

Modélisation du piégeage du CO₂ par carbonatation accélérée de granulats de béton recyclés

Philippe TURCRY, Fabien GENDRON, Ahmad DEEB, Abdelkarim AÏT-MOKHTAR

Laboratoire des Sciences de l'Ingénieur pour l'Environnement (LaSIE), UMR CNRS 7356, La Rochelle Université, Avenue Michel Crépeau, 17000 La Rochelle France

RESUME Une solution pour réduire les émissions de CO₂ des structures en béton est d'utiliser la capacité des granulats de béton recyclés (GBR), produits par concassage du béton de démolition, à piéger du CO₂ par carbonatation accélérée. Dans l'étude présentée ici, nous cherchons à évaluer, à l'échelle d'un GBR, l'influence de différents paramètres sur la vitesse de piégeage du CO₂. Cette évaluation est faite à l'aide d'un modèle numérique simulant la carbonatation d'un grain de géométrie sphérique.

Mots-clés : carbonatation, piégeage du CO₂, granulats de béton recyclés

I. INTRODUCTION

Au moins 5% des émissions de gaz à effet de serre ont pour origine l'industrie du ciment (Pacheco et al., 2012). A l'heure où l'Europe se fixe pour objectif d'atteindre une neutralité carbone en 2050, ce chiffre interpelle : la réduction des émissions de CO₂ doit être un objectif de la filière des matériaux cimentaires. En plus des solutions déjà proposées dans la littérature, comme la réduction des dosages en clinker du béton (Younsi et al., 2011), les « puits de carbone » peuvent aussi être envisagés. Le béton est en effet un matériau carbonatable : il va fixer au cours de sa vie en œuvre le CO₂ atmosphérique. En fin de vie, cette fixation sera accélérée, une fois le béton concassé, par augmentation de la surface d'échange entre le matériau et l'air ambiant. Pour accélérer encore la carbonatation, la mise en contact des granulats de béton recyclés (GBR) avec un gaz riche en CO₂ est un nouveau procédé, qui fait l'objet du projet national Fastcarb.

Dans le travail présenté ici, nous proposons d'évaluer le piégeage du CO₂ par des GBR à l'aide d'un modèle numérique de carbonatation. Une étude paramétrique a été réalisée pour évaluer les cinétiques de carbonatation à l'échelle d'un granulats de géométrie simplifiée. Cette étape est un préalable à la modélisation de la carbonatation à l'échelle d'un empilement de GBR. La finalité de la modélisation est de venir en appui des expérimentations aussi réalisées dans le projet Fastcarb.

II. MODELE DE CARBONATATION

Le modèle utilisé est régi par deux équations couplées de conservation de masse écrites pour l'eau (1) et pour le CO₂ en phase gazeuse (2) sous la forme suivante :

$$\frac{\partial}{\partial t}(\phi \cdot S) = \text{div}(D_S \cdot \text{grad}(S)) + r_H \quad (1)$$

$$\frac{\partial}{\partial t}(\phi \cdot (1 - (1 - K_H) \cdot S) \cdot C) = \text{div}(D_C \cdot \text{grad}(C)) + r_{CH} + r_{CSH} \quad (2)$$

L'équation (1) représente le transport de l'eau dans le matériau de porosité ϕ et de degré de saturation en eau S . Cette équation est pilotée par le coefficient de diffusion hydrique D_S , qui dépend de ϕ , de S et d'une isotherme de désorption. r_H modélise la production d'eau liée à la carbonatation de la portlandite. L'équation (2) modélise l'évolution de la quantité de CO₂ gazeux (C). Le coefficient de diffusion effectif du CO₂ (D_C) est obtenu avec le modèle de [Millington, 1959] (équation 3). D_C^0 est le coefficient de diffusion du CO₂ dans l'air. Les constantes a et b ont été déterminées à partir d'essais de diffusion gazeuse [Boumaaza et al., 2018] [Gendron, 2019].

$$D_C = D_C^0 \cdot \phi^a \cdot (1 - S)^b \quad (3)$$

Les cinétiques de carbonatation de la portlandite (r_{CH}) et des CSH (r_{CSH}) s'écrivent comme suit s'écrire sous la forme suivante :

$$r_{CH,CSH} = \phi \cdot S \cdot K_H \cdot C \cdot k_{CH,CSH} \quad (4)$$

Où : K_H est la constante de Henry ; k_{CSH} est une constante de temps pour la réaction des CSH avec le CO₂ ; k_{CH} est une fonction modélisant l'influence du degré de carbonatation de la portlandite et de la géométrie sur la consommation du CO₂ par cet hydrate [De Larrard et al., 2013].

