



**HAL**  
open science

## **Influence de la température sur deux étapes limitantes de la carbonatation : diffusion gazeuse et réactions en solution**

Corvec Gaël, Philippe Turcry, Abdelkarim Aït-Mokhtar, Riccardo Artoni, Patrick Richard

### ► To cite this version:

Corvec Gaël, Philippe Turcry, Abdelkarim Aït-Mokhtar, Riccardo Artoni, Patrick Richard. Influence de la température sur deux étapes limitantes de la carbonatation : diffusion gazeuse et réactions en solution. Congrès Français du Génie Civil "CFGC 2023", May 2023, Saclay, France. pp.437-446, <10.26168/ajce.41.1.43>. <hal-05151529>

**HAL Id: hal-05151529**

**<https://hal.science/hal-05151529v1>**

Submitted on 9 Jul 2025

**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.



HAL Authorization

# Influence de la température sur deux étapes limitantes de la carbonatation : diffusion gazeuse et réactions en solution

CORVEC Gaël<sup>1</sup>, TURCRY Philippe<sup>1</sup>, AÏT-MOKHTAR Abdelkarim<sup>1</sup>, ARTONI Riccardo<sup>2</sup>, RICHARD Patrick<sup>2</sup>

<sup>1</sup>LaSIE, UMR CNRS 7356, La Rochelle Université, 17000 La Rochelle, France

<sup>2</sup>Univ Gustave Eiffel, MAST-GPEM, F-44344 Bouguenais, France

**RESUME** Piéger le CO<sub>2</sub> rejeté par les cimenteries dans les granulats de béton recyclé (GBR) améliorera l'impact carbone des matériaux cimentaires. Les gaz rejetés par les cimenteries ont une température élevée (60 à 160°C environ). Afin de comprendre quelle pourrait être l'influence de l'utilisation d'un gaz à haute température sur la carbonatation, l'impact de celle-ci sur deux étapes a été mesuré. Premièrement, le coefficient effectif de diffusion du CO<sub>2</sub> pour deux mortiers secs augmente de 11% entre 25 et 60°C. De plus, entre 25 et 50°C, la carbonatation de mortier en solution a été accélérée. L'équilibre entre solution et matériau a été atteint en 5h à 50°C au lieu de 8h à 25°C. La seule différence entre les produits de la carbonatation observée est une précipitation un peu plus faible de CaCO<sub>3</sub> à 50°C.

**Mots-clefs** Carbonatation, Granulats de béton recyclé (GBR), Captage, Stockage et Valorisation du CO<sub>2</sub> (CSV).

## I. INTRODUCTION

L'une des stratégies pour réduire l'impact carbone des matériaux cimentaires repose sur le piégeage du dioxyde de carbone (CO<sub>2</sub>) par carbonatation des granulats de béton recyclé (GBR). En effet, les matériaux cimentaires ont la capacité de piéger du CO<sub>2</sub> par carbonatation des hydrates du ciment. Les GBR sont produits par concassage de structures en béton en fin de vie et sont autorisés à l'utilisation en substitution de granulats naturels dans la formulation d'un béton selon la norme NF EN 206/CN. Seule une fraction réduite des granulats naturels peut être substituée car les GBR ont souvent une porosité et une capacité d'absorption d'eau plus élevée (de Brito and Saikia, 2013). La carbonatation forme du carbonate de calcium (CaCO<sub>3</sub>) dans les pores des granulats et permet de réduire ces inconvénients (Sereng et al., 2021). Ainsi, outre la minéralisation du CO<sub>2</sub>, la carbonatation permettrait aussi d'améliorer la recyclabilité des GBR.

Si la carbonatation est lente en conditions atmosphériques, les fumées rejetées par les usines émettrices de CO<sub>2</sub> fournissent un environnement favorable pour accélérer le phénomène, d'après les résultats du Projet National FastCarb (Torrenti et al., 2022). Le Projet National a testé la séquestration du CO<sub>2</sub> des fumées de cimenteries par les GBR dans des démonstrateurs à grande échelle. La température à l'intérieur de ceux-ci atteint 60°C (Izoret et al., 2023). D'après (Hassan, 2005), la température des gaz rejetés par les cimenteries peut même dépasser 160°C.

La température pourrait être un paramètre pour augmenter la vitesse de carbonatation. Cependant, les études sur le processus de carbonatation montrent une influence contrastée de la température. Le piégeage du CO<sub>2</sub> par des GBR a présenté une augmentation de 34% entre 20 et 40°C pour une même teneur en eau initiale (Sereng et al., 2021). (Liu et al., 2001) ont étudié la carbonatation entre 20 et 100°C de déchets de poussières de béton cellulaire autoclavé et observent un maximum de séquestration du CO<sub>2</sub> à 60°C (jusqu'à 7 fois sa valeur à 20°C). (Drouet, 2010) a montré qu'entre 20 et 80°C, suivant le type de ciment, la température n'a pas le même effet sur la carbonatation de pâtes de ciment à l'équilibre hydrique avec l'ambiance. Pour une humidité relative (HR) donnée, la profondeur carbonatée est 3,4 fois plus importante à 80°C qu'à 20°C pour une pâte fabriquée avec un ciment CEM I et l'on observe un maximum à 50°C pour une pâte avec du CEM V/A. Sur une plage de température de 20 à 300°C, (Wang, 2021) observe une augmentation de 8,5 fois de la quantité de CO<sub>2</sub> fixée entre 20°C et 100°C dans le cas de pâtes initialement saturées en eau puis placées dans un gaz sec. Au-delà de 100°C, l'auteur montre une diminution du piégeage du CO<sub>2</sub>.

