

Approche multi-échelle de caractérisation des propriétés de transfert en fonction de la morphologie des matériaux cimentaires

Mohamad ACHOUR¹, Emmanuel ROZIERE², Francois BIGNONNET³, Ouali AMIRI³

¹ Builders Lab, Builders Ecole d'ingénieurs, COMUE Normandie Université, 1 Rue Pierre et Marie Curie, 14610 Epron, France

² École Centrale Nantes, Nantes Université, CNRS, GeM, UMR 6183, F-44000 Nantes, France

³ Nantes Université, GeM UMR 6183, F-44600 Saint-Nazaire, France

RESUME Le coefficient de diffusion d'un matériau cimentaire est fonction de sa microstructure et de sa morphologie à différentes échelles, allant du nanomètre au centimètre. La morphologie dépend de la formulation et des conditions de durcissement de ce matériau. L'approche multi-échelle sert à faire le lien entre les propriétés diffusives et mécaniques, la composition et la microstructure du matériau. Le coefficient de diffusion du béton est un indicateur de durabilité qui alimente les modèles de prédiction du vieillissement des ouvrages en béton armé. Il est l'un des paramètres d'entrée des modèles numériques qui évalue la capacité du béton à résister au phénomène de corrosion. Dans cet article, une campagne expérimentale a pour objectif de montrer l'influence de la composition des matériaux cimentaires sur les propriétés de durabilité. Il s'agit d'étudier l'influence du rapport Eau/Liant, des propriétés des granulats sur les propriétés diffusives. Deux types de granulats sont retenus : granulat calcaire poreux et dense. Les formulations se distinguent par le type et la fraction volumique des granulats ainsi le rapport Eau/Liant et le dosage des additions. Dans cet article, un modèle multi-échelle utilisé modélise les propriétés diffusives des matériaux cimentaires. Une confrontation entre les résultats expérimentaux et numériques est présentée et qui permet d'interpréter les résultats.

Mots-clefs durabilité, multi-échelle, coefficient de diffusion, granulats, morphologie

I. INTRODUCTION

Les producteurs de béton se tournent vers l'utilisation de ressources locales ou de matériaux de démolition pour l'approvisionnement en granulats en raison des défis de développement durable. Ces granulats diffèrent souvent des granulats de « référence » utilisés dans les études fournissant des seuils d'indicateurs de durabilité en termes de composition minéralogique, de morphologie, d'absorption et de courbe granulométrique (teneur en fines). Cependant, il a été démontré que la nature des granulats a un impact significatif sur la durabilité des bétons car elle permet aux agents agressifs de passer à travers leur structure poreuse (P. Halamickova et al. 1995), (R.Cortas et al. 2014). Les mécanismes de transfert et les propriétés microstructurales des bétons peuvent être influencés par les granulats. Grâce à l'utilisation de techniques expérimentales avancées telles que la microscopie électronique à balayage, la porosimétrie au mercure, la nano-indentation et d'autres, nous sommes de plus en plus en mesure de comprendre la microstructure des matériaux

cimentaires. Pour maximiser l'utilisation de ces matériaux, il est crucial de comprendre le lien entre cette microstructure et les propriétés macroscopiques. Ainsi, pour l'étude des propriétés des matériaux cimentaires, le choix d'une approche multi-échelle est intéressant, et cette approche sera au cœur du travail présenté ici. La micromécanique est utilisée pour comprendre le comportement de ce type de matériau hétérogène multi-échelle. Une des particularités de ce travail sera la question d'intégrer les propriétés des granulats dans les mécanismes de transfert.

Un indicateur de durabilité qui alimente les modèles de vieillissement est le coefficient de diffusion du béton. L'un des paramètres d'entrée les plus importants, est le coefficient de diffusion des ions chlorures, qui évalue la capacité d'un béton à résister aux mécanismes de transfert, en particulier au couplage carbonatation/chlorure. Le comportement du matériau vis-à-vis de la pénétration des ions chlorures peut être modifié par la proportion et les propriétés des granulats dans les matériaux cimentaires.

