

Evolution différée de mortiers type « smart concrete » en conditions de séchage : retrait, perte de masse et impédance électrique

Allam Hamza¹, Duplan François¹, Clerc Jean-Pierre¹, Amziane Sofiane², Burtschell Yves¹

¹ Aix-Marseille Université, CNRS, IUSTI UMR 7343, 13453, Marseille, France

² Univ. Clermont Auvergne, CNRS, Sigma, Institut Pascal, UMR 6602, Clermont-Ferrand, France

RESUME L'addition de fibres conductrices à un matériau cimentaire diminue les valeurs de son impédance électrique, permettant son exploitation à des fins de monitoring, en se basant sur l'exploitation d'une relation entre les sollicitations externes (mécanique ou thermique) et variation des propriétés électriques. Dans ce contexte, des variations des propriétés électriques dues au séchage empêchent donc l'application de cette technique, à moins que ces dernières soient négligeables, ou prédictibles avec précision. Ce papier a donc pour objectif d'étudier la variation de l'impédance électrique complexe lors du séchage, pour des fréquences de mesure comprises entre 4 Hz et 1 MHz. Les mesures de retrait, perte de masse, spectre d'impédance électrique ont été réalisées sur trois mortiers avec des fractions volumiques de fibres (FVF) de carbone de 0, 0,1 et 0,5 %. Les résultats montrent qu'en absence de fibres conductrices, les parties réelles et imaginaires de l'impédance augmentent à cause de la perte d'eau. En revanche, en présence d'un réseau de fibres de carbone percolé, l'impédance réelle du matériau diminue à basses fréquences et augmente à hautes fréquences durant le séchage ; pour des plages intermédiaires de fréquence, des valeurs quasi-constantes peuvent être observées. De plus, au fur et à mesure que le matériau sèche, le comportement capacitif du matériau s'estompe et les valeurs d'impédance imaginaire tendent vers 0. Le comportement électrique se rapproche alors d'un comportement résistif idéal avec une valeur d'impédance réelle indépendante de la fréquence de mesure. Les fréquences aveugles ont été repérées pour les mortiers fibrés autour de 1 KHz et 40 KHz respectivement pour 0.1% et 0.5 % de FVF. En revanche, cette fréquence aveugle n'existait pas pour le mortier de référence. Cette plage de fréquence peut permettre, en cas de structural health monitoring à long terme, la détection des effets des charges mécaniques externes sur l'impédance, avec des effets minimes liés au séchage du mortier.

Mots-clefs Mortier, fibres de carbone, propriétés électriques, séchage

I. INTRODUCTION

Le "smart concrete" est un matériau cimentaire comportant des fillers conducteurs sous formes de particules, tubes ou fibres. De manière générale, l'addition des fillers conducteurs entraîne une diminution de la résistivité électrique du matériau et induit une relation quasi-linéaire entre cette dernière et la déformation du matériau (ie piezo résistivité). Il est alors possible d'exploiter la mesure de résistance ou d'impédance électrique d'un volume de matériau pour estimer la déformation mécanique en compression ^{[1][2]}, traction ^[1], l'endommagement ^[3] ou encore la température du matériau ^[4].

Initialement, un matériau cimentaire est saturé en eau. Une partie de cette eau est consommée par les réactions d'hydratation du ciment, alors qu'une autre partie, excédentaire, crée des pores capillaires au sein de la pâte de ciment. Si les conditions de cure sont « humides » (matériau immergé ou humidité relative proche de 100%), l'eau consommée par l'hydratation du ciment est remplacée par de l'eau environnante. En conditions de cure sèche, l'humidité relative de l'environnement est plus faible que celle de la structure interne du matériau, et l'eau consommée par l'hydratation du ciment n'est pas remplacée. De plus, l'eau de la solution interstitielle retenue dans la porosité capillaire de la pâte de ciment est susceptible de s'évaporer. Elle entraîne alors une diminution de la pression capillaire appliquée sur les parois des pores ^[5] et une diminution de la tension superficielle ^[6], qui ont pour conséquence une contraction volumique du matériau, le retrait de séchage (ou de dessiccation) ^[7]. Ces phénomènes de séchage créent des gradients hydriques entre cœur et périmètre de l'échantillon à l'échelle macroscopique, ainsi que des gradients de déformation entre granulats et pâte de ciment, et peuvent causer l'apparence de microfissures dans le matériau. Les conditions de cure et la composition du matériau jouent un rôle prépondérant sur ces phénomènes.