L'impact contrasté de la température est probablement observé à cause de ses effets contraires sur les différents processus de carbonatation. D'un côté, elle est bénéfique pour les performances du matériau par la baisse de la solubilité de la calcite, produit des réactions en solution entre le CO<sub>2</sub> dissous et les ions calcium issus de la dissolution des hydrates (Coto et al., 2012). La température accélère aussi les phénomènes de transport des réactifs comme la diffusion gazeuse (Jooss and Reinhardt, 2002) et la diffusion ionique dans la solution interstitielle (Omrani et al., 2022; Peycelon et al., 2006). De l'autre côté, une augmentation de la température défavorise les réactions en solution, car cela réduit la quantité d'eau dans les pores pour une HR donnée (Drouet, 2010). Par ailleurs, les principaux réactifs de la carbonatation, portlandite, silicates de calcium hydratés (C-S-H) et CO<sub>2</sub>, sont moins solubles à température élevée (De Hemptinne and Behar, 2000; Glasser et al., 2005). Notons aussi que l'influence de la température sur la carbonatation est souvent abordée dans la littérature par le biais de profondeurs de carbonatation dans des échantillons mises en évidence par une baisse du pH et non par la fixation du CO<sub>2</sub> à proprement parler.

Le but de cette étude est ainsi d'examiner l'effet de la température entre 25 et 60°C sur les deux étapes limitantes de la carbonatation : la diffusion du CO<sub>2</sub> à l'état gazeux dans le matériau et les réactions de carbonatation des hydrates dans sa solution interstitielle. Pour cela, des études expérimentales ont été réalisées en conditions isothermes pour déterminer d'une part, le coefficient de diffusion gazeuse de mortiers secs et, d'autre part, les vitesses de réactions de poudres de mortier immergées en solution. Notre objectif est de mieux comprendre l'influence de la température sur les mécanismes de la carbonatation.

## II. MATERIAUX ET METHODES

### A. Matériaux

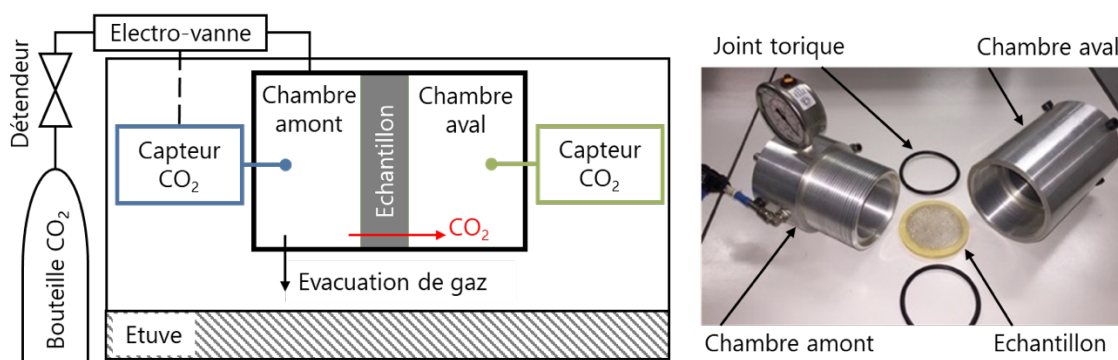
Deux mortiers sont étudiés lors de la mesure de l'effet de la température sur le coefficient de diffusion des matériaux cimentaires. Produit lors de l'étude de (Gendron, 2019), le premier mortier appelé M1 est composé de 612 kg/m<sup>3</sup> de ciment Portland CEM I 52,5 N et 1300 kg/m<sup>3</sup> de sable siliceux (0/2 mm). Le rapport massique eau sur ciment (E/C) est de 0,5 et la proportion volumique

de pâte est de 50%. Les échantillons sont sous forme de disques de 68 mm de diamètre et de 10 mm d'épaisseur. Après une cure endogène de 3 mois, les disques ont été soumis à 5 ans de carbonatation naturelle. Le second mortier (M2) a été fabriqué par l'EMPA dans le cadre du TC Rilem GDP (Georget et al., 2022). Il est composé de ciment CEM I 52,5 R (150 kg/m<sup>3</sup>), de filler calcaire (300 kg/m<sup>3</sup>) et d'un sable normalisé (1321 kg/m<sup>3</sup>). Son rapport eau sur liant est de 0,65. Il a été totalement carbonaté pendant 4 mois à 4% en CO<sub>2</sub>. Il a été sélectionné pour son coefficient de diffusion élevé. Avant essai de diffusion, les mortiers sont préalablement séchés à 60°C jusqu'à masse constante.

Un mortier (M) et une solution interstitielle artificielle (SI) ont été fabriqués pour l'étude de la carbonatation en solution. Le mortier a été élaboré au CERIB et possède la même composition que le mortier M1. Le mortier a été réduit en poudre de diamètre inférieure à 5 µm avec broyeur planétaire à billes. La poudre a ensuite été séchée à 60°C pendant une semaine et conservée à cette température. La SI est produite afin de reproduire la solution interstitielle d'une pâte de ciment CEM I mesurée par extraction (Cherif et al., 2017). Elle est obtenue par ajout de poudre de NaOH (51 mmol/L), KOH (117 mmol/L) et CaSO<sub>4</sub>(H<sub>2</sub>O) (1,8 mmol/L) dans de l'eau ultra-pure. La SI est agitée isolée de l'atmosphère pendant 12 h afin d'accélérer la solubilisation des poudres. Le pH de la solution est de 13,05 à 25°C.

