$. Ce champ permet la connexion entre les deux images en exigeant la conservation du flux optique (Équation 1) : La minimisation de la différence quadratique entre les membres droit et gauche intégrée sur le domaine étudié pour estimer $u(x)$.

$$g(x) = f[x + u(x)] \quad \text{Équation 1}$$

$$X^2 = \iint_{\Omega} [u(x) \cdot \nabla f(x) + f(x) - g(x)]^2 dx \quad \text{Équation 2}$$

Dans notre travail on a travaillé initialement pour la partie mécanique avec la version correli_q4 développée par François Hild et Stéphane Roux. Cette version est partagée avec des collègues à des fins de recherche (Hild and Roux, 2008). On a testé l'applicabilité et la validité de cette version avec nos images de tuffeau pour voir si les résultats sont pertinents ou pas. Puis avec les mesures hydriques on a resté toujours dans le même environnement Correli mais avec une version plus récente qui est Correli 3.0 (Leclerc J et al., 2015) avec cette version vue on travaille avec des changements de couleurs on a pu utiliser plus de fonctions liées aux changements de brillance et du contraste afin d'avoir des résultats plus comparables et adéquates.

III. Résultats et discussion

A. Calibrage de l'image

1. Optimisation de niveau de gris et effet de texture

Dans cette section, nous discutons de l'adaptation des motifs naturels du tuffeau pour les mesures de CIN. Des facteurs tels que l'éclairage, l'ouverture et le temps d'exposition doivent être pris en compte lors de l'acquisition d'images. Il est essentiel de s'assurer que les images acquises offrent un contraste suffisant entre l'arrière-plan et le motif. Dans la FIGURE 4, nous présentons l'histogramme en niveaux de gris des différentes conditions d'éclairage et des valeurs d'ouverture, comme mentionné et détaillé dans TABLEAU 2. Toutes les images montrent une distribution en niveaux de gris similaire en termes de forme, cependant, nous avons pu clairement observer que pour les images 5 et 6, la distribution en niveaux de gris est la plus étalée et centrée. Il est plus pratique de travailler avec le maximum possible de distribution en niveaux de gris, ce qui est cohérent avec les histogrammes 5 et 6. Les histogrammes 1 à 4 montrent la même distribution qui couvre principalement les valeurs des niveaux de gris comprises entre 100 et 200 environ. Pour optimiser l'analyse de corrélation, les niveaux de gris doivent couvrir les niveaux maximaux entre le blanc et le noir. Ainsi, travailler avec une distribution centrée devrait être une meilleure solution pour l'analyse où on considère la configuration 6 pour la suite des analyses. Cela ne signifie pas que les autres histogrammes ne sont pas réalisables, mais qu'ils pourraient être optimisés.

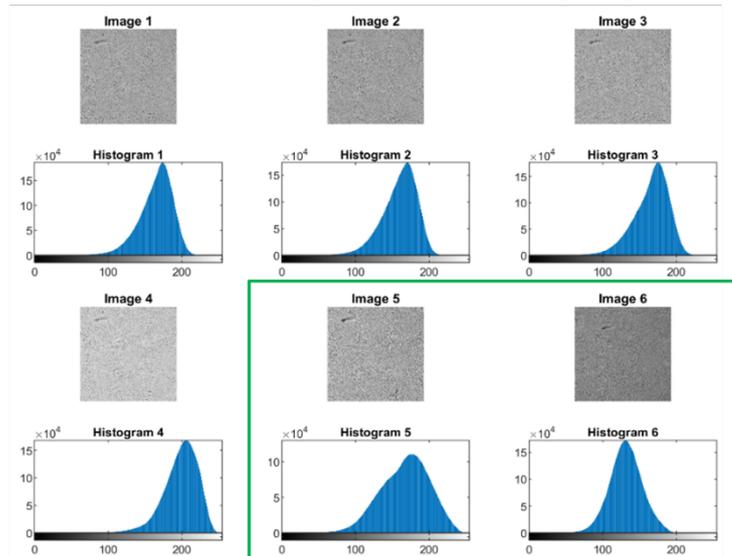


FIGURE 4 Histogrammes en niveaux de gris pour différents types de valeurs d'ouverture et de conditions d'éclairage

2. Effet de taille d'élément

Dans la FIGURE 5, nous présentons la distribution des éléments pour chaque type de texture. La région d'intérêt (ROI) de l'image est égale à 60×60 mm avec une résolution de $25 \mu\text{m}$ pour chaque pixel. Comme nous pouvons le remarquer, lorsque nous zoomons sur une zone d'intérêt (ZOI) de 6×6 mm et que nous considérons une taille de 15 pixels de l'élément utilisé dans le calcul CIN, nous constatons que le motif n'est pas bien distribué dans les deux cas où nous avons trouvé des zones où l'élément est complètement recouvert ou découvert par le motif. Si nous considérons une taille d'élément supérieure à 15 pixels, nous remplissons les conditions requises pour en termes de taches détectées dans l'élément et de taille du motif local, comme indiqué précédemment, où il est considéré que chaque élément doit contenir au moins 3 à 4 taches mouchetées et que la taille des taches doit être d'au moins 4 pixels. Afin de vérifier l'adéquation de la taille de l'élément, un test de compression est effectué sur un cube de tuffeau ($8 \times 8 \times 8$ cm). La déformation dans la direction verticale est visualisée pour une taille d'élément

de 16 et 48 pixels dans la FIGURE 6. Comme nous pouvons l'observer pour les deux zones, nous avons pu constater que pour l'élément de taille 16 pixels, ces zones sont affectées et induisent un bruit remarquable dans les résultats. Les résultats de sortie montrent le niveau de bruit dans les cas locaux et globaux, où nous sommes obligés d'augmenter la taille de l'élément pour réduire le bruit détecté. Pour la taille de 48 éléments, nous avons pu observer que les résultats de sortie sont beaucoup plus représentatifs et homogènes avec moins de bruit. Le choix d'un élément supérieur ou égal à 48 pixels présente un meilleur choix pour l'analyse et remplit les conditions requises pour les exigences de texture pour la texture naturelle, comme nous l'avons vu précédemment.

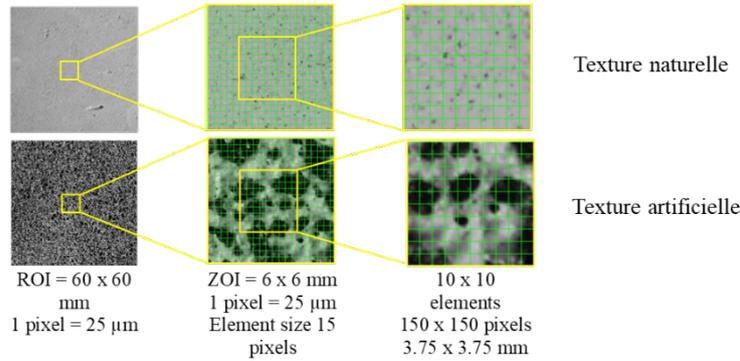


FIGURE 5 Texture et motif artificiel de tuffeau naturel

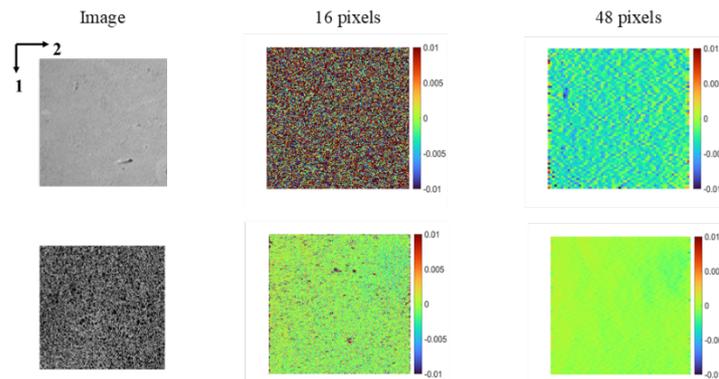


FIGURE 6 Détection du bruit dans la direction verticale pour un élément de 16 et 48 pixels lors d'un test de compression

B. Essais mécaniques – Validation

Enfin, les champs de déplacement et de déformation sont présentés et discutés pendant un essai de compression uni axiale qui a été effectué sur les échantillons cubiques rectifiés. Nous présentons dans la FIGURE 7 les résultats pour le cube rectifié pour un chargement de 50% de la capacité maximale du tuffeau. Les résultats montrent un comportement homogène attendu du champ de déplacement dans les directions 1 et 2 respectivement. La direction 1 qui correspond à la direction verticale, nous nous attendons à un déplacement plus élevé dans la face supérieure en raison de la compression qui lui est appliquée, tandis que pour la face inférieure, nous attendons une valeur de déplacement plus faible en tenant compte du fait que cette face est soutenue verticalement. Le déplacement vertical varie entre 0 et 12 pixels. Pour la direction 2 qui correspond à la direction horizontale, on trouve une dilatation quasi-symétrique due à l'effet du Poisson, ce qui est attendu dans de tels essais de compression. Le déplacement varie entre -2,5 et 2,5 pixels. Pour les champs de la déformation, nous avons observé un modèle conforme avec les champs de déplacement. Dans la direction 1, nous avons un champ homogène globalement avec une valeur moyenne de $-2,25 \times 10^{-3}$ et quelques déformations locales et limitées avec une amplitude moyenne de $-4,5 \times 10^{-3}$. Pour la direction 2, nous avons pu identifier la forme d'un cône

qui correspond bien à la dérivation du champ de déplacement. Une valeur moyenne de 5×10^{-4} est remarquée dans la zone de contour du cube, tandis qu'une valeur de déformation plus élevée de 1×10^{-3} est identifiée dans la zone intérieure du cube. Ces résultats valident nos résultats pour un cube rectifié, où le déplacement et le champ de déformation sont conséquents à ce que nous attendons pour un essai de compression simple. Il convient de mentionner que les zones locales élevées de déformations que nous avons détectées dans les échantillons sont liées à certains défauts dans l'image du tuffeau, où nous avons une variation de contraste liée aux irrégularités du matériau. Ainsi, l'analyse de corrélation est influencée par ces traces et donne des déformations élevées qui ne sont pas liées à la charge mécanique.

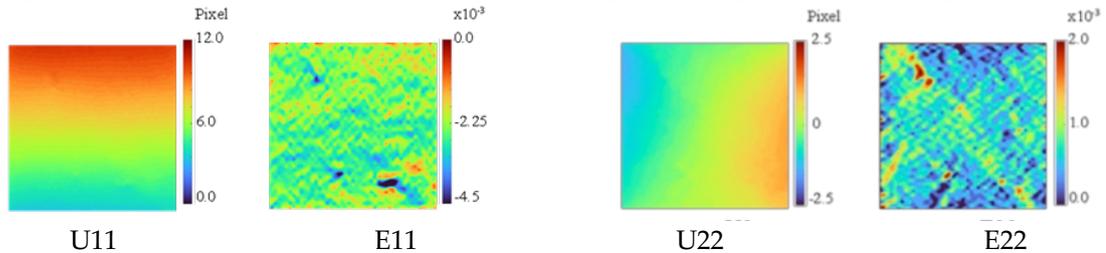


FIGURE 7 Les champs de déplacement et de déformation pour les éprouvettes rectifiées

C. Essais Hydriques – mesure de déformation durant l'imbibition

Des mesures des déformations sont faites par corrélation des images numériques sur une série de images de tuffeau pris lors de l'essai de l'imbibition. En comparant avec les essais mécaniques, afin de détecter les phénomènes déroulant durant l'imbibition, cela exige d'aller avec une échelle plus grande comme on remarque avec la FIGURE 8. La même démarche a été suivi pour le choix de la configuration d'acquisition de ces images. En examinant le résidu de corrélation associé à ces images FIGURE 9, une observation pertinente se dégage. Il devient apparent que la détection du front d'imbibition peut être réalisée efficacement en se basant sur ces résidus. Notamment, des valeurs significatives se manifestent à l'interface des zones imbibée et sèche.