II. SYNTHÈSE BIBLIOGRAPHIQUE

Diverses études dans la littérature examinent comment la morphologie et la formulation du béton affectent les propriétés diffusives. Le coefficient de diffusion diminue avec l'augmentation de la fraction volumique du sable, selon les travaux de Delagrave et al. (Delagrave et al. 1997). Au contraire, les travaux de Wu et al. (Wu et al. 2015) ont montré que lorsque la fraction volumique du sable augmente au-delà de 35 %, le coefficient de diffusion augmente. Caré (Caré 2003) a testé la migration des ions chlorures sur des éprouvettes de mortiers et a découvert que les granulats ont un impact sur le coefficient de diffusion des mortiers. L'influence des granulats a été prise en compte dans les travaux de Caré (Caré 2003) en tenant compte de la variation du volume de l'ITZ qui entoure les granulats. De nombreux autres travaux ont démontré que la diffusivité des matériaux cimentaires est un sujet complexe qui dépend de la morphologie du béton et de ses constituants.

Selon la nature minéralogique des granulats dans les mortiers et les bétons, ils peuvent créer une zone d'interface. Selon plusieurs travaux de modélisation, l'épaisseur de la zone d'interface (ITZ) est comprise entre 20 et 30 μm (E. J. Garboczi, D. P. Bentz. (1997), J. Shane and T. Mason. (2000)). Avec l'aide de mesures de microscopie électronique à balayage (MEB), Crumbie (Crumbie 1994) a également découvert expérimentalement que l'épaisseur de l'ITZ était comprise entre 20 et 30 μm . Selon d'autres recherches, cette épaisseur pour les bétons ordinaires peut varier de 9 à 51 μm en fonction du type de ciment utilisé (Zheng et al. 2005). La distribution granulométrique des granulats est nécessaire pour déterminer la fraction volumique de l'ITZ. En prenant en compte le chevauchement entre les ITZ des granulats, l'approche analytique suggérée par Lu et Torquato (B. Lu and S. Torquato. (1992)) permet de produire une distribution de granulats sphériques de différentes tailles dans un milieu. Les travaux de Bentz et Garboczi (D. P. Bentz and E. J. Garboczi. 1999) adoptent également cette méthode basée sur le principe de l'espace de probabilité.

Cet article suggère d'utiliser un modèle multi-échelle illustré dans la figure 1 pour tester le modèle de prédiction du coefficient de diffusion des bétons CEM I développé dans le cadre des travaux de Achour (Achour et al. 2020). Ce modèle nécessite des paramètres d'entrée comme les propriétés mécaniques et diffusives des granulats, le rapport eau/liant et ainsi le dosage en

granulats. Les résultats sont encourageants, mais des écarts importants entre les résultats du modèle et ceux de la littérature peuvent être expliqués par le manque de paramètres d'entrée. Par conséquent, une campagne expérimentale est détaillée dans la suite avec tous les paramètres d'entrée nécessaires pour alimenter le modèle multi-échelle présentée. L'étude de l'impact de la formulation et des granulats (structure poreuse, type des granulats, fractions volumiques) sur le coefficient de diffusion des ions chlorures est également un objectif de cette campagne.

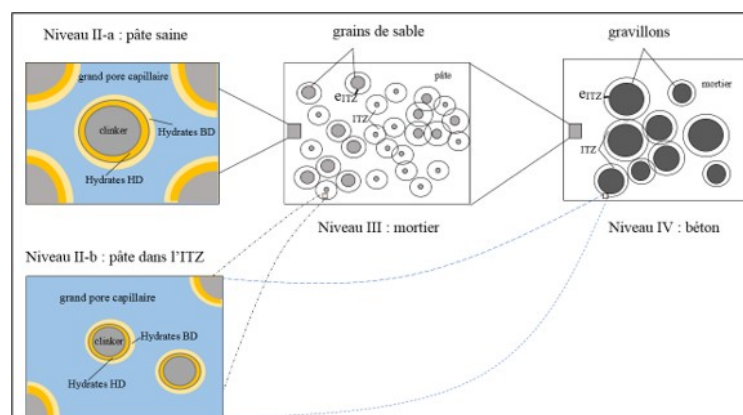


Figure 1 – Modèle
prédiction des propriétés diffusives du béton (Achour et al. 2020).

multi-échelle de

III. CAMPAGNE EXPERIMENTALE

Les mortiers et les bétons sont utilisés dans la campagne expérimentale. Elle est composée de dix différentes formulations. Les bétons et mortiers sont construits à partir de deux variétés de granulats calcaires : les granulats Boulonnais denses et les granulats Bayel poreux. La formulation de la pâte de ciment est en lien avec les formulations utilisées dans le projet PERFDUB national pour les mortiers et les bétons.