L'ensemble du système d'équations est résolu numériquement avec la méthode des éléments finis à l'aide du code FEniCs (open-source : fenicsproject.org). Pour calibrer le modèle, nous nous sommes tournés vers des données de [Thiery, 2005], correspondant à une pâte de ciment CEMI 52.5 de rapport E/C = 0,45, de porosité égale à 40%, soumise à une carbonatation accélérée à 50% de CO₂ après une mise à l'équilibre hydrique à 53% HR (i.e. $S = 0.35$). La figure 1 montre les profils simulés de carbonates de calcium (CC), de portlandite et de la variation de porosité, après calibration, par comparaison aux résultats expérimentaux.

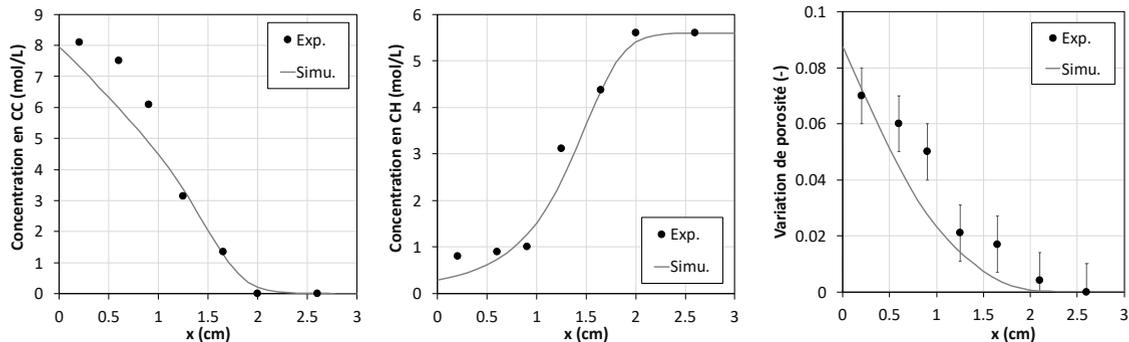


FIGURE 1. Comparaison des résultats expérimentaux avec les simulations numériques : profils de carbonates de calcium (à gauche), de la portlandite (au milieu), variation de la porosité (à droite)

III. PROBLEME SIMULE

Le modèle a été utilisé pour simuler la carbonatation d'un GBR de géométrie sphérique. On considère un milieu continu soumis à une ambiance donnée, dont les caractéristiques sont les suivantes : température de 20°C, humidité relative entre 20 et 90% HR et concentration en CO₂ de 15%. Cette dernière valeur correspond à la concentration moyenne dans la fumée d'une cimenterie, gaz envisagé dans le projet Fastcarb pour carbonater les GBR. Outre le diamètre du grain, les propriétés initiales du matériau font partie des paramètres qui sont faits variés. Nous présentons dans cette communication uniquement les résultats pour un matériau de porosité égale à 20%, de perméabilité à l'eau de $5 \cdot 10^{-20}$ m² et de concentrations en portlandite et CSH respectivement de 1000 et 800 mol/m³. Le degré de saturation en eau initial est fixé à 0,3, 0,6 ou 0,9. Nous prenons pour hypothèse que le grain est en équilibre hydrique avec l'ambiance avant carbonatation. L'humidité relative aux limites est donc choisie en fonction du degré de saturation initial selon l'isotherme de désorption de vapeur d'eau.

IV. RESULTATS ET DISCUSSION

Les simulations de carbonatation ont été réalisées pour une durée de 7 jours. La quantité de CO₂ fixée par le grain (g) est rapportée à la masse du grain initiale (kg). Deux paramètres ont une influence majeure : le degré de saturation initiale (S) et la taille du grain (figure 1). Pour un faible degré de saturation (S = 0,3), cette dernière n'a quasiment pas d'effet, alors que pour un matériau fortement saturé (S = 0,9) la taille conditionne beaucoup la vitesse de piégeage.