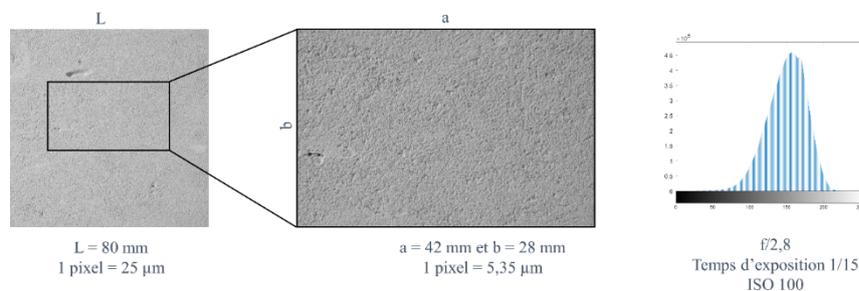


FIGURE 8 Distribution de niveau de contraste pour l'échelle considéré

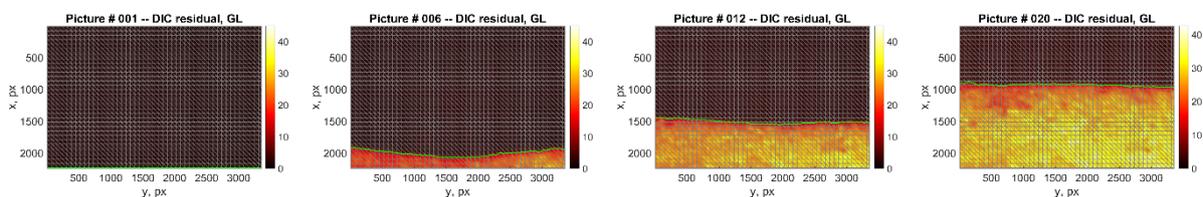


FIGURE 9 Variation du Résidu Lagrangien durant l'imbibition

La FIGURE 10 montre la variation de la déformation moyenne de la zone de la jauge virtuelle. À travers cette approche, les variations de déformation ont été tracées pour trois directions clés : 11, 22, et 12. L'examen de la variation de la déformation dans la direction 2 révèle un phénomène remarquable. Une expansion progressive est détectée en fonction du nombre d'images, avec une légère diminution perceptible entre les images 10 et 15. En examinant attentivement la direction y, une variation

substantielle, de l'ordre de 20×10^{-4} , émerge entre les images 10 et 15. Cette observation significative est directement liée au passage du front d'imbibition, une transition clairement perceptible sur les images associée. Une constatation similaire est faite dans la direction 12, où un pic notable de l'ordre de 10×10^{-4} coïncide avec le même intervalle de temps que celui observé pour E11. Il fait noter que les allures trouvées sont similaires aux mesures faites par des jauges durant des études précédentes (Hassine et al., 2018). Une différence en termes d'amplitudes est remarquable et peut être expliquée par le lien avec la taille des jauges où les valeurs sont moyennes sur la zone couverte par la jauge.

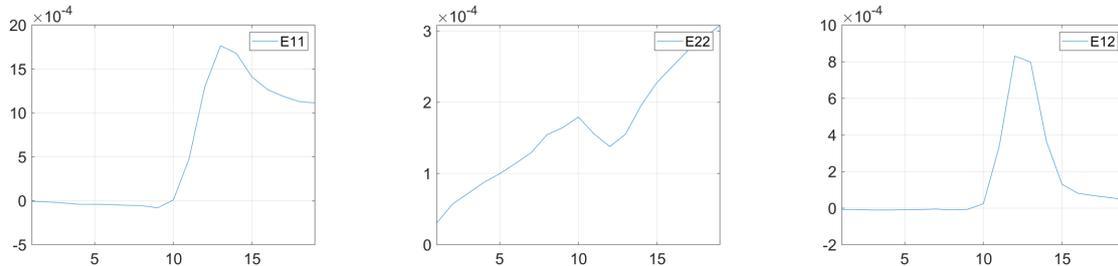


FIGURE 10 Variation de la déformation sous une jauge virtuelle

Dans l'objectif d'obtenir une vision exhaustive des déformations, un champ 2D de la déformation en direction 12 pour l'ensemble de l'image a été généré comme la montre la FIGURE 11. Les résultats révèlent des observations significatives, mettant en lumière une bande de cisaillement qui suit de près le passage du front d'imbibition tout au long du processus. Cette observation suggère une réaction dynamique où la zone imbibée tente de se dilater sous l'absorption d'eau, tandis que la zone sèche, apparemment non encore impactée par l'imbibition, gêne la déformation de la zone imbibée. Cette interaction donne lieu à la formation d'une zone de cisaillement entre les deux régions. Cependant, il est essentiel de souligner que malgré ces découvertes, des calculs supplémentaires sont nécessaires pour évaluer avec précision les incertitudes associées à ces données, ainsi que pour tenir compte des effets potentiels de la luminosité sur les résultats obtenus.

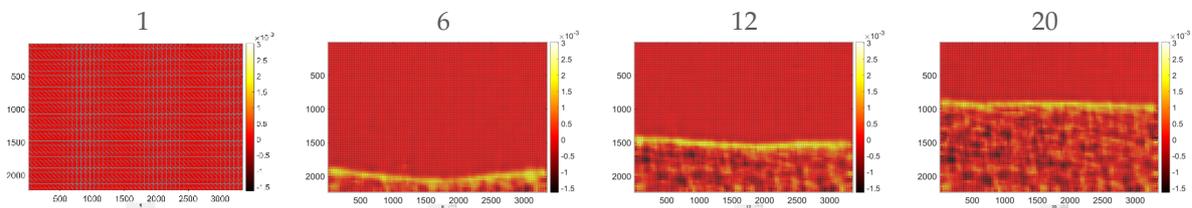


FIGURE 11 Variation de la déformation du cisaillement E12

IV. Conclusion

La corrélation d'images numériques (CIN) a permis de mieux comprendre le comportement des pierres et les dommages qui sont souvent cachés dans ces matériaux. Cette pierre se caractérise par une hétérogénéité et une variété potentielle d'un échantillon à l'autre. Cette imprévisibilité combinée à la fragilité du tuffeau rend le suivi du comportement mécanique très incertain. À travers cette étude, nous soulignons l'importance de l'étalonnage de la configuration CIN, et nous présentons tous les facteurs qui peuvent affecter l'entrée. Nous montrons ce qu'il faut faire en tenant compte de l'éclairage à l'aide des LED, et ce qu'il est important de prendre en compte pour optimiser l'histogramme en niveaux de gris de l'image en termes d'obtention d'un contraste et d'une variabilité suffisants entre les motifs de l'image. Nous avons confirmé que la texture naturelle du tuffeau est pratique pour l'analyse, nous avons testé numériquement la taille optimale de l'élément et l'outil le plus fiable pour faire l'analyse. Ensuite, pour l'étude mécanique, les résultats montrent pour le cube rectifié que notre calibrage est valide. L'analyse des déformations durant l'imbibition de la pierre de tuffeau révèle des variations notables

dans toutes les directions. L'émergence d'une bande de cisaillement, en corrélation avec le front d'imbibition, souligne l'impact dynamique de l'absorption d'eau sur la structure du matériau et construit une base forte sur l'effet potentiel de cette bande sur le développement de la desquamation en couplant autres facteurs importants. Une investigation expérimentale est en cours sur des échantillons desquamés et non desquamés afin d'étudier l'influence des déformations détectées sur le développement des desquamations, ainsi que sur le comportement et la résistance du matériau, notamment en ce qui concerne les contraintes générées.

REFERENCES

- Beck, K., 2006. Étude des propriétés hydriques et des mécanismes d'altération de pierres calcaires à forte porosité. Thèse de doctorat, Université d'Orléans.
- Beck, K., Al-Mukhtar, M., 2010. Weathering effects in an urban environment: A case study of tuffeau, a French porous limestone. *Geol Soc Spec Publ* 331, 103–111. <https://doi.org/10.1144/SP331.8>
- Beck, K., Al-Mukhtar, M., 2004. The mechanical resistance properties of two limestones from France, Tuffeau and Sébastopol, in: *Dimension Stone*.
- Beck, K., Al-Mukhtar, M., Rozenbaum, O., Rautureau, M., 2003. Characterization, water transfer properties and deterioration in tuffeau : building material in the Loire valley-France. *Building and Environment*, Elsevier 1151–1162. [https://doi.org/10.1016/S0360-1323\(03\)00074-Xi](https://doi.org/10.1016/S0360-1323(03)00074-Xi)
- Benavente, D., Cultrone, G., Gomez-Heras, M., 2008. The combined influence of mineralogical, hygric and thermal properties on the durability of porous building stones. *European Journal of Mineralogy* 20, 673–685. <https://doi.org/10.1127/0935-1221/2008/0020-1850>
- Guéguen, Y., Palciauskas, V., 1992. Introduction à la physique des roches.
- Hassine, M.A., Beck, K., Brunetaud, X., Al-Mukhtar, M., 2018. Strain measurements during capillary water infiltration in porous limestones. *Constr Build Mater* 175, 439–447. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2018.04.182>
- Hild, F., Roux, S., 2008. CORRELI Q4: A Software for “Finite-element” Displacement Field Measurements by Digital Image Correlation Internal report no. 269.
- Janvier-Badosa, S., Beck, K., Brunetaud, X., Al-Mukhtar, M., 2014. The occurrence of gypsum in the scaling of stones at the Castle of Chambord (France). *Environ Earth Sci* 71, 4751–4759. <https://doi.org/10.1007/s12665-013-2865-2>
- Janvier-Badosa, S., Beck, K., Brunetaud, X., Guirimand-Dufour, A., Al-Mukhtar, M., 2015. Gypsum and spalling decay mechanism of tuffeau limestone. *Environ Earth Sci* 74, 2209–2221. <https://doi.org/10.1007/s12665-015-4212-2>
- Leclerc J, Neggens J, Mathieur F, Roux Stéphane, Hild, F., 2015. Correli 3.0. Agence pour la Protection des Programmes, Paris (France), IDDN.FR.001.520008.000.S.P.2015.000.31500.
- Reu, P., 2014. All about speckles: Speckle Size Measurement. *Experimental Techniques*, Society for Experimental Mechanics 38. <https://doi.org/https://doi.org/10.1111/ext.12110>
- Segouin, V., 2019. Développement d'un outil de Corrélation d'Images Numériques pour la caractérisation du comportement piézoélectrique et ferroélectrique. Thèse de doctorat, Université Paris-Saclay - CentraleSupélec.
- Sutton, M.A., McNeill, S.R., Helm, J.D., Chao, Y.J., 2000. Two-Dimensional and Three-Dimensional Computer Vision, in: Rastogi, P.K. (Ed.), *Photo-Mechanics*. Springer, pp. 323–372. https://doi.org/https://doi.org/10.1007/3-540-48800-6_10
- Sutton, M.A., Orteu, J.J., Shceier, H., 2009. Image correlation for shape, motion and deformation measurements: Basic concepts, theory and applications, *Image Correlation for Shape, Motion and Deformation Measurements: Basic Concepts, Theory and Applications*. Springer US. <https://doi.org/10.1007/978-0-387-78747-3>

Modélisation physique et numérique du comportement d'un remblai construit sur un sol liquéfiable soumis à un séisme

Chedid SAADE

Département GERS, Laboratoire Centrifugeuses Géotechniques, Université Gustave Eiffel, France

RESUME Modélisations physique et numérique sont combinées pour étudier le comportement d'un remblai homogène construit sur un sol liquéfiable, préparé par du sable Hostun avec la méthode de damage humide. La modélisation physique en centrifugeuse met en évidence directement la réponse du modèle en termes de surpressions interstitielles, accélérations et déplacements. En parallèle, une simulation numérique utilisant la méthode des éléments finis (FEM) a été réalisée avec une loi de comportement avancée, PM4Sand, pour simuler la liquéfaction du sol de fondation. La performance du modèle numérique est ensuite vérifiée par rapport aux résultats des essais en centrifugeuses en termes de surpressions interstitielles, accélérations et déformations.