En l'absence d'additions conductrices, la résistivité électrique d'un matériau cimentaire est principalement liée à son aptitude au transport ionique des charges dans la phase liquide ^[8]. Pour des roches poreuses imbibées en eau, Archie avait identifié une loi de puissance décrivant la dépendance de la résistivité au degré de saturation de la porosité ^[9]. Dans le cas de matériaux cimentaires, la concentration ionique de la solution interstitielle peut augmenter durant le séchage ^[10], ce qui entraîne une diminution de la résistivité intrinsèque du liquide. Cependant, l'évaporation de l'eau entraîne une diminution du degré de saturation de la porosité capillaire en phase liquide, limitant ainsi de manière dominante le transport ionique des charges électriques ^[11]. De plus, il a aussi été observé que l'évolution du degré d'hydratation du ciment entraînait aussi une diminution de la fraction volumique des pores capillaires et de leur connectivité, et donc une augmentation de la résistivité. D'autres travaux ont aussi observé que lorsqu'un degré de saturation critique est atteint, la percolation du réseau liquide des pores capillaires n'est plus garantie, et la résistivité décroît alors de manière considérable ^[12]. Cette forte dépendance de la résistivité électrique des matériaux cimentaires à leur degré de saturation, et donc à leur teneur en eau, est appliquée pour évaluer de manière non-destructive la teneur en eau, ou le risque de corrosion des armatures de structures en béton armé ^[13].

La présence d'additions conductrices provoque une forte diminution de la résistivité électrique des matériaux, notamment lorsque ces dernières créent un réseau percolé ^[14]. La fraction volumique, la forme et le degré de dispersion des fibres seront des facteurs majeurs pour la percolation des fibres. Avec des additions de type fibres de carbone, en conditions de cure humide, l'augmentation du degré d'hydratation entraîne une augmentation de la résistivité électrique ^[15]. En conditions de cure sèche, la présence d'un réseau percolé de fibres de carbone de percolation limite très fortement l'augmentation de la résistivité moyennée sur la plage de fréquence 10 kHz – 1 MHz durant le séchage ^[16]. Avec des additions de type nanotubes de carbone / noir de carbone, la résistivité électrique décroît lors du séchage ^[17].

A moins que l'effet du séchage sur l'impédance soit réduit ou prédictibles avec précision, il peut porter des effets d'inexactitude sur les mesures de structural health monitoring avec le temps. Ce papier a donc pour objectif d'étudier la variation de l'impédance électrique complexe lors du séchage, pour des fréquences de mesure comprises entre 4 Hz et 1 MHz. Les mesures de retrait, perte de masse, spectre d'impédance électrique ont été réalisées sur trois mortiers avec des fractions volumiques de fibres (FVF) de carbone de 0, 0,1 et 0,5 %. Les résultats montrent qu'en présence d'un réseau de fibres de carbone percolé, l'impédance réelle du matériau diminue à

basses fréquences et augmente à hautes fréquences durant le séchage ; pour des plages intermédiaires de fréquence, des valeurs quasi-constantes peuvent être observées. De plus, au fur à mesure que le matériau sèche, le comportement capacitif du matériau s'estompe et les valeurs d'impédance imaginaire tendent vers 0. Le comportement électrique se rapproche alors d'un comportement résistif idéal avec une valeur d'impédance réelle indépendante de la fréquence de mesure.

II. PROCEDURES EXPERIMENTALES

Les fibres de carbone utilisées sont produites par Toho-tenax, leur longueur est 6 mm et leur diamètre de 7 μm . Leur surface est vierge de tout traitement d'imprégnation pour polymères (silane, ...). Les autres matériaux utilisés dans la composition du mortier sont un ciment CALCIA CEMI 52.5 R, du sable normalisé et du superplastifiant BASF MasterGlenium ACE 550. Les trois mortiers testés présentent le même rapport E/C (0,4) et la même fraction volumique de sable (40%, soit un rapport massique s/c de 1,27). La quantité de superplastifiant a été augmentée avec la quantité de fibres afin de garantir une consistance à l'état frais permettant un remplissage des moules sans vibrations externes.