A. Choix des matériaux

Les bétons et les mortiers dans notre étude ont été fabriqués avec du ciment I 52.5N (masse volumique = 3,09 g/cm³) produit par l'usine EQIOM de Lumbres et du laitier de haut fourneau (masse volumique = 2,9 g/cm³) produit par l'usine Ecocem à Fos sur Mer. Un adjuvant est utilisé pour faciliter la mise en œuvre des mortiers et des bétons. C'est un plastifiant haut réducteur d'eau à base de polycarboxylate modifié, le SIKAPLAST TECHNO 348. Les granulats utilisés pour étudier leur impact sur les mécanismes de transfert dans le béton sont :

1. Les granulats de calcaire dense concassés appelés Boulonnais, utilisés pour fabriquer des bétons hydrauliques :
 - Sable d'une granulométrie de 0/4 mm.
 - Gravillon de 4/12 mm et 4/20 mm de granulométrie
2. Les granulats de calcaire Bayel concassés :
 - Sable d'une granulométrie de 0/4 mm.
 - Gravillon de 4/10 mm et 10/20 mm de granulométrie.

B. Formulations

Le type de granulats (Boulonnais ou Bayel), la fraction volumique des gravillons (15, 25 et 34%), l'addition utilisée (avec ou sans laitier de haut fourneau) ou le rapport $E_{eff}/liant$ (0,4-0,6) sont différents dans ce travail. Ces dix formulations sont résumées dans la figure 2 et détaillées dans les tableaux 1 et 2. Les formulations F2 et F5 désignent chacune trois formulations qui correspondent aux différentes fractions volumiques de gravillons (15, 25 et 34%).

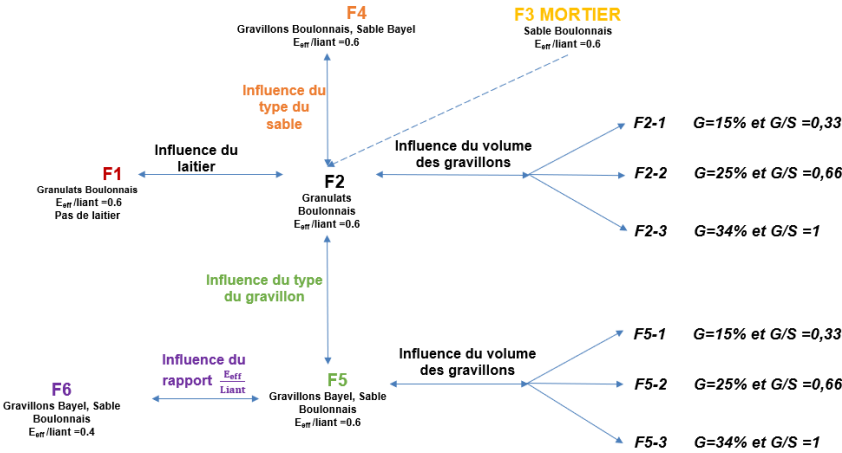


Figure 2 – Les dix formulations étudiées dans le cadre du programme expérimental

Tableau 1 et 2 – Composition des formulations étudiées dans le cadre du programme expérimental

Matériaux utilisés (Kg/ m³)	Béton de référence	Mortier	Bétons		
	F1	F3	F2-1	F2-2	F2-3
Ciment CEM I 52.5 N	315	199	168	148	129
Eau	188,7	280,5	237,6	209	182
Laitier de haut fourneau*	-	299	253	223	194
Plastifiant	0,775	1,385	0,9	0,85	0,9
Sable Boulonnais 0/4 mm	920	1418	1201	1057	920
Gravillons Boulonnais 4/12 mm	310	-	135	443	610
Gravillons Boulonnais 4/20 mm	610	-	266	225	310
Rapport $E_{eff}/liant$	0,6	0,6	0,6	0,6	0,6

Matériaux utilisés (Kg/ m³)	Bétons				
	F4	F5-1	F5-2	F5-3	F6
Ciment CEM I 52.5 N	129	168	148	129	160
Eau	182	238	209	182	160