Mots-clefs Modélisation physique, Simulation numérique, Remblai, Liquéfaction du sol

I. INTRODUCTION

La liquéfaction du sol induite par les séismes peut causer des dommages importants, y compris la rupture des remblais, comme cela a été observé durant le séisme de Turquie en 2023 pour le remblai de la route Koseli. Pour garantir la sécurité de ces structures, il est nécessaire de comprendre leur comportement suite à la liquéfaction du sol de fondation. Pour cela, des modélisations physiques et des simulations numériques ont été effectuées pour étudier le comportement d'un remblai construit sur un sol liquéfiable et soumis à des sollicitations sismiques.

Précédemment, des modèles réduits centrifugés ont été réalisés par [Adalier et Sharp \(2004\)](#), [Pramaditya et Fathani \(2021\)](#), ainsi que par [Pourakbar et al. \(2022\)](#), afin d'étudier le comportement du remblai suite à la liquéfaction du sol de fondation. Ces études ont révélé que la liquéfaction se produit généralement sous la surface libre du sol de fondation près du pied du remblai, tandis que le sol sous le remblai est moins susceptible à la liquéfaction. D'autre part, [Okamura et Matsuo \(2002\)](#), [Tiznado et al. \(2020\)](#) et [Li et al. \(2021\)](#) ont mis en évidence les effets de la remédiation de la liquéfaction sur la réponse du remblai, en tenant compte de différents types de renforcement contre la liquéfaction.

En parallèle, des simulations numériques ont été effectuées en utilisant l'approche basée sur la méthode des éléments finis (FEM) ou la méthode des différences finies (FDM) afin de prédire le comportement du remblai suite à la liquéfaction du sol de fondation. [Bhatnagar et al. \(2016\)](#), [Kassas \(2021\)](#) et [Dinesh et al. \(2022\)](#) ont essayé de reproduire les modèles en centrifugeuse afin de simuler la liquéfaction du sol et la réponse de différentes structures telles que des remblais ou des

fondations superficielles. En général, les études ont démontré que les modèles numériques construits étaient capables de reproduire correctement les réponses en termes d'accélération. Cependant, aux zones situées au-dessous du remblai, il existait des divergences en termes de surpressions interstitielles et de déformations verticales.

Bien que l'objectif général de l'étude est d'évaluer les effets des fines sur la liquéfaction des sols et ainsi sur le comportement du remblai construit sur un sol liquéfiable, on se concentre ici uniquement sur le cas de sable propre.

II. CONSTRUCTION DES MODELES PHYSIQUE ET NUMERIQUE

A. Modèle réduit centrifugés

Un essai en centrifugeuse a été réalisé à l'Université Gustave Eiffel - Campus de Nantes pour étudier le comportement d'un remblai construit sur un sol liquéfiable. La géométrie, la préparation du modèle et le protocole expérimental ont été détaillées dans Saade et al. (2023a, 2023b). Le modèle réduit a été construit dans un conteneur rigide prenant en considération l'accélération centrifuge appliquée (60g) et les règles de similitude (Garnier et al., 2007). Ce modèle (FIGURE 1 et TABLEAU 1) reproduit à l'échelle du prototype un remblai de 6 mètres de hauteur construit sur un sol liquéfiable de 9 mètres d'épaisseur.

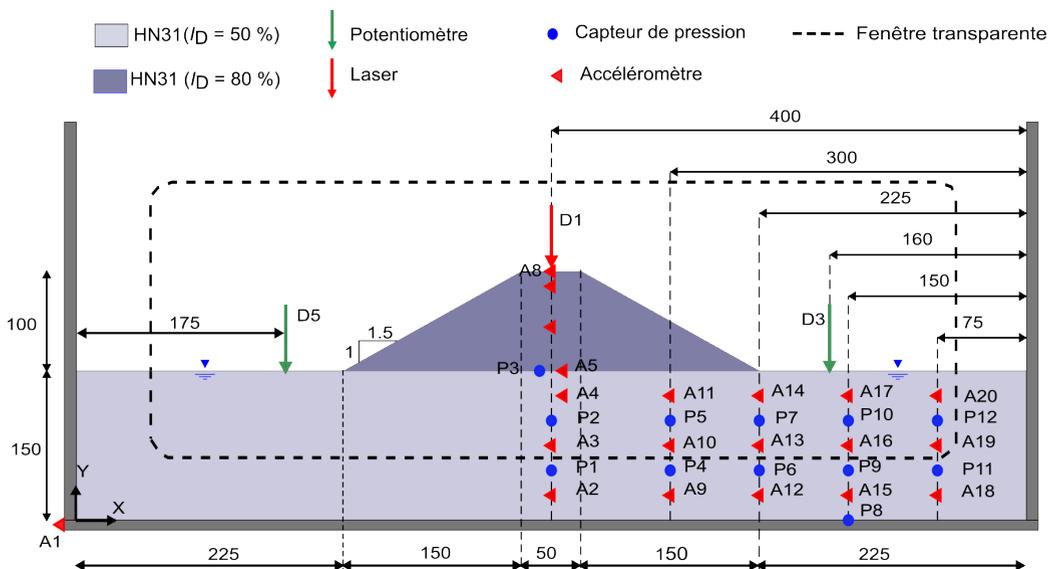


FIGURE 1. Géométrie du modèle physique (Dimensions en mm à l'échelle modèle)

Le modèle réduit a été préparé en différentes étapes. Premièrement, une couche de sol liquéfiable est construite par damage humide (Ladd, 1974) en utilisant du sable Hostun pur (HN31) et pour une densité relative cible $50\% \pm 2\%$. Au-dessus de cette couche compactée, une couche de densité relative cible $80\% \pm 1.5\%$ est construite par pluviation à sec en utilisant le même sable (HN31). Cette dernière couche est arasée pour obtenir la géométrie présentée dans FIGURE 1.

Durant la préparation, le modèle est instrumenté par différents types de capteurs (FIGURE 1). Après la préparation, le modèle est saturé sous-vide à 1g en utilisant un fluide visqueux ayant

une viscosité 60 fois la viscosité de l'eau. Ensuite, une accélération centrifugeuse 60g est appliquée sur le modèle qui est soumis à une excitation sismique générée par une table vibrante 1D implantée dans la centrifugeuse. L'excitation appliquée (FIGURE 2) est un signal sinusoïdal constitué de 20 cycles, de fréquence dominante 1.5 Hz (prototype) et d'amplitude maximale égale à 0.2g (prototype).

TABLEAU 1. Caractéristiques du modèle

Paramètre	Facteur d'échelle (Modèle/Prototype)	Dimension	
		Prototype	Modèle
Hauteur du remblai	1/N	6 m	100 mm
Pente du remblai	1	1/1.5	1/1.5
Épaisseur de la couche liquéfiable	1/N	9 m	150 mm
Viscosité du fluide utilisé	N	1 cSt	60 cSt

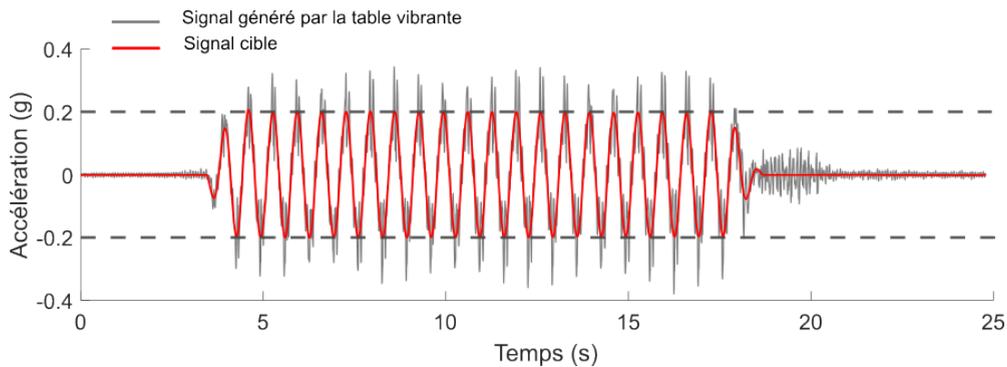


FIGURE 2. Profil du signal d'entrée

B. Modèle numérique

Le modèle numérique 2D a été construit en utilisant la plateforme OpenSees afin de reproduire les essais en centrifugeuse. Le modèle numérique développé par Saade, et al. (2023a) est brièvement présentée dans cette partie. Le maillage par éléments finis (FEM) est réalisé (FIGURE 3) à l'aide d'éléments quadrilatéraux à 4 nœuds SSPQuandUP. Le remblai est constitué de 756 éléments, tandis que le sol liquéfiable est constitué de 1728 éléments. Les conditions aux limites du modèle numérique reproduisent les conditions réelles du conteneur rigide utilisé dans l'essai en centrifugeuse. Les nœuds à la base sont fixés dans les directions X et Y, et les nœuds sur les bords latéraux sont fixés dans la direction X. Des conditions drainées sont pour la surface libre du sol liquéfiable et la surface du remblai, tandis que des conditions non drainées sont adoptées pour la base et les bords latéraux du modèle.

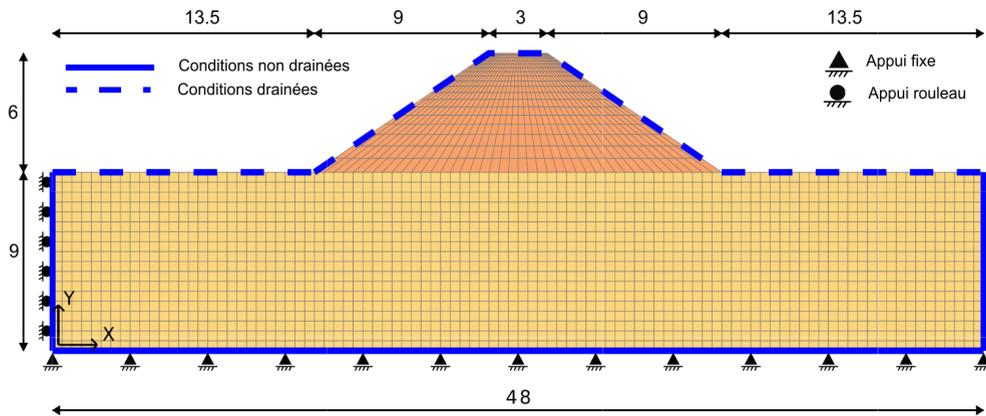


FIGURE 3. Géométrie du modèle numérique

Le sol liquéfiable est modélisé en utilisant une loi de comportement avancée PM4Sand (Boulanger et Ziotopoulou, 2015), qui décrit la plasticité du sable contrôlée par le rapport de contrainte lié à la surface limite et l'état critique (Dafalias et Manzari, 2004). La calibration de la loi de comportement PM4Sand nécessite la définition de 27 paramètres, parmi lesquels 6 sont primaires (densité relative, coefficient de module de cisaillement, rapport de contraction, pression atmosphérique et deux autres paramètres "flag"), ainsi que 21 paramètres secondaires. La calibration, effectuée par la simulation numérique des essais cycliques de cisaillement non drainés, est présentée dans la FIGURE 4 et détaillée dans Saade et al. (2023a). Le remblai est modélisé avec le critère de rupture de Drucker-Prager en utilisant un angle de frottement de 38 degrés et une cohésion de 65 kPa (Saade et al., 2023a). La cohésion a été recalculée afin d'ajuster les tassements de la crête avec ceux obtenus lors de l'essai en centrifugeuse. Le modèle numérique a été réalisé en trois étapes différentes : la consolidation, l'excitation dynamique et la phase de dissipation. Le modèle numérique est excité en utilisant le signal généré par la table vibrante (FIGURE 2) durant l'essai en centrifugeuse. Pendant l'excitation dynamique et la phase de dissipation, une perméabilité variable dépendante des surpressions interstitielles, telle que proposée par Shahir, et al. (2014) et présentée par Saade et al. (2023a), est adoptée.