Le malaxage dans un malaxeur Perrier a été effectué à une vitesse de rotation constante de 140 rpm selon la séquence suivante : 1 min avec ciment, sable et fibres, puis 2 minutes après ajout de l'eau et du superplastifiant. Les 3 échantillons 4*4*16 cm étaient démoulés à 24h, puis immergés à 20°C jusqu'à un âge de 28 jours, pour ensuite être placés dans un environnement à 20°C et 50 % HR pour une durée de 350 jours durant laquelle ont été suivis le retrait, la perte de masse et le spectre d'impédance. Les électrodes sont des plaques de cuivre mises en contact avec les échantillons 4*4*16 cm via une feuille de cuivre adhésive conductive et une peinture conductrice de nickel appliquées aux extrémités des échantillons.

III. RESULTATS

Perte de masse et retrait

Les figures 1a et 1b montrent les évolutions de la perte de masse et du retrait des échantillons de mortier après 28 jours de cure en immersion dans l'eau. Les courbes de perte de masse et de retrait montrent des tendances classiques asymptotiques, et sont quasi-identiques pour le mortier de référence et le mortier avec une FVF de 0,1 %. En revanche, le mortier avec une FVF de 0,5 % montre des valeurs plus élevées de perte de masse (13 % de plus en fin d'étude) et de retrait (26% de plus en fin d'étude).

La figure 1(c) montre également que la relation entre retrait et perte de masse est légèrement impactée par la présence des fibres. Ici, en l'absence d'évolution significative du degré d'hydratation du ciment, les fibres favorisent légèrement la valeur de retrait de séchage du mortier à valeur de perte de masse équivalente, notamment pour des pertes de masse entre 1 et 3 % (cf. figure 1c). La relation entre retrait et perte de masse est quasi-linéaire dans une première phase jusqu'à environ 2,5 - 3 % de perte de masse (soit une durée de séchage d'environ 120 jours) ; ensuite, dans une deuxième phase, la perte de masse continue d'évoluer alors que le retrait tend vers une valeur constante.

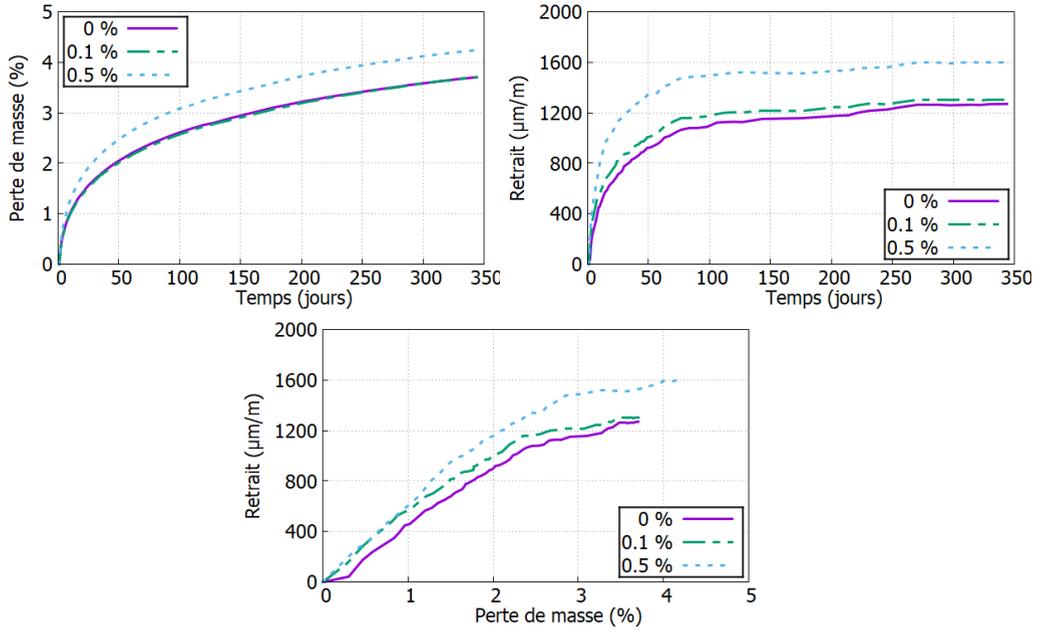


Fig 1 : (a) Perte de masse (b) Retrait (c) Retrait en fonction de la perte de masse