Laitier de haut fourneau*	194	253	223	194	240
Plastifiant	0,6	0,95	0,93	0,85	0,6
Sable Boulonnais 0/4 mm	-	1201	1057	920	920
Gravillons Boulonnais 4/12 mm	310	-	-	-	-
Gravillons Boulonnais 4/20 mm	610	-	-	-	-
Sable Bayel 0/4 mm	878	-	-	-	-
Gravillons Bayel 4/10 mm	-	116	194	267	267
Gravillons Bayel 10/20 mm	-	245	408	562	562
Rapport E_{eff} /liant	0,6	0,6	0,6	0,6	0,4

Le rapport E_{eff} /Liant est obtenu avec un coefficient $K = 0,9$ de prise en compte du laitier (norme NF EN 206-1).

C. Essais et caractérisation

Afin de préparer les échantillons dans les mêmes conditions, chaque formulation des trois bétons a été effectuée en une journée. Après la vibration et la mise en place du béton, l'ensemble des éprouvettes 11*22 (cm) est immédiatement placé dans une chambre climatisée à 20°C pour les démouler après 24 heures. Après le démoulage, toutes les éprouvettes ont été conservées dans l'eau pendant 90 jours pour atteindre un degré d'hydratation avancé. En premier lieu, les propriétés mécaniques des bétons et les caractéristiques liées à l'action des chlorures peuvent être déterminées par des essais de caractérisation effectués sur chacune des formulations. Ces essais permettent également de tester l'approche multi-échelle déjà développée pour déterminer le coefficient de diffusion des ions chlorures des matériaux cimentaires et d'évaluer l'impact des granulats sur les propriétés de transport. Les essais réalisés sont les suivants :

- Résistance à la compression à 90 jours : essai d'écrasement (3 éprouvettes par formulation)
- Porosité accessible à l'eau à 90 jours (3 éprouvettes par formulation)
- Coefficient de diffusion effectif d'ions chlorures en régime permanent par essai de migration à 180 jours (3 éprouvettes par formulation)

Tableau 3 – Méthodologie de mesure des propriétés mécaniques et diffusives des 3 éprouvettes par formulation

Nature de l'essai	Objectifs	Eprouvettes	Age des éprouvettes
Résistance à la compression Essai d'écrasement	Résistance mécanique du béton et module d'Young	11*22 (cm)	90 jours
Méthode dynamique, Grindosonic	Module d'Young et coefficient de Poisson du béton	11*22 (cm)	90 jours
Porosité accessible à l'eau	Quantifier la porosité totale accessible à l'eau du béton	11*2 (cm)	90 jours
Migration des ions chlorure sous un champ électrique	Coefficient de diffusion effectif d'ions chlorure en régime permanent	11*5 (cm)	180 jours

IV. RESULTATS ET DISCUSSION

A. Porosité accessible à l'eau

La norme NF-P18-459 (2015) régit le protocole de mesure. La figure ci-dessous présente les résultats de la porosité accessible à l'eau sur les bétons et les mortiers. Ces résultats sont obtenus sur des échantillons d'un diamètre de 11 cm et d'une épaisseur de 2 cm qui ont été conservés dans l'eau pendant 90 jours. Les échantillons sont saturés dans un dessiccateur sous vide pendant 48 heures. Ils sont ensuite pesés dans l'air et dans l'eau pour obtenir m_a et m_e , puis mis dans une étuve à 105°C jusqu'à obtenir la masse constante m_s . Ainsi, l'équation 1 peut être utilisée pour déterminer la porosité du matériau :