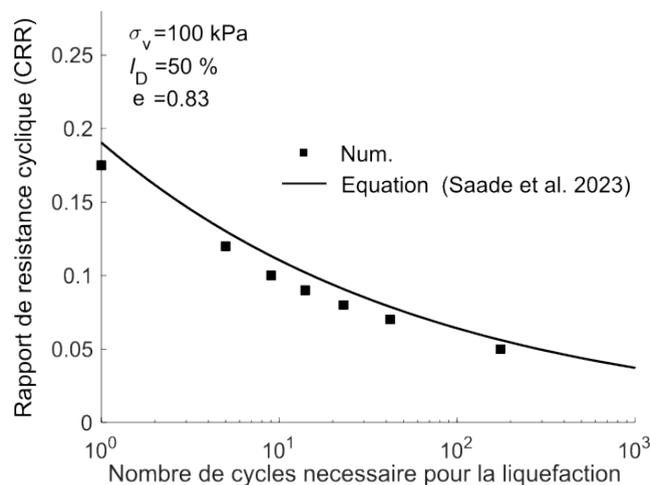


FIGURE 4. Calibration de la loi de comportement PM4Sand : Les courbes de rapports des résistances cycliques en fonction du nombre de cycles nécessaire pour la liquéfaction

III. RESULTATS EXPERIMENTAUX

A. Liquéfaction du sol de fondation

La liquéfaction du sol de fondation est étudiée en termes de surpressions interstitielles (FIGURE 5) et d'accélération (FIGURE 6) enregistrées durant l'essai.

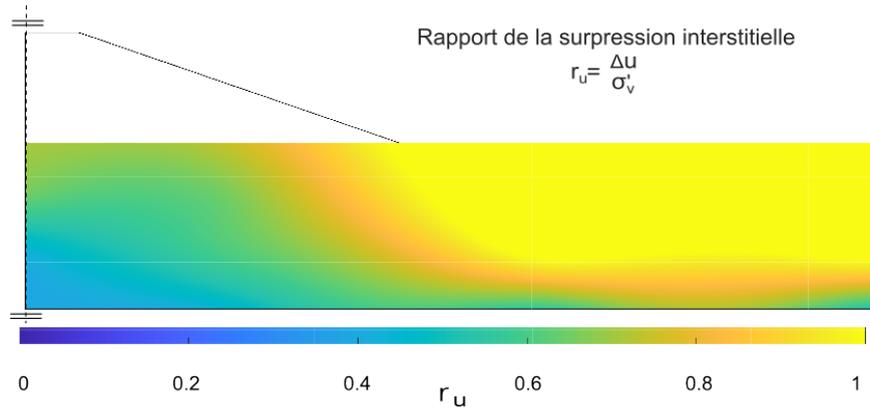


FIGURE 5. Distribution des rapports maximaux des surpressions interstitielles

La FIGURE 5 illustre la distribution des rapports maximaux des surpressions interstitielles (r_u) dans le modèle durant l'essai. La liquéfaction ne se produit pas sous le remblai où les surpressions interstitielles n'excèdent pas 50% de la contrainte effective verticale initiale. Cependant, la liquéfaction est observée sous la surface libre du sol de fondation où les surpressions interstitielles atteignent 100% de la contrainte effective verticale initiale. Ces zones liquéfiées s'étendent à 6 m de profondeur et sous le pied du remblai.

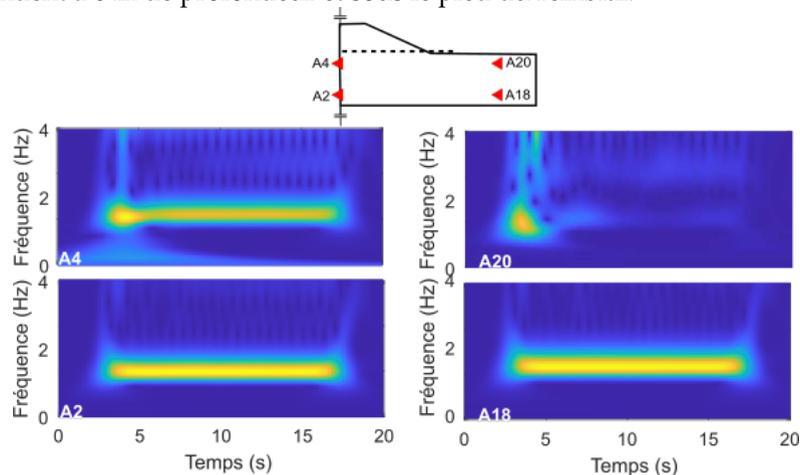


FIGURE 6. Représentation de Stockwell des accélérations sous le remblai et la surface libre du sol

La liquéfaction du sol de fondation est étudiée aussi par des analyses temps-fréquence des accélérations enregistrées durant l'essai. La représentation de Stockwell (Kramer et al., 2016) est présentée dans la FIGURE 6 pour les accélérations sous le remblai et sous la surface libre du sol de fondation. Cette représentation permet d'identifier les zones liquéfiées et d'évaluer l'initiation de la liquéfaction en identifiant le moment auquel elle s'est produite (Özener et al., 2020). Sous la

surface libre du sol de fondation, une disparition de la fréquence dominante du signal est observée après environ 5s à la position superficielle (A20). Par contre, sous le remblai, aucune perte du contenu fréquentiel est observée. Ces observations affirment que la liquéfaction a eu lieu après 5s sous la surface libre du sol de fondation.

B. Comportement du remblai

La réponse du remblai est étudiée à travers les déformations et les déplacements verticaux enregistrés lors de l'essai, comme présenté dans la **FIGURE 7**. Un tassement important de 0.7m au niveau de la crête du remblai (12% de la hauteur du remblai) est enregistré durant l'essai (**FIGURE 7(a)**). De plus, un soulèvement de 0.04m de la surface libre du sol de fondation est aussi observé (**FIGURE 7(b)**). Ce soulèvement est expliqué par un déplacement latéral au niveau du pied du remblai. A partir des observations directes et des déplacements enregistrés durant les essais, le modèle de déformation du remblai est caractérisé par un tassement de crête et un déplacement vertical du pied (**FIGURE 7(c)**).

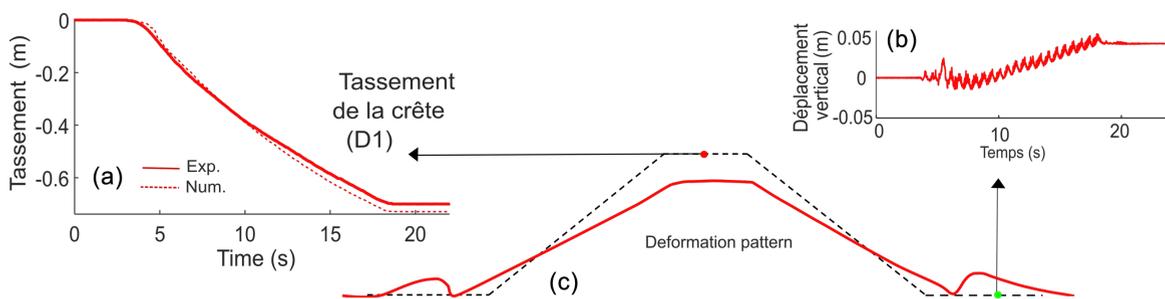


FIGURE 7. Déformations et déplacements du remblai lors de l'essai : (a) Tassement de la crête, (b) déplacement vertical de la surface libre et (c) modèle de déformation du remblai

IV. VERIFICATION DU MODELE NUMERIQUE

A. Prédiction des accélérations

La vérification de la performance du modèle numérique a été évaluée en termes d'accélérations en utilisant les critères d'Anderson ([Anderson, 2004](#)). À chaque position d'accélération, un score entre 0 et 10 a été calculé afin de classer l'ajustement entre les résultats expérimentaux et numériques de faible (Poor) à excellent (Excellent). Ces scores évaluent la correspondance entre les résultats numériques et expérimentaux en termes de différents paramètres tels que l'accélération maximale (PGA), la vitesse maximale (PGV), le déplacement maximal (PGD) et d'autres paramètres. La **FIGURE 8** présente la distribution des scores d'Anderson dans le modèle durant l'essai. Globalement, les accélérations sont classées comme un bon ajustement, en particulier au niveau des zones liquéfiées sous la surface libre du sol de fondation. Cependant, des faibles scores sont observés au niveau du remblai et des zones proches du remblai. Ces faibles scores sont liés à l'état du remblai caractérisé par son état humide non homogène durant l'essai en centrifugeuse.

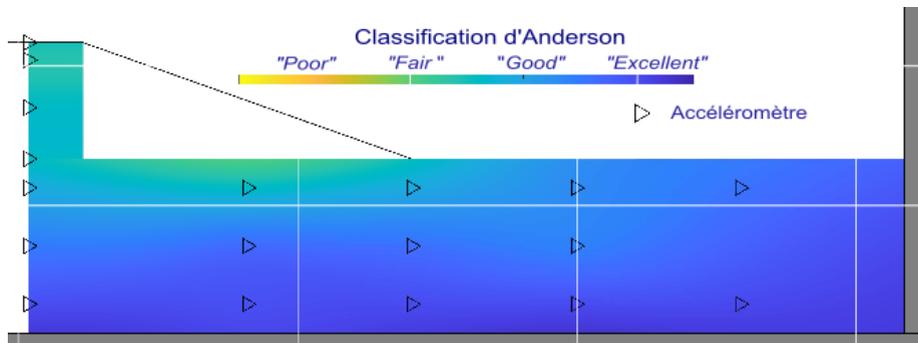


FIGURE 8. Distribution des scores d'Anderson dans le modèle

B. Prédiction des surpressions interstitielles

La prédiction des surpressions interstitielles est également évaluée en comparant les surpressions maximales atteintes expérimentalement à celles calculées à partir du modèle numérique. La FIGURE 9 illustre la distribution de cette différence calculée dans le sol de fondation. En général, la différence ne dépasse pas 30%, surtout sous la surface libre du sol liquéfiable où la liquéfaction s'est produite. Cependant, les différences les plus élevées sont observées à la surface entre le remblai et le sol liquéfiable. Par conséquent, le modèle numérique aide à prédire la génération des surpressions interstitielles et la liquéfaction observée sous la surface libre du sol de fondation. Cependant, des divergences sont observées sous le remblai et sont liées à l'état humide et non homogène du remblai durant l'essai.