Evolution différée de l'impédance électrique durant le séchage

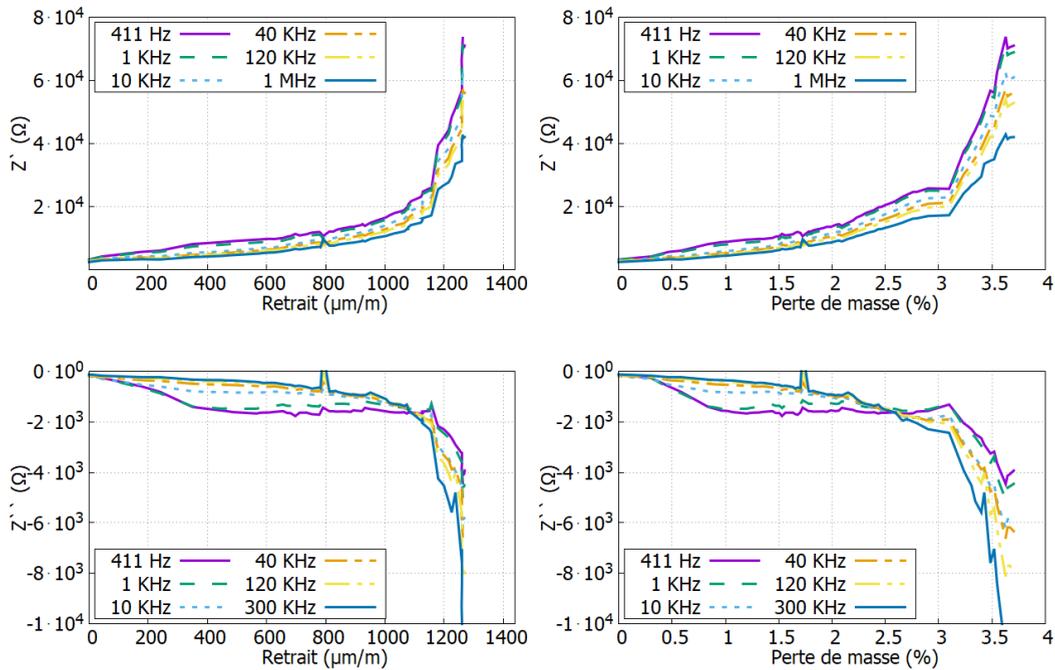


Fig 2: Impédance réelle du mortier de référence en fonction du (a) retrait (b) perte de masse, impédance imaginaire en fonction du (c) retrait (d) perte de masse

La figure 2 montre l'évolution des parties réelles et imaginaires de l'impédance en fonction du retrait et de la perte de masse pour différentes fréquences de mesure pour le mortier de référence. Lorsque les valeurs de retrait et perte de masse atteignent respectivement $1,150 \cdot 10^{-3} \epsilon$ et 3 %, les valeurs de l'impédance réelle augmentent considérablement (cf. figure 2a et 2b), Les valeurs

absolues d'impédance imaginaire augmentent aussi très fortement sur toute la plage de fréquence lorsque la perte de masse dépasse 3% (cf. figures 2c et 2d).