#### B. Détermination du coefficient de diffusion gazeuse

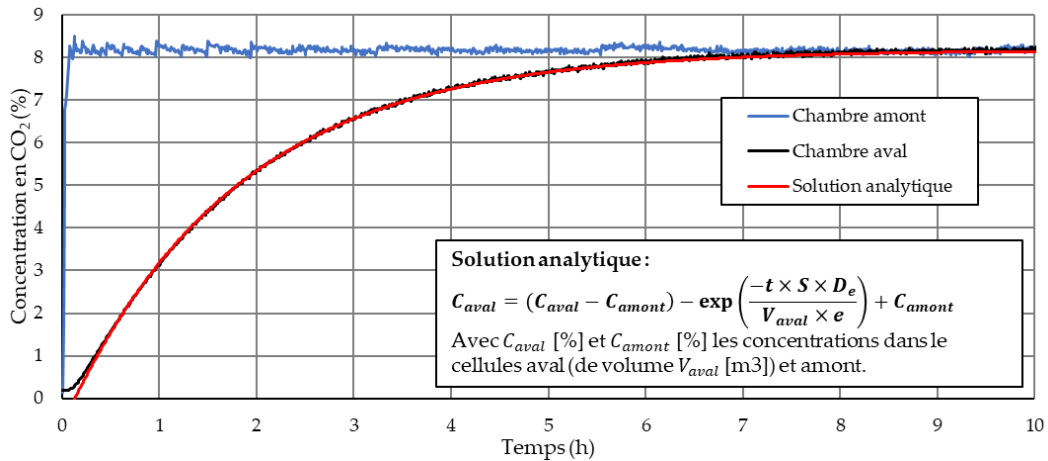
La détermination du coefficient de diffusion s'effectue à l'aide d'une cellule à double chambre. La concentration en CO<sub>2</sub> dans la chambre amont est imposée à 8% à l'aide d'une bouteille de CO<sub>2</sub>, un détendeur et une électrovanne reliée à un capteur de CO<sub>2</sub> par infra-rouge. L'augmentation de la concentration du CO<sub>2</sub> dans la chambre en aval séparée de la chambre en amont par l'échantillon est mesurée en continue grâce à un capteur (Figure 1). La cellule et l'échantillon sont placés 2 h avant et pendant l'essai dans une étuve pour imposer la température de l'essai.



**FIGURE 1.** Schéma du dispositif de mesure du coefficient de diffusion du CO<sub>2</sub> (à gauche) et photo de la cellule à double chambre ouverte (à droite)

Pour chaque matériau, deux essais ont été effectués à 25±1°C et 50±1°C.

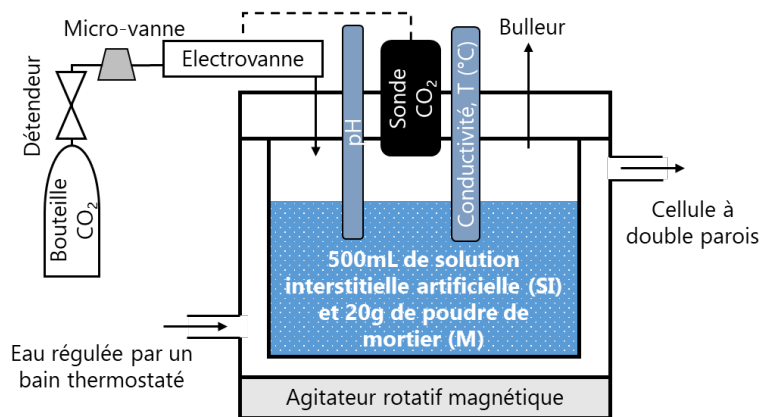
Afin de déterminer le coefficient de diffusion effectif ( $D_e$  [m<sup>2</sup>/s]), l'évolution de la concentration en CO<sub>2</sub> à l'aval est modélisée en supposant que le gaz diffuse selon la seconde loi de Fick en une direction à travers l'échantillon de surface  $S$  [m<sup>2</sup>] et d'épaisseur  $e$  [m]. La minimisation de l'erreur entre le modèle analytique et les mesures continues permettent de déterminer le coefficient de diffusion effectif du matériau (Figure 2).



**FIGURE 2.** Evolutions de la concentration en CO<sub>2</sub> dans les chambres amont et aval : mesurées (bleu et noir) et modélisée (rouge) pour le mortier M1 à 25°C.

*B. Essai de carbonatation en solution*

La carbonatation en solution est réalisée dans une cellule en verre à double parois avec agitation par agitateur rotatif magnétique (Figure 3). La SI (500 mL) est d’abord amenée à la température souhaitée à l’aide de l’eau régulée par un bain thermostaté qui traverse la double paroi. La poudre de mortier (20g) est ensuite ajoutée dans la solution et le mélange est agité pendant 15 minutes afin d’atteindre un équilibre entre les 2 phases. Le pH, la conductivité et la température sont mesurées à l’aide de deux sondes plongées dans le mélange. Une sonde infra-rouge de mesure de la concentration du CO<sub>2</sub> est placée dans la phase gazeuse au-dessus de la solution et est reliée à un contrôleur de l’électrovanne qui régule la concentration en CO<sub>2</sub> pour un maintien dans l’intervalle 14% - 18%. Les phase d’injection et de consommation de CO<sub>2</sub> par la SI et le mortier se succèdent ensuite jusqu’à ce qu’il n’y ait plus de consommation mesurable. Les essais sont réalisés à 25 et 50°C. Pour chaque température, un essai est réalisé sur la SI seule et 3 essais sur la SI et le M.