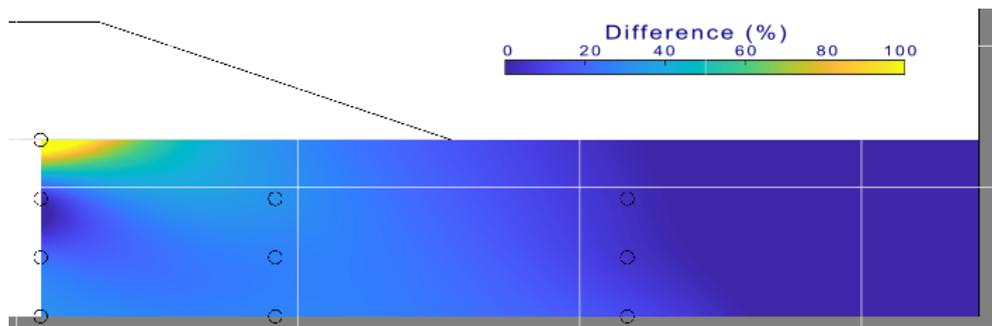


FIGURE 9. Distribution de la différence des surpressions interstitielles dans le modèle

C. Prédiction du modèle de déformation

L'évaluation de la déformation du modèle et des déplacements verticaux a également été réalisée en comparant les résultats numériques et expérimentaux. Comme le montre les FIGURES 7 et 10, le modèle numérique prédit bien le schéma de déformation du remblai caractérisé par un tassement important au niveau de la crête suivi d'un déplacement latéral des pieds du remblai. Le modèle numérique est capable de prédire également le soulèvement de la surface libre du sol de fondation créée par le déplacement latéral du pieds de remblai.

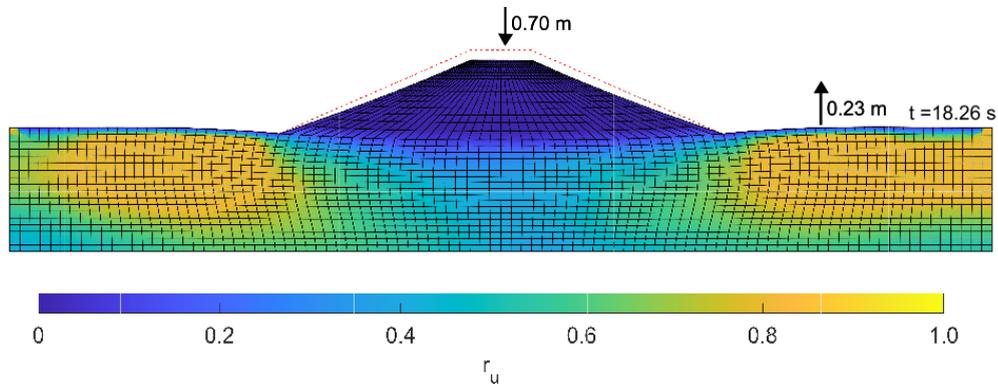


FIGURE 10. Déformation et distribution du rapport des surpressions interstitielles (r_u) dans le modèle

V. CONCLUSION

Dans cette étude, un modèle réduit centrifugé a été construit pour étudier la réponse d'un remblai construit sur un sol liquéfiable. En parallèle, une simulation numérique directe du modèle réduit a été effectuée. En se basant sur les deux approches (expérimentale et numérique), les conclusions suivantes peuvent être tirées :

- La liquéfaction, observée par les surpressions superficielles et les accélérations enregistrées durant l'essai, se produit sous la surface libre du sol de fondation. Cependant, le phénomène de liquéfaction ne se produit dans les positions profondes et sous le remblai. Les zones liquéfiées sont limitées à des positions peu profondes et sous les pieds du remblai.
- La déformation du remblai est caractérisée par un tassement de la crête suivi d'un déplacement latéral des pieds. Ce déplacement latéral peut entraîner un soulèvement au niveau de la surface libre du sol de fondation.
- Le modèle numérique construit peut bien prédire la réponse en accélération, en particulier dans le sol liquéfiable où la liquéfaction a été observée. Le modèle numérique peut également prédire la surpression interstitielle générée dans le sol liquéfiable, en particulier sous la surface libre du sol de fondation. Le schéma de déformation du remblai caractérisé par le tassement de la crête et le déplacement latéral des pieds du remblai est également reproduit par le modèle numérique

REMERCIEMENTS

L'auteur tient à remercier le financement apporté à ces travaux par l'Université Gustave Eiffel et la Région Pays de la Loire. De plus, des remerciements sont adressés à l'équipe de la centrifugeuse (chercheur-ses et techniciens), ainsi qu'un remerciement particulier à l'équipe d'encadrement de thèse.

REFERENCES

- Adalier, K., & Sharp., M. K. (2004). Dynamic behavior of embankment dam on liquefiable foundation subject to moderate earthquake loading. *13th World Conference on Earthquake Engineering* (No. 1025)
- Anderson, J. G. (2004). Quantitative measure of the goodness-of-fit of synthetic seismograms. *13th World Conference on Earthquake Engineering*, 243.
- Bhatnagar, S., Kumari, S., & V. A. Sawant. (2016). Numerical Analysis of Earth Embankment Resting on Liquefiable Soil and Remedial Measures. *International Journal of Geomechanics*, 16(1), 04015029. [https://doi.org/10.1061/\(ASCE\)GM.1943-5622.0000501](https://doi.org/10.1061/(ASCE)GM.1943-5622.0000501)
- Boulanger, R. W., & Ziotopoulou, K. (2015). PM4Sand Version 3 : A sand plasticity model for earthquake engineering applications. Centre for Geotechnical Modeling. <https://ucdavis.box.com/s/zawzrqpdw3qqu9gsaad3y88egjen4crw>
- Dafalias, Y., & Manzari , M. T. (2004). Simple Plasticity Sand Model Accounting for Fabric Change Effects. *Journal of Engineering Mechanics*, 130(6). [https://doi.org/10.1061/\(ASCE\)0733-9399\(2004\)130:6\(622\)](https://doi.org/10.1061/(ASCE)0733-9399(2004)130:6(622)).
- Dinesh, N., Banerjee, S., & Rajagopal, K. (2022). Performance evaluation of PM4Sand model for simulation of the liquefaction remedial measures for embankment. *Soil Dynamics and Earthquake Engineering*, 152, 107042. <https://doi.org/10.1016/j.soildyn.2021.107042>
- Garnier, J., Gaudin, C., Springman, S. M., Culligan, P. J., Goodings, D., Konig, D., Kutter, B., Phillips, R., Randolph, M. F., & Thorel, L. (2007). Catalogue of scaling laws and similitude questions in geotechnical centrifuge modelling. *International Journal of Physical Modelling in Geotechnics*, 7(3), 01–23. <https://doi.org/10.1680/ijpmg.2007.070301>
- Kassas, K. (2021). Structure-Soil-Structure Interaction (SSSI) of adjacent buildings founded on liquefiable soil [Doctoral Thesis, ETH Zurich]. <https://doi.org/10.3929/ethz-b-000511100>
- Kramer , S. L., Sideras , S. S., & Greenfield, M. W. (2016). The timing of liquefaction and its utility in liquefaction hazard evaluation. *Soil Dynamics and Earthquake Engineering*, 91, 133–146. <https://doi.org/10.1016/j.soildyn.2016.07.025>
- Ladd, R.S. (1974). Specimen Preparation and Liquefaction of Sands. *Journal of the Geotechnical Engineering Division*, 100(10), 1180–1184. <https://doi.org/10.1061/AJGEB6.0000117>
- Li, Y., Kitazume, M., Takahashi, A., Harada, K., & Ohbayashi, J. (2021). Centrifuge study on the effect of the SCP improvement geometry on the mitigation of liquefaction-induced embankment settlement. *Soil Dynamics and Earthquake Engineering*, 148, 106852. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.soildyn.2021.106852>
- Okamura, M., & Matsuo, O. (2002). Effects of remedial measures for mitigating embankment settlement due to foundation liquefaction. *International Journal of Physical Modelling in Geotechnics*, 2(2), 01–12. <https://doi.org/10.1680/ijpmg.2002.020201>
- Özener, P. T., Greenfield, M. W., Sideras, S. S., & Kramer, S. L. (2020). Identification of time of liquefaction triggering. *Soil Dynamics and Earthquake Engineering*, 128, 105895. <https://doi.org/10.1016/j.soildyn.2019.105895>

Pramaditya, A., & Fathani, T. (2021). Physical Modelling of Earthquake-induced Liquefaction on Uniform Soil Deposit and Earth Structures Settlement. *Journal of the Civil Engineering Forum*, 7(1), 85-96. <https://doi.org/10.22146/jcef.59467>

Pourakbar, M., Khosravi, M., Soroush, A., Hung, W.-Y., Hoang, K. K. et Nabizadeh, A. (2022). Dynamic Centrifuge Tests to Evaluate the Seismic Performance of an Embankment Resting on Liquefiable Ground Improved by Unreinforced and Reinforced Soil–Cement Columns. *Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering*, 148(12), 04022106. [https://doi.org/10.1061/\(ASCE\)GT.1943-5606.0002891](https://doi.org/10.1061/(ASCE)GT.1943-5606.0002891)

Shahir, H., Pak, A., Taiebat, M., & Jeremić, B. (2012). Evaluation of variation of permeability in liquefiable soil under earthquake loading. *Computers and Geotechnics*, 40, 74–88. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.compgeo.2011.10.003>

Tiznado, J. C., Dashti, S., Ledezma, C., Wham, B. P., & Mahir Badanagki. (2020). Performance of Embankments on Liquefiable Soils Improved with Dense Granular Columns: Observations from Case Histories and Centrifuge Experiments. *Journal of Geotechnical and Geoenvironmental Engineering*, 146(9), 04020073. [https://doi.org/10.1061/\(ASCE\)GT.1943-5606.0002309](https://doi.org/10.1061/(ASCE)GT.1943-5606.0002309)

Saade, C., Li, Z., Escoffier, S., & Thorel, L. (2023a). Centrifuge and numerical modeling of the behavior of homogeneous embankment on liquefiable soil subjected to dynamic excitation. *Soil Dynamics and Earthquake Engineering*, 172, 107999. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.soildyn.2023.107999>

Saade, C., Li, Z., Escoffier, S., & Thorel, L. (2023b). Centrifuge data of a homogeneous embankment model resting on liquefiable soil subjected to a strong dynamic excitation - Experimental Database (Version V2). *Recherche Data Gouv.* <https://doi.org/10.57745/LDNZR9>

Optimisation des propriétés d'usage, de la durabilité et de la qualité environnementale d'un isolant biosourcé pour le bâtiment

Myriam Goutière

Laboratoire Matériaux et Durabilité des Constructions (LMDC), Université de Toulouse, INSA, UPS, France

RESUME La moelle de tournesol est une ressource très répandue dans le Sud-Ouest de la France. Ses propriétés la distinguent d'autres particules végétales, notamment sa structure alvéolaire et sa porosité particulière très élevée qui lui confèrent un fort potentiel d'isolation thermique, en vrac ou agglomérée en panneaux.