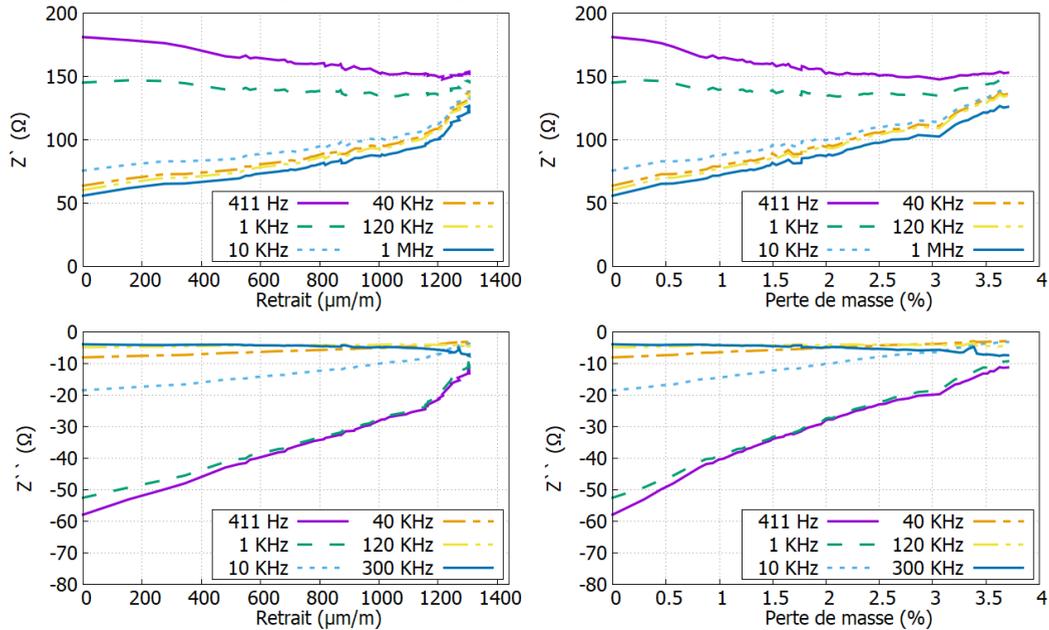


Fig 3 : Impédance réelle du mortier fibrés (FVF = 0.1%) en fonction du (a) retrait (b) perte de masse, impédance imaginaire en fonction du (c) retrait (d) perte de masse

La figure 3 montre l'influence des fibres sur l'évolution différée des parties réelles et imaginaires de l'impédance pour le mortier comportant une FVF de 0,1 %. on remarque que la fréquence de mesure joue un rôle notable sur la forme de l'évolution de l'impédance durant le séchage. Aux basses fréquences l'impédance réelle diminue, alors qu'aux hautes fréquence elle augmente.

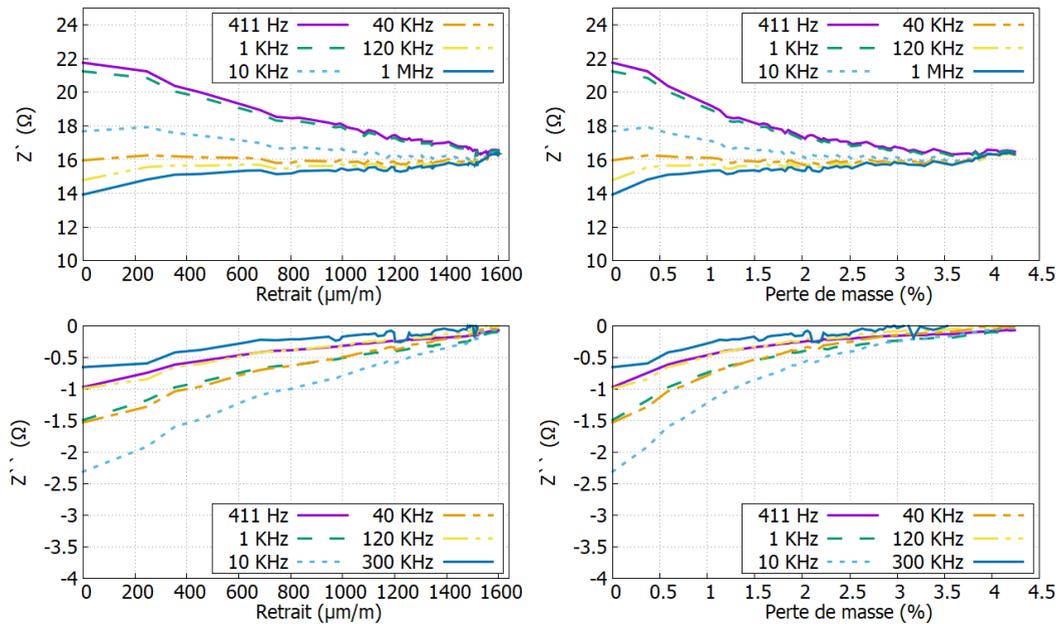


Fig 4 : Impédance réelle du mortier fibrés (FVF = 0.5 %) en fonction du (a) retrait (b) perte de masse, impédance imaginaire en fonction du (c) retrait (d) perte de masse

En revanche, la valeur absolue de l'impédance imaginaire décroît pour toutes les fréquences. Ainsi, d'une part, les valeurs d'impédance réelle semblent tendre vers une valeur unique, indépendante de la fréquence de mesure ; d'autre part, il pourrait y avoir une plage de fréquence spécifique pour laquelle l'impédance réelle présente une valeur stable en présence des effets combinés de la perte de teneur en eau et du retrait de dessiccation. Un comportement similaire est observé pour le mortier comportant une FVF de 0,5 %, comme le montre la figure 4 : là aussi la partie imaginaire de l'impédance décroît fortement durant le séchage pour arriver à 0Ω , et les valeurs d'impédance réelle semblent tendre vers une valeur unique égale à 16Ω indépendante de la fréquence de mesure.