**FIGURE 3.** Schéma du dispositif de la carbonatation en solution

A chaque phase  $i$  se succédant, la différence de concentration  $\Delta C_i$  [%] et l’intervalle de temps  $\Delta t_i$  [h] ont été mesurés (Figure 4).

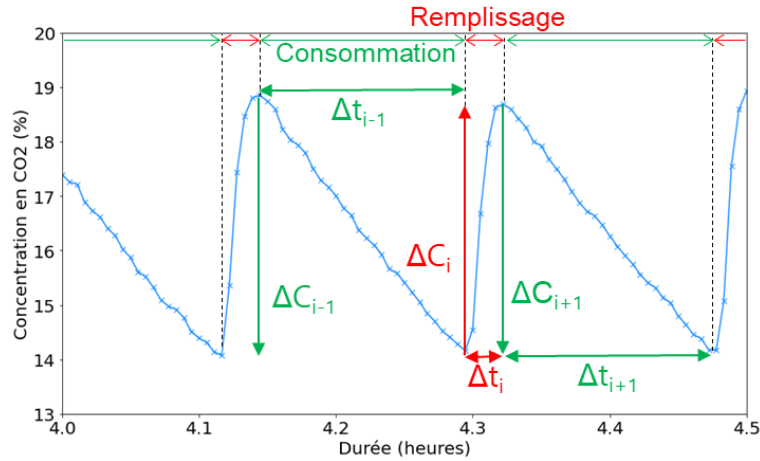


FIGURE 4. Mesures du CO<sub>2</sub> pendant la carbonatation en solution : remplissage en CO<sub>2</sub> de l'ambiance gazeuse au-dessus de la solution (rouge) et sa consommation par la solution (vert).

Connaissant le volume du gaz dans la cellule  $V_{\text{gaz}}$  [m<sup>3</sup>], la température  $T$  [K] et la pression  $P$  [Pa] du gaz égal à la pression atmosphérique, on peut calculer la vitesse de consommation du CO<sub>2</sub> pendant les phases de consommation ( $v_i$  [g/h]) :

$$v_i = \frac{\Delta C_i}{100 \times \Delta t_i} \times \frac{P \times V_{\text{gaz}} \times M_{\text{CO}_2}}{RT} \quad (1)$$

Le cumul du CO<sub>2</sub> consommé par le mélange ( $G_{\text{CO}_2}$  [g]) est donné par la relation (2) :

$$G_{\text{CO}_2} = \sum_i g_{\text{CO}_2}(i) \quad (2)$$

Avec :  $g_{\text{CO}_2}(i) = v_i \times \Delta t_i$  la quantité de CO<sub>2</sub> fixée pendant une phase de consommation et  $g_{\text{CO}_2}(i) = \frac{v_{i-1} + v_{i+1}}{2} \times \Delta t_i$  la quantité fixée pendant une phase de remplissage.

Après les essais, la SI est filtrée sous vide avec un entonnoir Büchner pour récupérer la phase solide. La phase solide est ensuite séchée à 60°C pendant une semaine minimum et analysée par diffraction aux rayons X (DRX) et analyse thermogravimétrique (ATG).

### III. RESULTATS

#### A. Influence de la température sur le coefficient de diffusion effectif d'un mortier.

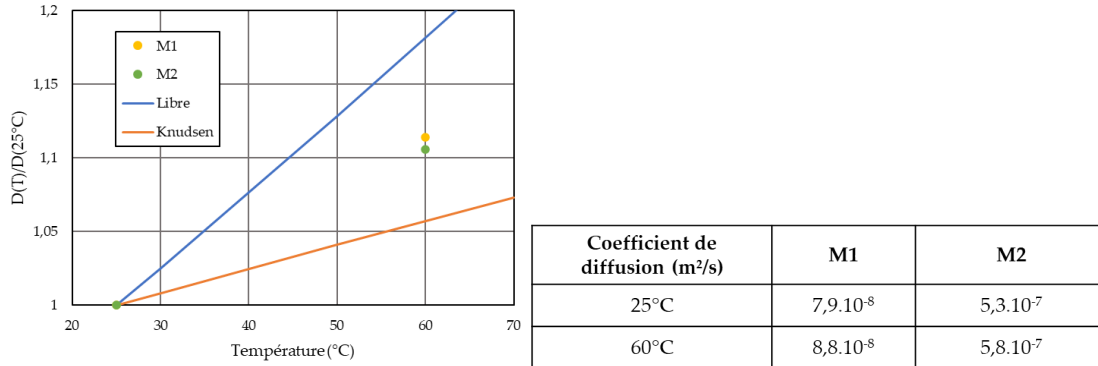
Le coefficient de diffusion des deux mortiers secs augmente d'environ 11% entre 25 et 60°C (Figure 5). L'influence de la température sur la diffusion gazeuse est donc assez faible sur cette plage de température. Elle ne permet pas d'expliquer l'impact de la température sur la carbonatation décrit dans la littérature, dont nous avons quelques exemples en introduction.