L'influence des procédés de transformation et de purification des tiges de tournesol sur les propriétés d'usage des panneaux isolants est étudiée via l'utilisation de 4 moelles présentant différents taux de pureté et de granulométrie. L'étude est menée sur des fractions de moelle modèles dont la pureté est altérée en ajoutant de l'écorce de tournesol, permettant d'obtenir des masses volumiques en vrac de 40 à 60 kg/m³ au lieu des 22 kg/m³ de la moelle pure. La granulométrie est également contrôlée pour fournir une moelle plus grossière et une moelle fine, de masses volumiques variant de 18 à 25 kg/m³. Cette granulométrie influe peu sur la conductivité thermique contrairement à la présence d'écorce. Les résultats thermiques restent très satisfaisants pour ce type de matériaux (39 à 49 mW/(m.K)). Les performances mécaniques des panneaux contenant de l'écorce ainsi que des grosses particules de moelle sont inférieures à celles des panneaux utilisant la moelle pure de référence ou les petites particules.

Mots-clefs Moelle de tournesol, écorce, isolation, propriétés d'usage, durabilité

I. INTRODUCTION

En France, le secteur du bâtiment représente 45% de la consommation d'énergie et près de 27% des émissions de CO₂ (Ministère de la Transition écologique, 2024). Pour réduire l'impact de ce secteur sur l'environnement, l'utilisation de matériaux biosourcés dans la construction est en plein essor. La première étape essentielle pour réduire la consommation d'énergie est d'isoler thermiquement les bâtiments. L'approche conventionnelle consiste à utiliser des matériaux minéraux ou à base de pétrole tels que la laine de verre ou le polystyrène. Cependant, ces

matériaux à base de pétrole, une matière première non renouvelable, conduisent à l'émission de gaz à effet de serre (GES) et consomment beaucoup d'énergie lors de leur production, et leur fin de vie peut causer des problèmes environnementaux car leur recyclage peut être difficile (Korjenic et al., 2016; Marten and Hicks, 2018). En France, une nouvelle Réglementation Environnementale (RE2020) (Ministère de la Transition écologique and Cerema, 2022) vise à réduire l'impact environnemental du secteur du bâtiment, notamment durant la phase de construction. Cet impact est calculé sur l'ensemble du cycle de vie du bâtiment et non uniquement pendant son utilisation. La RE2020 encourage entre autres à l'utilisation de matériaux biosourcés, qui sont des matières premières renouvelables, locales et peu transformées, et qui permettent un stockage temporaire du carbone grâce à sa séquestration par photosynthèse au cours de la croissance de la plante. Plusieurs auteurs ont souligné l'intérêt d'utiliser ces matériaux biosourcés comme matériaux isolants, comme (Amziane et al., 2017; Avellaneda et al., 2023; Bacoup et al., 2019; Laborel-Préneron et al., 2021; Mati-Baouche et al., 2015). Non seulement ils présentent de bonnes propriétés thermiques, mais ils permettent également aux agriculteurs d'avoir un revenu supplémentaire puisque ces matériaux ne sont actuellement pas valorisés. Ce qui était autrefois considéré comme des déchets agricoles est aujourd'hui de plus en plus considéré comme des co-produits valorisables. Pour mettre les choses en perspective, environ 870 millions d'hectares de tournesol ont été récoltés en France en 2022 (Agreste Ministère de l'Agriculture, 2023a), contre seulement 19,3 millions d'hectares de chanvre (Agreste Ministère de l'Agriculture, 2023b), qui est actuellement le sous-produit agricole le plus étudié pour les applications de matériaux de construction (Ratsimbazafy, 2021). En 2022, le rendement est de 62 q/ha, en baisse, pour le chanvre (textile et industriel) et de 20,7 q/ha, en augmentation de 25% en 2023, pour le tournesol. L'objectif de ce travail est de caractériser les propriétés d'usage du matériau de référence (moelle pure) telles que la conductivité thermique et les propriétés hygromécaniques et d'estimer l'impact du procédé de transformation sur les propriétés d'usage. La conductivité thermique attendue sur ce type de matériaux biosourcés est comparable à celle des isolants conventionnels (Chabannes et al., 2015; Lenormand et al., 2017; Novi et al., 2024), inférieure à 0,05 W/(m.K). En effet, l'impact environnemental de ces granulats biosourcés dépend de leur niveau de transformation et de la complexité de ce dernier. Afin de réduire au maximum cet impact, un compromis doit être trouvé entre propriétés d'usage et procédé de transformation minimal et peu énergivore.

L'article présente la méthodologie de fabrication, composition et caractérisation des différentes fractions de moelle, puis le processus de fabrication de panneaux à base de moelle de tournesol ainsi que les résultats de l'influence du procédé de transformation sur les propriétés thermomécaniques des panneaux.

II. METHODES

Des travaux antérieurs ayant déjà étudié ce type de matériaux, les protocoles utilisés pour la caractérisation des granulats proviennent de travaux de recherche (Ratsimbazafy, 2021) ou de recommandations issues des travaux du TC RILEM 236-BBM (Amziane et al., 2017). La conductivité thermique des panneaux est mesurée grâce à la méthode de la plaque chaude gardée via le LambdaMètre EP500 de Meßtechnik. Des essais mécaniques ont également été réalisés sur

les panneaux. Les essais de flexion trois points ont été réalisés sur quatre échantillons de chaque formulation à une vitesse constante de 10 mm/min, conforme aux méthodes de la norme NF EN 12089. Le calcul du module d'élasticité E [MPa] est réalisé selon la norme BS EN 310. L'essai de compression a été réalisé sur six éprouvettes de chaque formulation. Conformément à la norme NF EN 826, une vitesse de compression de 0,1 d/min (avec d la hauteur de l'échantillon [mm]) a été appliquée.

III. COMPOSITION ET CARACTERISATION DES DIFFERENTES FRACTIONS DE MOELLE

Les granulats sont fournis par la filiale R&D des coopératives agricoles Maïsadour et Vivadour nommée *Ovalie Innovation* et viennent du Sud-Ouest de la France. La tige de tournesol (Fig. 1) est tout d'abord séchée après avoir été collectée. Elle fait ensuite l'objet d'une transformation qui vise à fractionner cette tige par broyage, puis à séparer les particules les plus légères de moelle des particules plus lourdes d'écorce (Fig. 2).

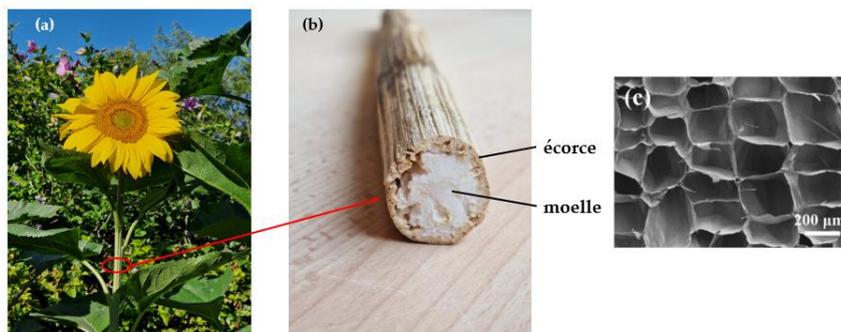


FIGURE 1. Plante de tournesol (a), tige (b), moelle vue au MEB (Zhang et al., 2022) (c).



FIGURE 2. Granulats en vrac : moelle de tournesol (de référence) (a), écorce pure (b) moelle très impure (MTI) (c).

Afin d'évaluer l'influence des procédés de transformation sur les propriétés des panneaux isolants, plusieurs moelles de différentes puretés et granulométries sont utilisées. Les principaux résultats de la caractérisation physique des granulats sont présentés dans le Tab. 1. Deux moelles de pureté moindre ont été créées en ajoutant de l'écorce tamisée à 4 mm à la moelle pure, appelée « moelle de référence » : la moelle impure (MI) et la moelle très impure (MTI). MI est composée en masse de 50% d'écorce pure et 50% de moelle de référence, et MTI de 70% d'écorce et 30% de moelle. Deux niveaux de granulométrie ont également été créés par tamisage à 6,3 mm : les particules grossières (H50) et les particules plus petites (L50). Le but est de recréer plusieurs

moelles qui pourraient être produites à moindre coût financier et environnemental puisque moins d'étapes de transformation (comme la purification) seraient nécessaires.

TABLEAU 1. Caractéristiques des granulats étudiés.

	Moelle de référence	Moelle impure (MI)	Moelle très impure (MTI)	H50	L50	Ecorce pure
$\rho_{\text{vrac SEC}}$ [kg/m ³]	18,1 ± 0,7	36,2 ± 1,8	47,6 ± 2,1	16,4 ± 0,3	21,7 ± 0,6	125,2 ± 3,9
$\rho_{\text{vrac}}^{\text{ambiant}}$ [kg/m ³]	22,0 ± 0,6	42,2 ± 2,0	59,1 ± 2,9	18,6 ± 0,4	25,4 ± 1,1	143,4 ± 4,4
$\rho_{\text{particule}}$ [kg/m ³]	46,0 ± 1,2	101,0 ± 4,1	128,2 ± 6,4	42,1 ± 1,1	57,0 ± 2,8	410 ± 13,4

avec ρ_{vrac} la masse volumique apparente en vrac ; $\rho_{\text{particule}}$ la masse volumique apparente des particules à sec.

On observe que les particules de moelle de tournesol ont une masse volumique en vrac très faible, de l'ordre d'une vingtaine de kg/m³. L'ajout d'écorce, qui, pure, a une masse volumique en vrac environ 7 fois plus élevée, augmente significativement ρ_{vrac} de MI et MTI. La masse volumique en vrac de la moelle impure (MI), ayant 50% en masse d'écorce, double environ et ρ_{vrac} de la moelle très impure (MTI), avec 70% en masse d'écorce, est multipliée environ par 2,7. Les plus grosses particules de moelle (H50) présentent une masse volumique en vrac légèrement plus faible que la référence alors que la masse volumique particulaire de L50 est plus élevée que celle de la moelle de référence. Cela peut être expliqué par une présence importante de très petites particules qui auraient pu être écartées lors de l'échantillonnage de la moelle de référence.

L'étude de la morphologie des granulats via une analyse d'images et le logiciel *ImageJ* permet d'étudier la circularité et la granulométrie des différents granulats. Ces résultats sont présentés dans les Fig. 3 et 4.

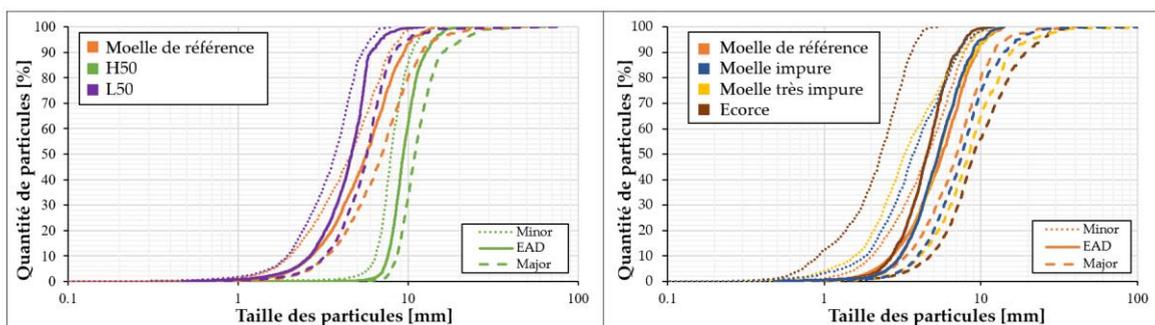


FIGURE 3. Granulométrie des granulats étudiés.