Pour le mortier de référence, la valeur de l'impédance réelle augmente considérablement durant et après la phase de retrait, et ne se stabilise pour aucune fréquence de mesure (cf. figure 5a). En revanche, pour les mortiers fibrés, il semble exister une fréquence de mesure pour laquelle la valeur de l'impédance réelle reste quasi-constante tout au long du séchage. Pour le mortier avec une FVF de 0,1 %, cette fréquence de mesure « aveugle » au séchage est d'environ 1 kHz (cf. figure 5b), alors que pour le mortier avec une FVF de 0,5 % cette fréquence de mesure semble être autour de 40 kHz (cf. figure 5c). Les fréquences aveugles correspondent à des courbes de l'impédance réelle en fonction du temps avec une pente nulle (i.e. impédance réelle quasi-constante en fonction du temps).

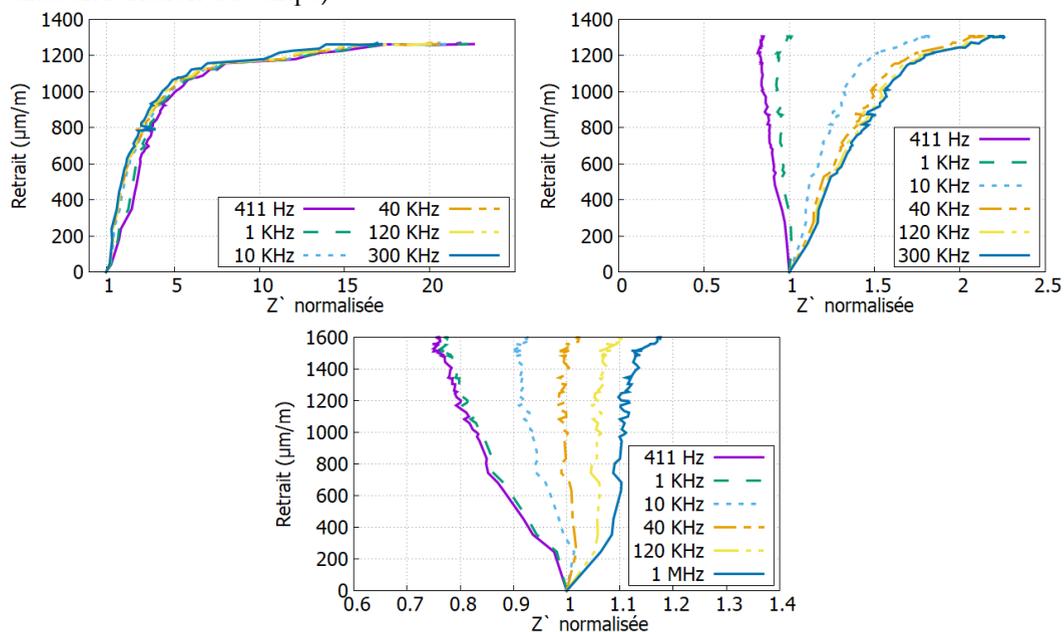


Fig 5 : Impédance réelle normalisée (a) référence (b) FVF 0.1 % (c) 0.5 %

IV. DISCUSSION

La relation linéaire entre retrait et perte de masse observée en début de séchage démontre l'effet direct de la diminution de la teneur en eau dans les pores capillaires. Dans une deuxième phase du séchage, le retrait généré par la perte de masse est moindre car le réseau principal des pores capillaires est fortement dé-saturé [7]. Les fibres de carbone sont censées réduire le retrait, notamment au jeune âge et/ou lorsque la cure ne se fait pas en conditions humides [21]. Cependant, pour cette étude, le retrait de dessiccation a été étudié après 28 jours de cure humide et avec des faibles quantités de fibres. De manière similaire, dans d'autres travaux [20], les fibres de carbone

n'ont permis de réduire le retrait que lorsque leur dosage dépassait un certain seuil (FVF de 0,4%). Cet effet peut être lié à l'emploi d'une quantité additionnelle de super plastifiant pour les mortiers fibrés augmentant la phase liquide initiale, en plus de la possibilité de création de « clusters » de fibres, ce qui peut entraîner une augmentation d'air entraîné élargissant la taille des pores, et favorisant la perte d'eau [20].