Dans un milieu poreux, plusieurs régimes de diffusion peuvent exister. Quand la taille des pores est bien plus grande que le libre parcours moyen de la molécule de CO<sub>2</sub>, le coefficient de diffusion suit le régime libre ( $D_L$ ) et varie avec la température ( $T$  [K]) comme  $T^{3/2}$ . L'augmentation relative de  $D_L$  entre 25 à 60°C est alors de 18%. A l'inverse, quand les pores sont beaucoup plus petits que le libre parcours moyen du CO<sub>2</sub>, le coefficient de diffusion suit le régime de Knudsen ( $D_K$ ) et est proportionnel à  $T^{1/2}$ . Entre 25 et 60°C, cela représente une augmentation de 6%. Entre les

2, le coefficient de diffusion suit le régime mixte pour lequel le coefficient de diffusion ( $D_m$ ) peut s'écrire comme suit :

$$\frac{1}{D_m} = \frac{1}{D_L} + \frac{1}{D_K} \tag{3}$$

Le coefficient de diffusion effectif des mortiers étudiés a une variation avec la température entre le régime libre et celui de Knudsen comme le montre la figure 5.



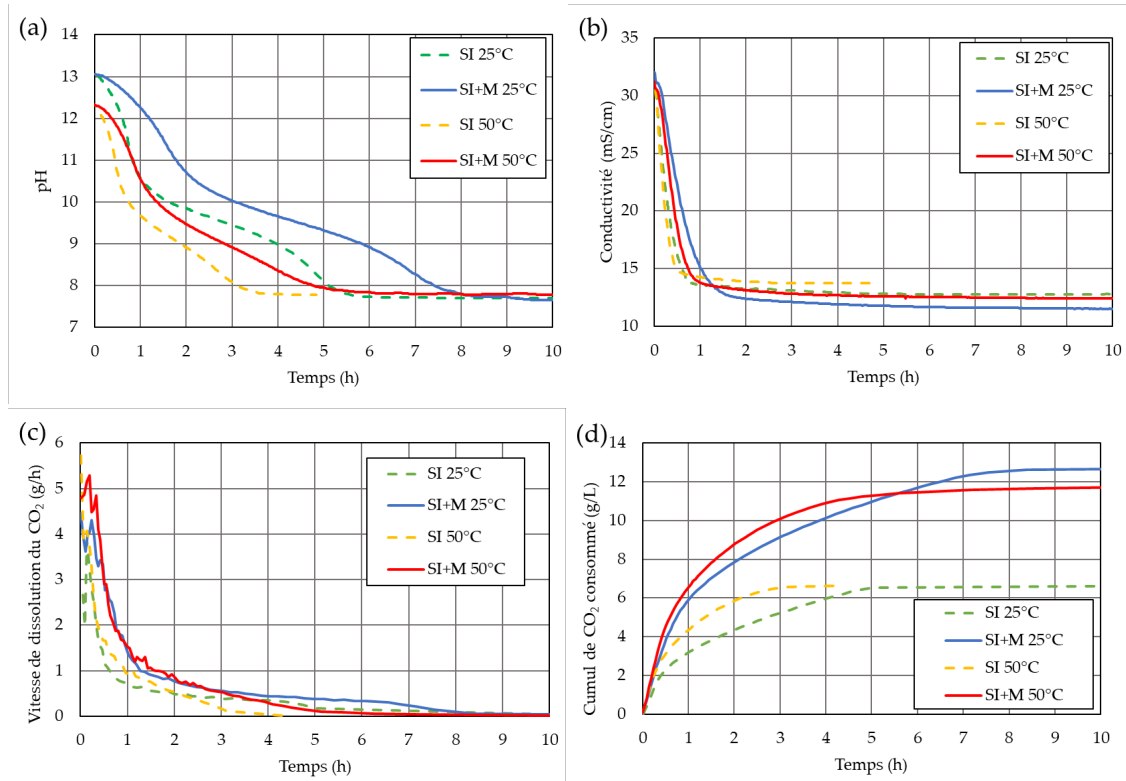
**FIGURE 5.** Comparaison de l'effet de la température sur le coefficient de diffusion effectif des deux matériaux et des régimes de diffusion théoriques (gauche) et tableau des coefficients de diffusion effectifs mesurés (droite).

*B. Réaction en solution*

Le pH, la conductivité, la vitesse et le cumul de CO<sub>2</sub> consommé pendant la carbonatation en solution sont présentés sur la Figure 6. La dissolution du CO<sub>2</sub> dans la SI baisse le pH qui tend vers 7,7±0,2 quelles que soient les conditions. Au vu de la bonne répétabilité des mesures, une seule évolution par condition est tracée pour alléger les graphes. Le pH ne suit pas une baisse constante car les ions carbonates du CO<sub>2</sub>, HCO<sub>3</sub><sup>-</sup> et CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>, ont un pouvoir tampon à pH 10,5. La conductivité baisse très rapidement pendant la première heure puis évolue peu dans la suite de l'essai. Cela s'explique par la baisse de concentration en OH<sup>-</sup> (de conductivité ionique 198 mS.cm<sup>-1</sup>.L.mol<sup>-1</sup>) pendant l'acidification. Par exemple, sur SI à 25°C, la concentration initiale de 0,1 mol/L descend à 3.10<sup>-4</sup> mol/L au bout d'une heure. Par la suite, K<sup>+</sup> (117 mmol/L et conductivité ionique 73,5 mS.cm<sup>-1</sup>.L.mol<sup>-1</sup>) devient l'ion majoritaire de la solution et « cache » les modifications de conductivité liées à des espèces de concentrations plus faibles. La vitesse de consommation de CO<sub>2</sub> baisse aussi fortement la première heure pour décroître doucement ensuite et s'annuler enfin une fois l'équilibre atteint.