Les particules de moelle de tournesol seules présentent un fuseau entre l'axe majeur et l'axe mineur resserré autour du EAD (Diamètre équivalent Surface) contrairement aux particules d'écorce qui sont, elles, plus allongées et présentent un fuseau plus large (Fig. 3). La moelle de référence possède un D50 autour de 6 mm. Cette donnée permet de justifier le choix de tamiser la moelle de référence à 6,3 mm afin d'obtenir ces deux fractions de granulométries variées.

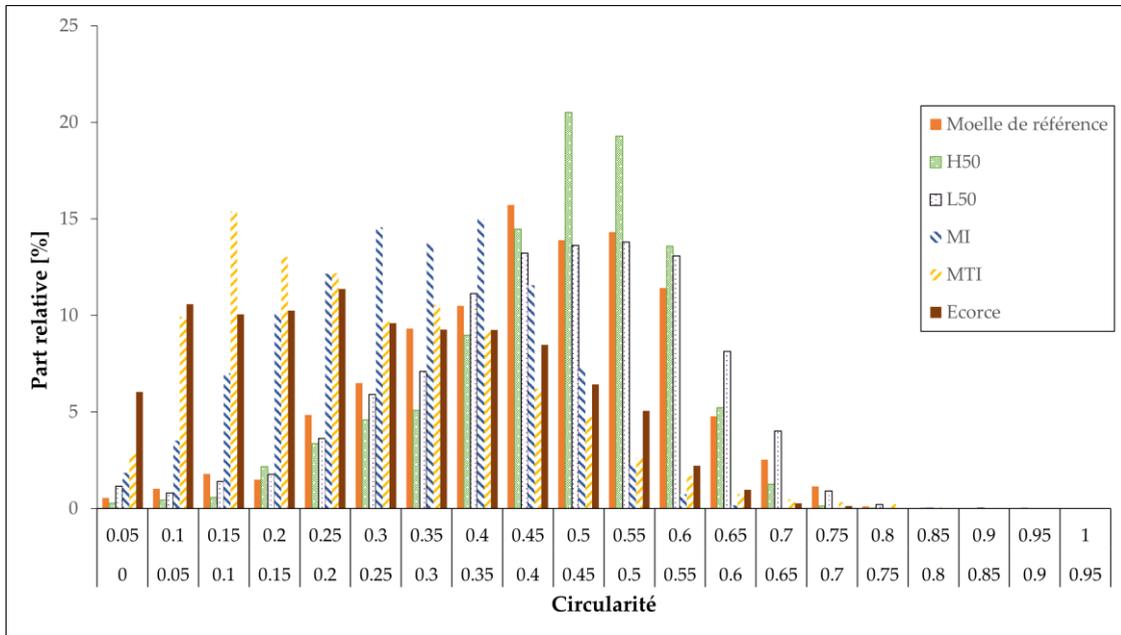


FIGURE 4. Circularité des granulats étudiés.

Plus les valeurs de circularité se rapprochent de 1, plus la particule est sphérique. Les particules de moelle de référence ont une circularité plus élevée que les mélanges contenant des particules d'écorce, qui ont également une circularité plus élevée que celle de l'écorce pure (Fig. 4). Le réarrangement dépendant entre autres de la circularité des granulats, il est intéressant de connaître cette donnée.

IV. FORMULATION ET FABRICATION DES PANNEAUX ISOLANTS 100% BIOSOURCES

Deux types de panneaux sont fabriqués pour chaque type de granulats : des panneaux avec ajout de liant externe et des panneaux sans ajout de liant externe. Les formulations sont précisées dans le Tab. 2. Le liant utilisé est un liant à base d'amidon du commerce. Les granulats sont stockés à l'ambiance et leur humidité est d'environ 10%.

Lors d'une fabrication avec ajout de liant externe (dosage massique liant/eau = 7,5%), la poudre est d'abord dissoute par agitation manuelle dans de l'eau du robinet à température ambiante (20°C) puis le tout est mélangé à la main aux particules avant d'être versé dans le moule. Lors d'une fabrication sans ajout de liant externe (Fig. 5), les particules sont immergées dans l'eau du robinet à température ambiante dans un filet perméable, puis le filet est secoué vigoureusement 50 fois. Les particules imbibées d'eau sont ensuite transférées dans le moule à la main et homogénéisées. Quelle que soit la formulation, avec ou sans liant (SL), le tout est ensuite placé sous la presse pour une dizaine de minutes. En sortie de presse, les panneaux avec et sans liant sont immédiatement démoulés.



FIGURE 5. Procédé de fabrication d'un panneau à base de moelle de tournesol.

Le moule a pour dimension 20 cm x 20 cm. L'utilisation d'un piston permet d'obtenir une hauteur finale égale à 6 cm et ainsi la fabrication de panneaux de 2400 cm³ en sortie de moule. Les panneaux avec liant ayant un volume final de 2365 ± 22 cm³ présentent un retrait volumique assez faible d'environ 1,5%. En revanche, les panneaux sans liant de volume final 1937 ± 85 cm³ présentent un retrait volumique significatif d'environ 19,3%. Les masses volumiques des panneaux de moelle séchés à l'étuve à 60°C jusqu'à stabilisation de la masse (variation <0,1% entre deux pesées consécutives à 24h d'intervalle) et mesurés au pied à coulisse, sont présentées dans le Tab. 2.

TABLEAU 2. Formulation et masses volumiques des panneaux isolants à base de moelle de tournesol à sec [kg/m³], avec et sans liant (SL).

	Dosage massique liant/eau	Dosage massique liant/moelle	Moelle de référence	Moelle impure (MI)	Moelle très impure (MTI)	H50	L50
A-10-2 (avec liant)	7,5 %	10 %	44,6 ± 0,7	84,4 ± 0,5	114,6 ± 2,5	37,7 ± 0,6	50,5 ± 1,0
Sans Liant	0	0	45,2 ± 1,8	68,1 ± 1,7	91,7 ± 1,3	30,6 ± 0,1	46,7 ± 0,5

Les masses volumiques des panneaux MI et MTI sont plus élevées que celles avec moelle de référence, ce qui est en accord avec les masses volumiques apparentes des particules. Les masses volumiques des panneaux avec H50 sont plus faibles et celles avec L50 sont plus élevées, ce qui est également corrélé aux masses volumiques apparentes des particules (Tab. 1).

Il est intéressant de comparer la masse volumique des panneaux à celle d'isolants de référence : elle est similaire à celle du polystyrène (PS) (22,6 ± 0,6 kg/m³) et plus faible que celle de panneaux de fibres de bois (FdB) (194,4 ± 3,9 kg/m³). Les matériaux de référence proviennent du commerce et ont les références suivantes : Expanded Polystyrene de Knauf Therm Sol NC Th35 en 60 mm et Fibre de Bois Pavawall-GF en 60 mm.

V. INFLUENCE DES PROCÉDES DE TRANSFORMATION DE LA MOELLE

A. La conductivité thermique

La conductivité thermique des panneaux est représentée sur la Fig. 6. Les panneaux ont été testés quelques semaines après la fin de leur séchage.

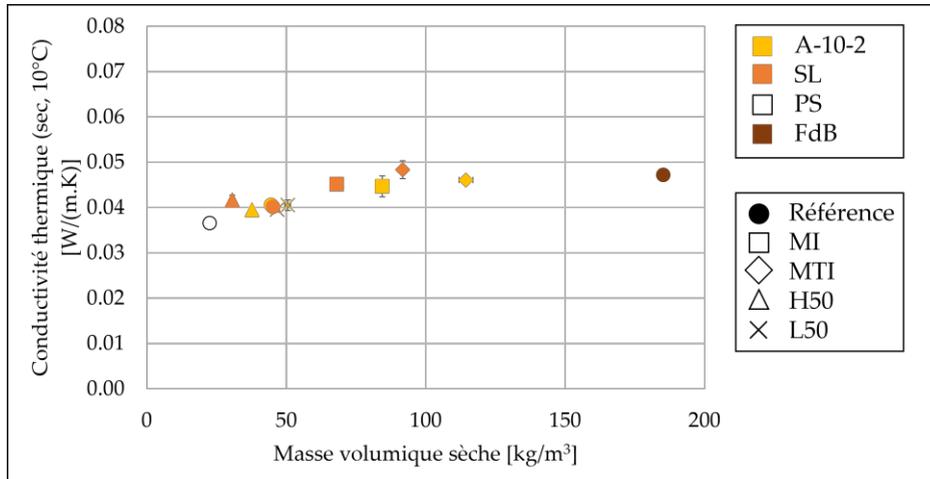


FIGURE 6. Conductivité thermique en fonction de la masse volumique des panneaux.

La conductivité thermique des panneaux sans écorce se situe autour de 39 à 42 $\text{mW}/(\text{m}\cdot\text{K})$ (Fig. 6). Les résultats indiquent qu’il n’y a pas ou peu d’effet de la présence de liant ni de la taille des particules sur la conductivité thermique des panneaux. Cependant, la présence d’écorce augmente la masse volumique ainsi que la conductivité thermique, qui atteint 44 à 49 $\text{mW}/(\text{m}\cdot\text{K})$ pour des masses volumiques de 68 à 115 kg/m^3 . Ces résultats montrent que les panneaux avec présence d’écorce présentent une conductivité thermique seulement 10% plus élevée que les panneaux avec la moelle de référence, et 30% plus élevée que la référence PS, mais plus faible ou équivalente à la fibre de bois ($47 \pm 1 \text{ mW}/(\text{m}\cdot\text{K})$), ce qui les place dans la même gamme que les isolants conventionnels.

B. Le comportement mécanique

Les essais sont réalisés quelques semaines après la fin du séchage puis de la stabilisation à l’ambiance des panneaux et après que les matériaux ont passé au minimum 6h à 23°C et 50%HR.

Les résultats des essais de flexion et de compression sont représentés respectivement sur les Fig. 7 et Fig. 9. La Fig. 8 présente la courbe contrainte-déformation des essais de compression afin de justifier les mesures à 3,5% de déformation.

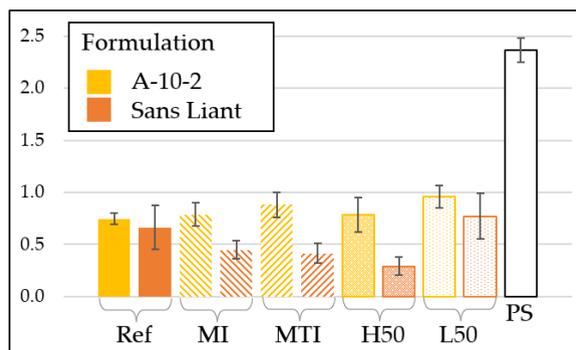


FIGURE 7. Module d’élasticité en flexion [MPa].

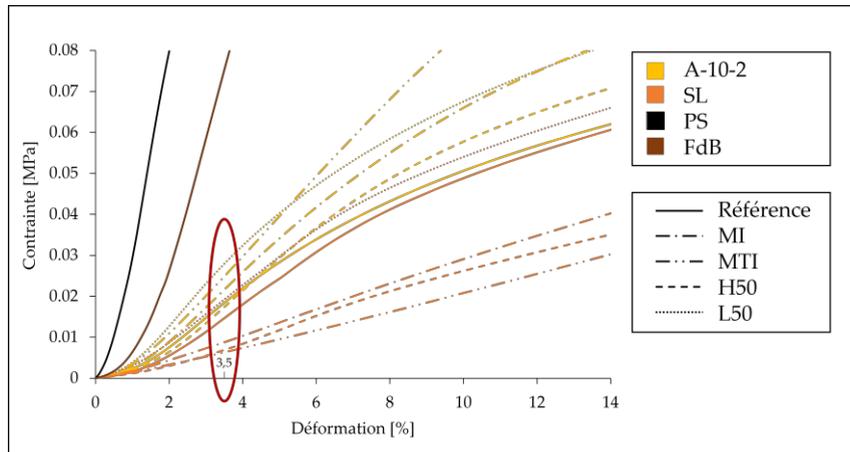


FIGURE 8. Courbes Contrainte-Déformation des essais en compression sur les différents matériaux.