Pour le mortier de référence sans fibres, la diminution de la teneur en eau dans les pores capillaires entraîne une augmentation de la valeur d'impédance réelle tout au long du séchage, et de manière considérable lorsque la perte de masse dépasse 3 %. Ces résultats sont cohérents avec la loi d'Archie [9]. L'impédance réelle et imaginaire montre une augmentation sur toute la plage de fréquence tout au long de la période de séchage.

Pour les mortiers fibrés, l'impédance électrique est fortement réduite par la percolation d'un réseau conducteur tri-dimensionnel créé par les fibres qui se touchent ou qui sont très proches.

Durant le séchage, le retrait de la pâte de ciment génère des déformations relatives entre les différentes phases du matériau (pâte, granulats, fibres). Ainsi, bien que l'impédance réelle de la matrice cimentaire soit en train d'augmenter durant le séchage à cause de la perte progressive de l'eau poreuse, on observe à basses fréquences une diminution de l'impédance réelle apparente du mortier. Ce paradoxe pourrait être expliqué par un effet du retrait, favorisant le contact entre les fibres adjacentes et ainsi améliorant la conductivité électronique. Il peut être lié aussi à la réduction de l'effet de polarisation en réduisant la quantité d'eau présente dans le mortier. L'augmentation de l'impédance réelle à haute fréquence a été atténuée avec 0.5%, vu la présence plus importante des fibres, qui a favorisé la conductivité à travers les chaînes percolées et consécutivement réduit l'effet de la perte progressive de transport ionique des charges électriques. Lors du séchage, le comportement capacitif du mortier disparaît, et ce dernier présente un comportement résistif quasi-parfait, plus prononcé dans le cas de mortier saturé en fibres (0.5%) : la valeur de l'impédance réelle à haute est quasi-constante sur toute la plage de fréquences de mesure étudiée, en plus d'une valeur imaginaire égale à 0 après un temps de séchage considérable.

L'utilisation d'une ou plusieurs fréquences de mesure pour laquelle le séchage aurait un effet très limité sur l'impédance électrique réelle serait un atout incontestable pour l'exploitation de cette mesure à des fins de Structural Health Monitoring. En effet, les valeurs d'impédance réelle mesurées à cette fréquence pourraient permettre l'évaluation de chargements mécaniques ou thermiques en réduisant les effets du séchage.

V. CONCLUSION

Cette étude permet de faire les observations suivantes quant à l'évolution différée des propriétés électriques des mortiers fibrés durant le séchage :

- Pour le mortier de référence, la diminution de la teneur en eau dans le matériau entraîne une augmentation de l'impédance avec le séchage, montrant une accélération très forte lorsque la perte de masse dépasse 3 %, soit après environ 120 jours de séchage pour une éprouvette 4*4*16cm. Le degré de saturation de la solution interstitielle dans le réseau de pores capillaires est alors trop faible pour permettre sa connectivité continue dans le matériau, empêchant ainsi le transport ionique des charges électriques. L'impédance électrique ne montre alors aucune phase de stabilisation, indépendamment de la fréquence de mesure.
- En présence de fibres, l'impédance réelle des mortiers diminue à basses fréquences, contrairement au mortier de référence, et augmente à hautes fréquences, mais dans des

proportions bien moindres au mortier fibré. La diminution à basses fréquences est a fortiori due à un effet positif du retrait sur la conductivité du réseau de fibres, alors que l'augmentation à hautes fréquences serait une conséquence de la diminution de la teneur en eau. Cependant, cette augmentation de l'impédance réelle à hautes fréquences est fortement réduite par la présence des fibres, car le réseau conducteur qu'elles créent permet le transport électronique des charges en l'absence de solution interstitielle dans la porosité capillaire du matériau.

- Le comportement capacitif du matériau disparaît progressivement durant le séchage, et l'écart entre les valeurs d'impédance réelle mesurées à basses et hautes fréquences se réduit. Ainsi, les valeurs d'impédance réelle semblent tendre vers une valeur unique indépendante de la fréquence de mesure.
- Une gamme de fréquence de mesure présente des valeurs d'impédance réelle quasi-constantes tout au long du séchage. Cependant, cette fréquence est différente pour les mortiers avec des FVF de 0,1 et 0,5 % : elle semble être respectivement autour de 1 et 40 kHz.
- Pour les mortiers comportant des fibres de carbone, la mesure de l'impédance électrique peut permettre le suivi d'actions externes telles qu'un chargement mécanique ou une variation de température. Cependant, en l'état, toute variation du degré de saturation de la porosité capillaire risque de fausser l'exploitation de mesures électriques à des fins de monitoring ; l'utilisation de cette fréquence de mesure spécifique pourrait permettre de s'affranchir de cette limitation.