$$\varepsilon = \frac{m_a - m_s}{m_a - m_e} \quad (1)$$

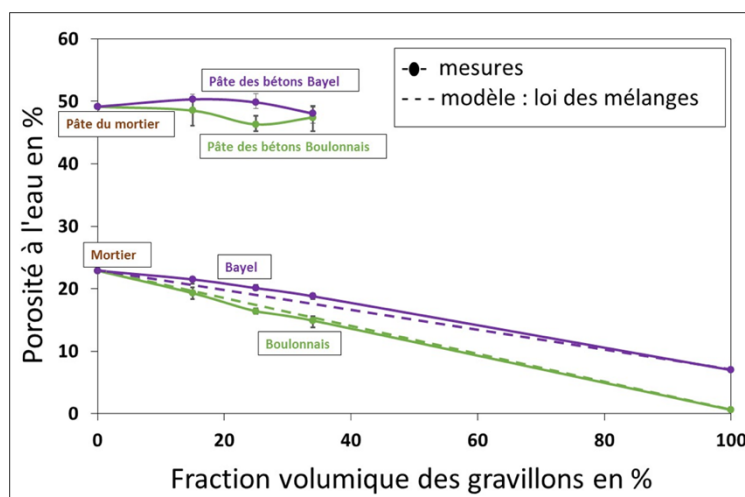


Figure 3 – Résultats de la variation de la porosité en fonction de type et de la fraction volumique des granulats

Les résultats montrent que lorsque des granulats sont ajoutés aux formulations F2 et F5, la porosité du béton diminue linéairement, ce qui semble valider la loi des mélanges. Les mesures sont relativement incertaines. En connaissant la porosité des granulats et du béton/mortier, la porosité des pâtes de ciment des bétons peut être estimée par calcul. Les bétons avec des gravillons Bayel ont une porosité plus élevée que les bétons avec des gravillons Boulonnais. La porosité importante de la roche Bayel (6,8%), qui est beaucoup plus élevée que celle de la roche Boulonnais (0,6%), peut expliquer cela.

B. Propriétés mécaniques des bétons

Malgré le fait que l'estimation des propriétés mécaniques du béton n'était pas l'objectif principal de cet article, des essais normalisés ont été réalisés pour vérifier la qualité du béton au niveau mécanique et interpréter les résultats relatifs à la durabilité. La variation des modules d'Young « dynamiques » et « statiques » en fonction de la fraction volumique des gravillons dépend du type de granulats, comme le montre la figure ci-dessous. La loi de mélange, qui relie le module d'Young d'un matériau sans gravillons (mortier) à un matériau qui ne contient que des gravillons (roche), ne peut pas prédire les mesures intermédiaires. Le module d'Young augmente avec l'ajout des gravillons.

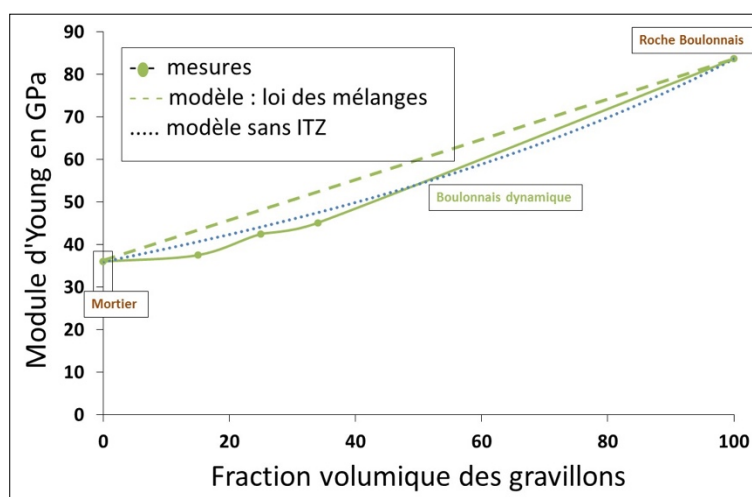


Figure 4 – Résultats de la variation du module d'Young en fonction de la fraction volumique des gravillons

On peut déduire que les résultats confirment qu'il existe des phénomènes dans les bétons qui peuvent expliquer l'écart entre les résultats expérimentaux et théoriques (la loi de mélange) comme de la fissuration interne, ITZ, etc.).

C. Coefficient de diffusion d'ions chlorures

La figure 4 montre que pour les deux types de granulats Boulonnais et Bayel, le coefficient de diffusion effectif des bétons diminue puis augmente avec l'augmentation de la fraction volumique des granulats. Ce résultat montre que plusieurs phénomènes sont combinés et contribuent. Il y a des microfissures dans la pâte cimentaire causées par le retrait empêché. En augmentant la

fraction volumique des gravillons, le nombre de surfaces d'interactions granulats-pâte augmente, ce qui implique plus de fissures qui se connectent et facilitent la diffusion des ions chlorures.