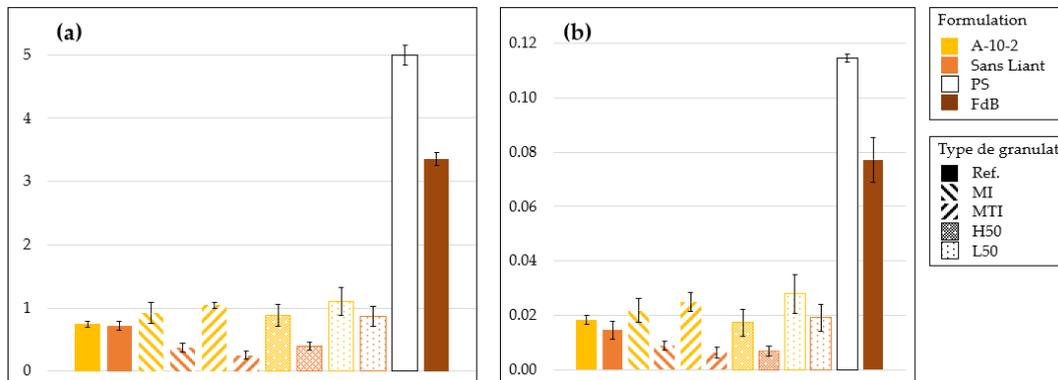


FIGURE 9. (a) Module d'élasticité en compression [MPa] et (b) Résistance à la compression à 3,5% de déformation relative $\sigma_{3,5}$ [MPa].

La Fig. 7 présente le module d'élasticité en flexion [MPa] des panneaux de moelle de tournesol avec différents taux de granulométrie et de pureté ainsi que du polystyrène. Les performances des panneaux avec liant sont peu impactées par l'ajout d'impuretés, voire ont des modules de flexion qui augmentent grâce à ces ajouts de particules allongées. La finesse des particules améliore également le module de flexion, ce qui peut s'expliquer par une plus grande surface spécifique, augmentant ainsi les surfaces de contact entre les particules et le liant. Les panneaux sans liant en revanche sont influencés de manière différente par la pureté et la granulométrie. L'ajout d'écorce diminue le module d'élasticité, de même qu'une taille de particule plus grande. On peut supposer que l'adhésion entre elles des particules d'un panneau sans liant est due à un composé déjà présent dans les particules de moelle qui est solubilisé par l'eau. En remplaçant une partie de la moelle par l'écorce, une plus faible quantité de ce composé pourrait être solubilisée et cela pourrait expliquer la diminution de module. Cette même raison pourrait expliquer la diminution pour H50 : les particules étant plus grosses, l'eau pourrait ne pas avoir le temps de pénétrer à cœur des particules. Les panneaux de fibre de bois, très denses, présentent un module supérieur, de $10,5 \pm 1,2$ MPa, ce qui le place largement au-dessus des isolants très légers.

La Fig. 8 présente la courbe de comportement mécanique contrainte-déformation des essais de compression. La valeur de 3,5% utilisée pour la résistance en compression est une moyenne et a été calculée en déterminant la pente maximale de chaque essai tout en restant dans la partie élastique de la courbe contrainte-déformation.

La Fig. 9 (a) présente le module d'élasticité en compression [MPa] des panneaux de moelle de tournesol ainsi que des panneaux de référence en polystyrène et fibres de bois et la Fig. 9 (b) présente la résistance à la compression à 3,5% de déformation relative $\sigma_{3,5}$ [MPa]. La tendance est la même que pour les résultats de l'essai de flexion. Pour les panneaux à base de moelle de tournesol avec ajout de liant externe, la présence d'écorce semble être bénéfique. Cela peut s'expliquer par la forme et la rigidité des particules d'écorce qui confèrent de meilleures propriétés mécaniques aux panneaux. Les performances en compression sont une nouvelle fois bien plus faibles que celles des isolants conventionnels (PS et FdB).

VI. CONCLUSION

La moelle de tournesol est une ressource locale, abondante, disponible, renouvelable et elle stocke du carbone lors de sa croissance. La réglementation environnementale RE2020 insiste sur l'isolation thermique des bâtiments et incite à l'utilisation d'isolants thermiques biosourcés afin de réduire l'impact environnemental du bâti. La fabrication de panneaux isolants thermiques 100% biosourcés à base de moelle de tournesol pourrait être une des solutions afin d'isoler le bâti tout en évitant l'utilisation de produits pétrosourcés. Les résultats de cette campagne d'essais montrent que les panneaux présentent de très bons résultats thermiques, de l'ordre de 40 mW/(m.K) avec la moelle de référence. Le processus de transformation de la tige de tournesol pourrait être optimisé afin de réduire les coûts financiers et environnementaux tout en n'augmentant que de peu la conductivité thermique (<50 mW/(m.K)), ce qui reste plus faible que la conductivité des panneaux de fibres de bois pour les panneaux avec la moelle impure (MI). Les propriétés mécaniques des panneaux à base de moelle de tournesol avec liant et avec ajout d'écorce sont mêmes supérieures aux propriétés mécaniques avec la moelle de référence. Les panneaux sans ajout de liant ont des propriétés mécaniques comparables avec la moelle de référence mais moindres lors d'ajout d'écorce et lors d'utilisation des grosses particules H50.

VII. PERSPECTIVES

La formulation, les procédés de transformation de la matière ainsi que la durabilité de ces panneaux isolants vont largement impacter leurs qualités environnementales. Une approche multicritère peut permettre d'optimiser ces trois critères. Le vieillissement des matériaux biosourcés, et particulièrement des isolants, est peu étudié dans la littérature et concerne une grande partie de ces travaux de thèse. Les mécanismes de vieillissement de matériaux isolants à base de moelle de tournesol formulés à partir de différents liants (externes ou issus de la moelle elle-même) et leurs conséquences sur les propriétés d'usage thermiques, mécaniques et hydriques sont également étudiés. Des panneaux 100% biosourcés à base de moelle de tournesol sont soumis à un vieillissement accéléré (cycles de 24h à 10°C, 85% HR puis 24h à 30°C, 40% HR), un vieillissement climatique en extérieur et un vieillissement de référence en intérieur.

Une caractérisation thermo-hygro-mécanique des panneaux est réalisée dans les différentes conditions après 1 an de vieillissement climatique extérieur et de référence en intérieur, ainsi qu'après 30, 45 et 130 cycles de vieillissement accéléré. D'autres essais seront réalisés sur des panneaux ayant subi 1 an et demi de vieillissement en extérieur et en intérieur. En fonction des résultats, d'autres cycles de vieillissement accéléré, peut-être plus agressifs, pourront être réalisés.

REMERCIEMENTS

L'autrice remercie Ovalie Innovation, la Région Occitanie, l'IUT de Tarbes, la Communauté d'Agglomération Tarbes-Lourdes-Pyrénées, l'ADEME et le projet LOCABATI pour leur soutien financier.

REFERENCES

- Agreste Ministère de l'Agriculture, 2023a. Grandes cultures.
- Agreste Ministère de l'Agriculture, 2023b. Statistique agricole annuelle 2022.
- Amziane, S., Collet, F., Lawrence, M., Magniont, C., Picandet, V., Sonebi, M., 2017. Recommendation of the RILEM TC 236-BBM: characterisation testing of hemp shiv to determine the initial water content, water absorption, dry density, particle size distribution and thermal conductivity. *Mater Struct* 50, 167. <https://doi.org/10.1617/s11527-017-1029-3>
- Avellaneda, A., Evon, P., Haurie, L., Laborel-Préneron, A., Lagouin, M., Magniont, C., Navarro, A., Palumbo, M., Torres, A., 2023. Evaluation of the Potential of Plant Aggregates from Corn and Sunflower Stalks for the Design of Building Materials, in: Amziane, S., Merta, I., Page, J. (Eds.), *Bio-Based Building Materials*, RILEM Bookseries. Springer Nature Switzerland, Cham, pp. 70–86. https://doi.org/10.1007/978-3-031-33465-8_7
- Bacoup, F., Mahieu, A., Vitaud, A., Drone, P., Gattin, R., Leblanc, N., 2019. Various methods of binding light agricultural byproducts 37, 5.
- Chabannes, M., Nozahic, V., Amziane, S., 2015. Design and multi-physical properties of a new insulating concrete using sunflower stem aggregates and eco-friendly binders. *Mater Struct* 48, 1815–1829. <https://doi.org/10.1617/s11527-014-0276-9>
- Korjenic, A., Zach, J., Hroudová, J., 2016. The use of insulating materials based on natural fibers in combination with plant facades in building constructions. *Energy and Buildings* 116, 45–58. <https://doi.org/10.1016/j.enbuild.2015.12.037>
- Laborel-Préneron, A., Ampe, C., Labonne, L., Magniont, C., Evon, P., 2021. Thermal Insulation Blocks Made of Sunflower Pith Particles and Polysaccharide-Based Binders: Influence of Binder Type and Content on Their Characteristics. Presented at the 4th International Conference on Bio-Based Building Materials, Barcelona, Spain, pp. 43–50. <https://doi.org/10.4028/www.scientific.net/CTA.1.43>
- Lenormand, H., Glé, P., Leblanc, N., 2017. Investigation of the Acoustical and Thermal Properties of Sunflower Particleboards. *Acta Acustica united with Acustica* 103, 149–157. <https://doi.org/10.3813/AAA.919040>
- Marten, B., Hicks, A., 2018. Expanded Polystyrene Life Cycle Analysis Literature Review: An Analysis for Different Disposal Scenarios. *Sustainability: The Journal of Record* 11, 29–35. <https://doi.org/10.1089/sus.2017.0015>
- Mati-Baouche, N., de Baynast, H., Sun, S., Lebert, A., Petit, E., Michaud, P., 2015. Polysaccharidic binders for the conception of an insulating agro-composite. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing* 78, 152–159. <https://doi.org/10.1016/j.compositesa.2015.08.006>
- Ministère de la Transition écologique, 2022. Réglementation environnementale RE2020 [WWW Document]. URL <https://www.ecologie.gouv.fr/reglementation-environnementale-re2020>
- Ministère de la Transition écologique, Cerema, 2022. Guide RE2020.
- Novi, V., Labonne, L., Ballas, S., Véronèse, T., Evon, Ph., 2024. Insulation blocks made from sunflower pith with improved durability properties. *Industrial Crops and Products* 210, 118161. <https://doi.org/10.1016/j.indcrop.2024.118161>
- Ratsimbazafy, H., 2021. Evaluation du potentiel de co-produits agricoles locaux valorisables dans le domaine des matériaux de construction (Palomac). Université de Toulouse 3.
- Zhang, L., Ren, W., Liu, F., Xia, L., Wu, X., Yang, R., Yu, Y., Zhang, X., 2022. A Comparative Investigation on Structural and Chemical Differences between the Pith and Rind of Sunflower Stalk and Their Influences on Nanofibrillation Efficiency. *Polymers* 14, 930. <https://doi.org/10.3390/polym14050930>