Le mortier relâche des ions Ca<sup>2+</sup>, provenant de la portlandite et des C-S-H dans la SI, qui réagissent avec les ions CO<sub>3</sub><sup>2-</sup> pour précipiter sous forme de CaCO<sub>3</sub>. Cela augmente la quantité totale de CO<sub>2</sub> à dissoudre jusqu'à l'équilibre thermodynamique. On observe ainsi que l'ajout de mortier dans la SI augmente la quantité de CO<sub>2</sub> consommé qui passe de 6,6 à 12,8 g/L à 25°C et de 6,6 à 12 g/L à 50°C. De plus, l'ajout de la poudre retarde le temps nécessaire pour atteindre l'équilibre, passant de 5 à 8 h à 25°C et de 3 à 5 h à 50°C. En faisant l'hypothèse qu'autant de CO<sub>2</sub> est soluble dans la SI en présence ou non du mortier, on peut estimer que le mortier a piégé 168±2 g de CO<sub>2</sub> par kg à 25°C et 142±5 g/kg à 50°C. La précision de la mesure est donné avec l'écart-type des 3

mesures de répétabilité. La masse de référence du mortier déterminée par ATG est prise à 950°C car à cette température, l'eau liée des hydrates et le CO<sub>2</sub> du CaCO<sub>3</sub> ne sont plus comptabilisés.



**FIGURE 6.** Evolution du pH (a) et de la conductivité (b) de la solution pendant la carbonatation. Vitesse de consommation du CO<sub>2</sub> (c) et cumul de CO<sub>2</sub> consommé (d).

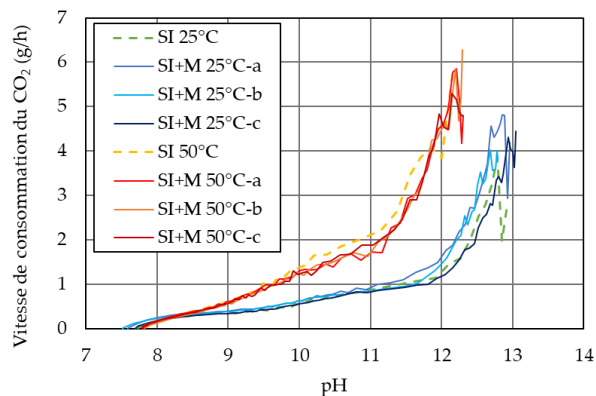
En augmentant la température de 25 à 50°C, on observe figure 6a que le pH à l'équilibre est atteint plus tôt. La réduction est de 5 à 3 h pour la SI seule et de 8 à 5h avec le mortier. De plus, sur la figure 6c, on observe aussi une augmentation de la vitesse de consommation en CO<sub>2</sub> initiale de la SI+M, qui passe de 4±0,4 g/h à 25°C à 5±0,4 g/h à 50°C.

La figure 7 donne la vitesse de carbonatation en fonction du pH. Pour une température donnée, les courbes SI et SI+M, tendent à se superposer. La vitesse de passage du CO<sub>2</sub> gazeux dans l'eau serait alors la réaction limitante de la consommation du CO<sub>2</sub> pour les conditions étudiées. De plus, les courbes semblent dépendre principalement du pH et de la température. Le fait que la vitesse du passage du CO<sub>2</sub> en solution dépende du pH est cohérent avec les trois mécanismes d'hydratation :

1.  $CO_2 + H_2O \rightarrow H_2CO_3 \quad v_1 = k_1 a_{CO_2}$
2.  $CO_2 + H_2O \rightarrow HCO_3^- + H^+ \quad v_2 = k_2 a_{CO_2}$
3.  $CO_2 + OH^- \rightarrow HCO_3^- \quad v_3 = k_3 a_{CO_2} [OH^-]$

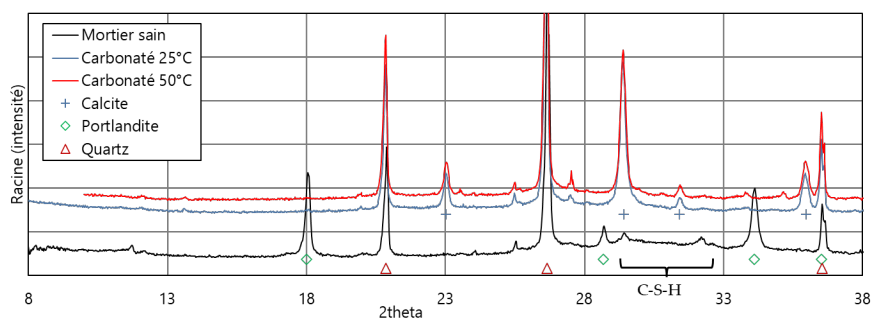
Avec :  $v_1$ ,  $v_2$  et  $v_3$  [mol/L/s] les vitesses de dissolution du CO<sub>2</sub> par les réactions 1, 2 et 3 et les constantes de réaction  $k_1$  [s<sup>-1</sup>],  $k_2$  [s<sup>-1</sup>] et  $k_3$  [L.mol<sup>-1</sup>.s<sup>-1</sup>], respectivement.

Or, la cinétique de la troisième relation est dépendante de la concentration en OH<sup>-</sup>. A fort pH, la vitesse d'absorption du CO<sub>2</sub> par la solution doit donc être plus importante.



**FIGURE 7.** Vitesses de consommation du CO<sub>2</sub> en fonction du pH. Trois essais de reproductibilité sont représentés.