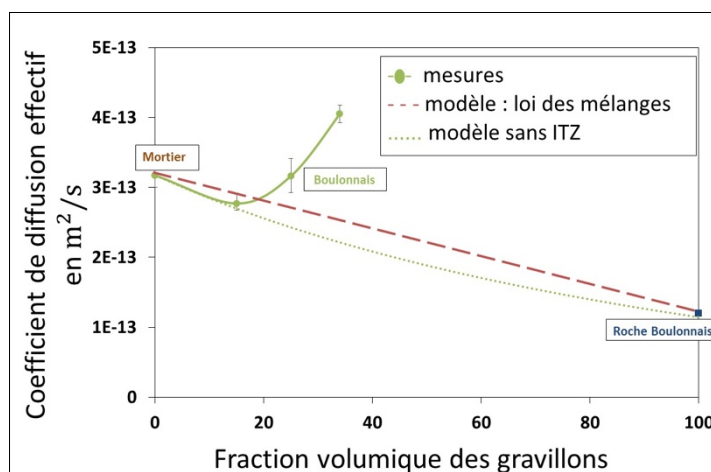


Figure 5 –Variation du coefficient de diffusion en fonction de la fraction volumique des gravillons Boulonnais

Il a également été possible d'obtenir ce résultat en examinant le coefficient de diffusion des mortiers (Wu et al. 2015).

La figure 5 montre que pour une même fraction volumique de gravillons, le passage Boulonnais-Bayel réduit le coefficient de diffusion. Le granulat Bayel présente une résistance inférieure à celle du Boulonnais, comme indiqué dans la figure 3. Il est possible que cela réduise les microfissures présentes autour des granulats dans la matrice cimentaire, ce qui réduit le nombre de voies favorables pour la diffusion des ions chlorures. La figure 5, qui montre l'impact de la substitution du sable Boulonnais par celui Bayel, confirme ce résultat.

Il existe un écart entre les résultats expérimentaux et la loi de mélange et un schéma d'homogénéisation classique (Mori-Tanaka). Au niveau de l'interface granulat-matrice, des phénomènes tels que la fissuration interne et l'ITZ peuvent modifier la tendance des résultats obtenus en fonction de la fraction volumique des granulats. Les méthodes d'homogénéisation les plus avancées sont donc utiles pour expliquer ces résultats obtenus et pour décrire avec précaution les phénomènes qui se produisent autour des granulats pendant l'hydratation de la pâte de ciment.

Il nous semble intéressant de combiner les propriétés diffusives et mécaniques car les résultats sur le coefficient de diffusion des bétons peuvent être interprétés en fonction de la nature et de la compacité des granulats.

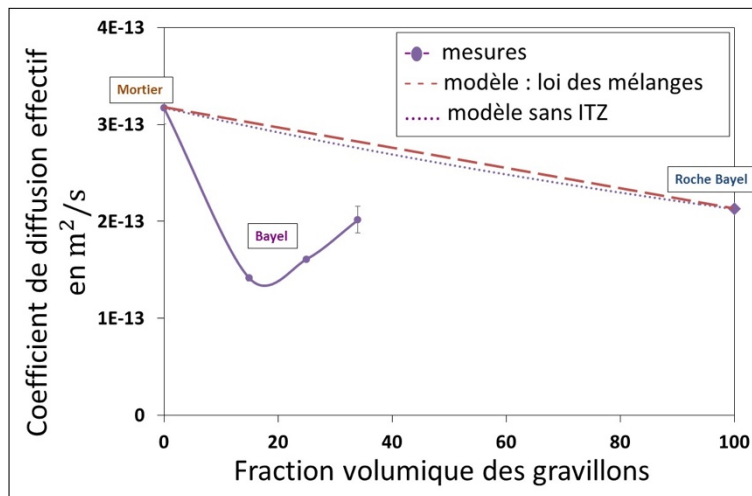


Figure 6 –Variation du coefficient de diffusion en fonction de la fraction volumique des gravillons Bayel

CONCLUSION

Dans cet article, nous avons développé une campagne expérimentale qui prend en compte l'impact des granulats sur le transfert d'ions chlorures afin de prédire les propriétés diffusives des matériaux cimentaires (mortiers et bétons). Les résultats expérimentaux ont été comparés à des modèles analytiques de prédiction. Le programme expérimental a montré que la formulation et les granulats du béton affectent le coefficient de diffusion. Il augmente avec l'ajout de granulats pour les granulats Boulonnais et Bayel. Cela est dû soit à la connectivité de l'ITZ autour des granulats, soit à la connectivité des fissures créées autour des granulats en raison du retrait empêché de la pâte de ciment.