REFERENCES

- [1] D. D. L. Chung. Piezoresistive Cement-Based Materials for Strain Sensing. *Journal of Intelligent Material Systems and Structures*, 13(9):599-609, Septembre 2002.
- [2] Investigation on the Method of AC Measurement of Compression Sensibility of Carbon Fiber Cement Journal of Wuhan Urban Construction Institute 200502.
- [3] Intrinsic self-sensing concrete and structures: A review - ScienceDirect.
- [4] Egemen Teomete 2016 *Smart Mater. Struct.* 25 075024
- [5] Derjaguin B.V. (1987) Some results from 50 years' research on surface forces. In: *Surface Forces and Surfactant Systems*. Progress in Colloid & Polymer Science, vol 74. Steinkopff
- [6] C.F. Ferraris, F.H. Wittmann, Shrinkage mechanisms of hardened cement paste, *Cement and Concrete Research*, Volume 17, Issue 3, 1987, Pages 453-464, ISSN 0008-8846,
- [7] HANSEN, W. (1987), Drying Shrinkage Mechanisms in Portland Cement Paste. *Journal of the American Ceramic Society*, 70 : 323-328. doi :10.1111/j.1151-2916.1987.tb05002.x
- [8] Rajabipour, F., Weiss, J. Electrical conductivity of drying cement paste. *Mater Struct* 40, 1143-1160 (2007).
- [9] Archie, G.E. (1942). "The electrical resistivity log as an aid in determining some reservoir characteristics" *Petroleum Transactions of AIME*. 146: 54-62. doi:10.2118/942054-g
- [10] Rajabipour F (2006) In situ electrical sensing and material health monitoring of concrete structures, Ph.D. Dissertation, Purdue University, West Lafayette, Indiana
- [11] Revil A, Glover PWJ (1997) Theory of ionic-surface electrical conduction in porous media. *Phys Rev B* 55(3):1757-1773
- [12] Edward J. Garboczi, Permeability, diffusivity, and microstructural parameters: A critical review, *Cement and Concrete Research*, Volume 20, Issue 4, 1990, Pages 591-601, ISSN 0008-8846,
- [13] Rob B Polder, Test methods for on-site measurement of resistivity of concrete — a RILEM TC-154 technical recommendation, *Construction and Building Materials*, Volume 15, Issues 2-3, 2001, Pages 125-131, ISSN 0950-0618, [https://doi.org/10.1016/S0950-0618\(00\)00061-1](https://doi.org/10.1016/S0950-0618(00)00061-1).
- [14] Xie, P., Gu, P. & Beaudoin, J.J. Electrical percolation phenomena in cement composites containing conductive fibres. *JOURNAL OF MATERIALS SCIENCE* 31, 4093-4097 (1996). <https://doi.org/10.1007/BF00352673>
- [15] N. Banthia, S. Djeridane, M. Pigeon, Electrical resistivity of carbon and steel micro-fiber reinforced cements, *Cement and Concrete Research*, Volume 22, Issue 5, 1992, Pages 804-814, ISSN 0008-8846
- [16] Alberto Belli, Alessandra Mobili, Tiziano Bellezze, Francesca Tittarelli, Commercial and recycled carbon/steel fibers for fiber-reinforced cement mortars with high electrical conductivity, *Cement and Concrete Composites*, Volume 109, 2020, 103569, ISSN 0958-9465, <https://doi.org/10.1016/j.cemconcomp.2020.103569>.
- [17] Han, B., Yu, X. & Ou, J. Effect of water content on the piezoresistivity of MWNT/cement composites. *J Mater Sci* 45, 3714-3719 (2010). <https://doi.org/10.1007/s10853-010-4414-7>
- [18] Pu-Woei Chen, D.D.L. Chung, Low-drying-shrinkage concrete containing carbon fibers, *Composites Part B: Engineering*, Volume 27, Issues 3-4, 1996, Pages 269-274, ISSN 1359-8368, [https://doi.org/10.1016/1359-8368\(95\)00020-8](https://doi.org/10.1016/1359-8368(95)00020-8).