On observe sur les diffractogrammes des poudres analysées par DRX (Figure 8), la disparition des pics de la portlandite et de l'amas de pics des C-S-H après carbonatation et l'apparition des pics caractéristiques de la calcite. C-S-H et portlandite sont donc totalement consommés pendant la carbonatation en solution quelle que soit la température.

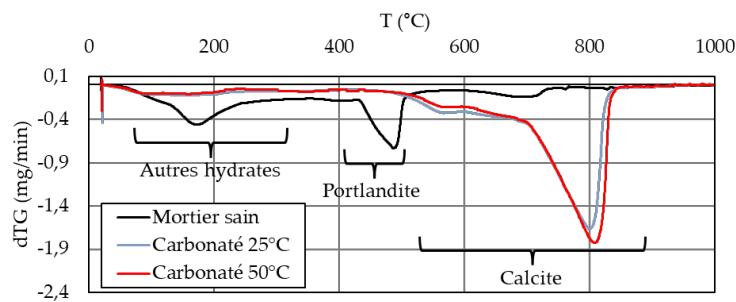


**FIGURE 8.** Diffractogramme des mortiers analysés par DRX avant et après carbonatation à 25 et 50°C.

(Tai and Chen, 1998) montrent que le CaCO<sub>3</sub> se précipite presque exclusivement sous la forme cristalline de la calcite au-delà d'un pH de 12 à 24°C et au-dessus de 11 à 58°C. A plus bas pH, la vaterite et l'aragonite sont les phases cristallines majoritaires précipitées. Nous n'avons pas observé de pics significatifs de la vaterite et de l'aragonite pour nos mortiers carbonatés. Cela signifie que la précipitation de la calcite s'est effectuée à pH élevé au début de l'expérience, i.e. les 75 premières minutes à 25°C et les 50 premières minutes à 50°C. La consommation du CO<sub>2</sub> serait ensuite uniquement due à l'acidification de la SI. Seule la minéralisation du CO<sub>2</sub> en CaCO<sub>3</sub> est intéressante pour le stockage du CO<sub>2</sub> car la consommation de CO<sub>2</sub> par la SI n'empêche pas celui-ci de s'en échapper par la suite.

Sur la figure 9 présentant les résultats d'ATG, on observe que la perte de masse associée à la déshydroxylation de la portlandite n'a plus lieu après carbonatation, indiquant sa consommation totale. La perte de masse liée à la déshydroxylation des hydrates est fortement réduite indiquant leur carbonatation. Les pertes de masse associées à la décarbonatation du CaCO<sub>3</sub> permettent de déterminer la quantité de CO<sub>2</sub> piégée (en soustrayant la quantité de CaCO<sub>3</sub> déjà présent dans le

mortier sain). A 25°C,  $157 \pm 3$  g<sub>CO2</sub>/kg de mortier est piégé contre  $143 \pm 2$  g<sub>CO2</sub>/kg de mortier à 50°C. La masse de référence du mortier est celle déterminée à 950°C afin de comparer ces résultats avec ceux obtenus sur la poudre prélevée dans la solution en fin d'essai et les quantités de CO<sub>2</sub> obtenues avec les sondes CO<sub>2</sub>. Les deux méthodes de mesure de la masse de CO<sub>2</sub> piégée donnent un écart inférieur à 7% et montrent qu'une plus faible quantité de CaCO<sub>3</sub> est précipitée en augmentant la température de 25°C à 50°C. Connaissant la teneur en CaO du ciment et la composition du mortier, on estime qu'au maximum, 162 g<sub>CO2</sub>/kg peuvent être fixés par le mortier. Le degré de carbonatation obtenu (défini par la quantité de CO<sub>2</sub> piégée divisée par la quantité maximale) est ainsi supérieur à  $97 \pm 2$  % à 25°C et égal à  $88 \pm 3$  % à 50°C selon la carbonatation en solution. Ce fort degré de carbonatation par traitement en solution a aussi été observé par (Zajac et al., 2023).



**FIGURE 9.** Variation relative de masse (DTG) avant et après carbonatation à 25 et 50°C.

#### IV. CONCLUSION

Dans cette étude, l'impact de la température sur deux mécanismes de la carbonatation des matériaux cimentaires a été mesuré. Premièrement, le coefficient de diffusion effectif du CO<sub>2</sub> pour les deux mortiers secs augmente de 11% entre 25 et 60°C. Il varie entre le régime libre et de Knudsen. De plus, entre 25 et 50°C la carbonatation d'un mortier sous forme de poudre en solution a été accélérée. L'équilibre a été atteint au bout de 5h à 50°C au lieu de 8h à 25°C. Concernant les produits de carbonatation, la seule différence observée est une précipitation un peu plus faible de CaCO<sub>3</sub> à 50°C. La carbonatation a été étudiée ici sur un matériau sec d'une part et fortement dilué dans une solution interstitielle artificielle de l'autre. Pour comprendre davantage l'effet de la température sur la carbonatation, il faudrait l'étudier sur des matériaux partiellement saturés en eau.

#### V. Remerciements

Les auteurs remercient l'ANR pour le financement du projet CO<sub>2</sub>NCRETE, ainsi que l'EMPA et le CERIB pour la fabrication des mortiers utilisés pour cette étude.