Une discussion sur la tendance de la variation du coefficient de diffusion pour ces types de granulats a commencé en comparant les résultats expérimentaux avec ceux issus de la modélisation. Afin d'expliquer ces résultats, cette étude propose une hypothèse sur la concurrence entre les propriétés mécaniques des granulats (résistance, compacité) et les propriétés diffusives.

REFERENCES

- R. Cortas, E. Rozière, S. Staquet, A. Hamami, A. Loukili, and M. P. Delplancke-Ogletree. (2014). Effect of the water saturation of aggregates on the shrinkage induced cracking risk of concrete at early age. *Cement and Concrete Composite*. 50, 1–9. <https://doi.org/10.1016/j.cemconcomp.2014.02.006>
- P. Halamickova, R. J. Detwiler, D. P. Bentz, and E. J. Garboczi. (1995). Water permeability and chloride ion diffusion in portland cement mortars: Relationship to sand content and critical pore diameter. *Cement and Concrete Research*. 25(4), 790–802. [https://doi.org/10.1016/0008-8846\(95\)00069-O](https://doi.org/10.1016/0008-8846(95)00069-O)

A. Delagrave, J. P. Bigas, J. P. Ollivier, J. Marchand, and M. Pigeon. (1997). Influence of the interfacial zone on the chloride diffusivity of mortars. *Advanced Cement Based Material*. 5(3), 86–92. [https://doi.org/10.1016/S1065-7355\(96\)00008-9](https://doi.org/10.1016/S1065-7355(96)00008-9)

K. Wu, L. Xu, G. De Schutter, H. Shi, and G. Ye. (2015). Influence of the interfacial transition zone and interconnection on chloride migration of Portland cement mortar. *Advanced Concrete Technology*. 13(3), 169–177. <https://doi.org/10.3151/jact.13.169>

S. Caré. (2003). Influence of aggregates on chloride diffusion coefficient into mortar. *Cement and Concrete Research*. 33(7), 1021–1028. [https://doi.org/10.1016/S0008-8846\(03\)00009-7](https://doi.org/10.1016/S0008-8846(03)00009-7)

E. J. Garboczi and D. P. Bentz. (1997). Analytical formulas for interfacial transition zone properties. *Advanced Cement Based Materials*. (6), 99–108. [https://doi.org/10.1016/S1065-7355\(97\)90016-X](https://doi.org/10.1016/S1065-7355(97)90016-X)

J. Shane and T. Mason. (2000). Effect of the interfacial transition zone on the conductivity of Portland cement mortars. *Journal of the American Ceramic Society*, (44), 1137–1144. <https://doi.org/10.1111/j.1151-2916.2000.tb01344.x>

A. K. Crumbie. (1994). Characterisation of the microstructure of concrete. PhD thesis, Imperial College London.

J. J. Zheng, C. Q. Li, and X. Z. Zhou. (2005). Thickness of interfacial transition zone and cement content profiles around aggregates. *Magazine of Concrete Research*. 57(7), 397–406. <https://doi.org/10.1680/mac.2005.57.7.397>

B. Lu and S. Torquato. (1992). Lineal-path function for random heterogeneous materials. *Physical Review*. 45(2), 922–929. <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.45.922>

D. P. Bentz and E. J. Garboczi. (1999). Computer modelling of interfacial transition zone: microstructure and properties. *Engineering and Transport Properties of the Interfacial Transition Zone in Cementitious Composites*. RILEM Report No. 20. Proceedings. Part 5. Chapter 20. 349–385.

M. Achour, F. Bignonnet, J-F. Barthélémy, E. Rozière, O. Amiri. (2020). Multi-scale modeling of the chloride diffusivity and the elasticity of Portland cement paste. *Construction and Building Materials*. 234. <https://doi.org/10.1016/j.conbuildmat.2019.117124>.