#### REFERENCES

- Cherif, R., Hamami, A.A., Aït-Mokhtar, A., Meusnier, J.-F., 2017. Study of the pore solution and the microstructure of mineral additions blended cement pastes. *Energy Procedia* 139, 584–589. <https://doi.org/10.1016/j.egypro.2017.11.257>

- Coto, B., Martos, C., Peña, J.L., Rodríguez, R., Pastor, G., 2012. Effects in the solubility of CaCO<sub>3</sub>: Experimental study and model description. *Fluid Phase Equilibria* 324, 1–7. <https://doi.org/10.1016/j.fluid.2012.03.020>
- de Brito, J., Saikia, N., 2013. Use of Construction and Demolition Waste as Aggregate: Properties of Concrete, in: *Recycled Aggregate in Concrete, Green Energy and Technology*. Springer London, London, pp. 229–337. [https://doi.org/10.1007/978-1-4471-4540-0\\_5](https://doi.org/10.1007/978-1-4471-4540-0_5)
- De Hemptinne, J.C., Behar, E., 2000. Propriétés thermodynamiques de systèmes contenant des gaz acides. Étude bibliographique. *Oil & Gas Science and Technology - Rev. IFP* 55, 617–637. <https://doi.org/10.2516/ogst:2000047>
- Drouet, E., 2010. Impact de la température sur la carbonatation des matériaux cimentaires: prise en compte des transferts hydriques, thèse de l'Ecole Normale Supérieure de Cachan. <https://theses.hal.science/tel-00618092>
- Gendron, F., 2019. Carbonatation des matériaux cimentaires : étude de la diffusion du CO<sub>2</sub>, thèse de La Rochelle Université. <https://theses.hal.science/tel-02520206>
- Georget, F., Huet, B., Turcry, P., 2022. Méthodes de mesure du coefficient de diffusion gazeuse des matériaux cimentaires: travaux du TC Rilem GDP, conférence NoMaD : Nouveaux Matériaux et Durabilité NoMaD, Montpellier. <https://hal.science/hal-03880403v1>
- Glasser, F.P., Pedersen, J., Goldthorpe, K., Atkins, M., 2005. Solubility reactions of cement components with NaCl solutions: I. Ca(OH)<sub>2</sub> and C-S-H. *Advances in Cement Research* 17, 57–64. <https://doi.org/10.1680/adcr.2005.17.2.57>
- Hassan, S.M.N., 2005. Techno-Economic Study of CO<sub>2</sub> Capture Process for Cement Plants.
- Izoret, L., Pernin, T., Potier, J.-M., Torrenti, J.-M., 2023. Impact of Industrial Application of Fast Carbonation of Recycled Concrete Aggregates. *Applied Sciences* 13, 849. <https://doi.org/10.3390/app13020849>
- Jooss, M., Reinhardt, H.W., 2002. Permeability and diffusivity of concrete as function of temperature. *Cement and Concrete Research* 32, 1497–1504. [https://doi.org/10.1016/S0008-8846\(02\)00812-8](https://doi.org/10.1016/S0008-8846(02)00812-8)
- Liu, L., Ha, J., Hashida, T., Teramura, S., 2001. Development of a CO<sub>2</sub> solidification method for recycling autoclaved lightweight concrete waste. *JOURNAL OF MATERIALS SCIENCE LETTERS* 4. <https://doi.org/10.1023/A:1012591318077>
- Omrani, S., Ghasemi, M., Mahmoodpour, S., Shafiei, A., Rostami, B., 2022. Insights from molecular dynamics on CO<sub>2</sub> diffusion coefficient in saline water over a wide range of temperatures, pressures, and salinity: CO<sub>2</sub> geological storage implications. *Journal of Molecular Liquids* 345, 117868. <https://doi.org/10.1016/j.molliq.2021.117868>
- 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/10.1080/17747120.2006.9692907>
- Sereng, M., Djerbi, A., Metalssi, O.O., Dangla, P., Torrenti, J.-M., 2021. Improvement of Recycled Aggregates Properties by Means of CO<sub>2</sub> Uptake. *Applied Sciences* 11, 6571. <https://doi.org/10.3390/app11146571>
- Tai, C.Y., Chen, F.-B., 1998. Polymorphism of CaCO<sub>3</sub>, precipitated in a constant-composition environment. *AIChE J.* 44, 1790–1798. <https://doi.org/10.1002/aic.690440810>
- Torrenti, J.M., Amiri, O., Barnes-Davin, L., Bougrain, F., Braymand, S., Cazacliu, B., Colin, J., Cudeville, A., Dangla, P., Djerbi, A., Doutreleau, M., Feraille, A., Gueguen, M., Guillot, X., Hou, Y., Izoret, L., Jacob, Y.-P., Jeong, J., Hiu Hoong, J.D.L., Mahieux, P.-Y., Mai-Nhu, J., Martinez, H., Meyer, V., Morin, V., Pernin, T., Potier, J.-M., Poulizac, L., Rougeau, P., Saadé, M., Schmitt, L., Sedran, T., Sereng, M., Soive, A., Dos Reys, G.S., Turcry, P., 2022. The FastCarb project: Taking advantage of the accelerated carbonation of recycled concrete aggregates. *Case Studies in Construction Materials* 17, e01349. <https://doi.org/10.1016/j.cscm.2022.e01349>
- Wang, D., 2021. Investigation of the carbonation performance of cement-based materials under high temperatures. *Construction and Building Materials* 13. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2020.121634>
- Zajac, M., Skocek, J., Golek, Ł., Deja, J., 2023. Supplementary cementitious materials based on recycled concrete paste. *Journal of Cleaner Production* 387, 135743. <https://doi.org/10.1016/j.jclepro.2022.135743>