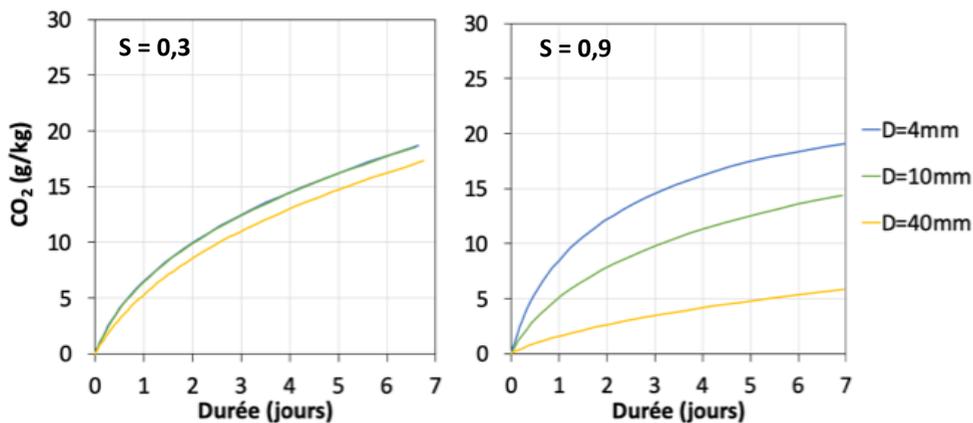


FIGURE 1. Évolution de la teneur en CO₂ du grain pour 3 diamètres et 2 degrés de saturation initiaux.

La figure 2 met en évidence cette différence de comportement en donnant les profils de concentration en CaCO₃ formés par carbonatation. Pour S = 0,3, la concentration en CaCO₃ est quasiment homogène dans le grain à toutes les échéances. Le CO₂ gazeux diffuse rapidement dans le grain pour le saturer car le coefficient de diffusion pour cette faible saturation est très élevé. La vitesse de carbonatation est contrôlée dans ce cas par les termes « puits » du modèle (r_{CH} , r_{CSH}), c'est-à-dire par les cinétiques chimiques. A l'inverse pour S = 0,9, la carbonatation est contrôlée par le transport du CO₂ par diffusion qui est plus lent que les réactions chimiques. A 3 jours

d'exposition, on note ainsi une absence de carbonatation du cœur du grain (rayon = 0). En surface, en revanche, la carbonatation est plus rapide pour $S = 0,9$ et pour $S = 0,3$. La carbonatation y est surtout pilotée par la réactivité chimique qui est plus élevée aux fortes teneurs en eau.

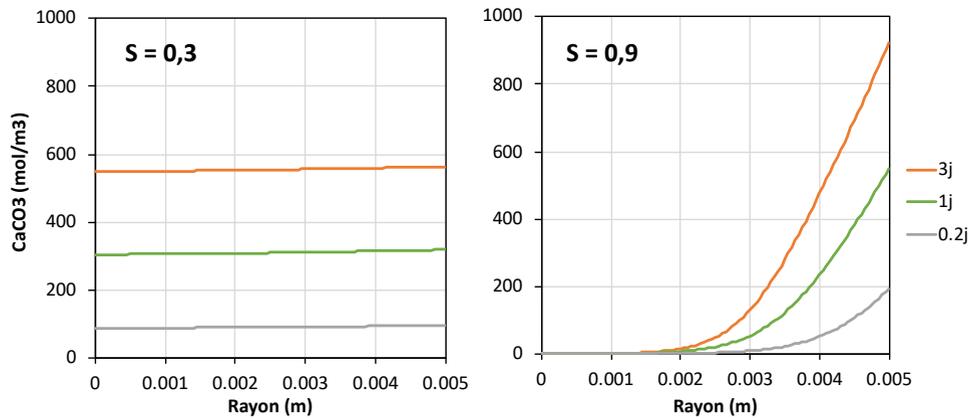


FIGURE 2. Profils de CaCO_3 formé par carbonatation pour 2 degrés de saturation en eau.

V. CONCLUSION

Les études numériques de la carbonatation des GBR nous permettent de mieux comprendre l'influence de paramètres tels que la taille du granulat et sa teneur en eau. La vitesse de piégeage du CO_2 est contrôlée par la diffusion et les cinétiques chimiques. La modélisation nous permettra de déterminer la taille critique en dessous de laquelle la diffusion du CO_2 n'a plus d'influence.

REFERENCES

- Boumaaza, M., Huet, B., Pham, G., Turcry, Ph., Aït-Mokhtar, A., Gehlen, C. (2018). A new test method to determine the gaseous oxygen diffusion coefficient of cement pastes as a function of hydration duration, microstructure and relative humidity. *Mat and Struct*, 51.
- De Larrard, T., Bary B., Adam E., Kloss F. (2013). Influence of aggregate shapes on drying and carbonation phenomena in 3D concrete numerical samples. *Comp Mat Sci*, 72, 1-14.
- Gendron, F. (2019). Carbonatation des matériaux cimentaires, Étude de la diffusion du CO_2 , Thèse de doctorat, La Rochelle Université.
- Millington, R.J. (1959). Gas diffusion in porous media. *Science*, 130, p.100-102.
- Pacheco Torgala, F., Miraldo, S., Labrincha, J.A., De Brito, J. (2012). An overview on concrete carbonation in the context of eco-efficient construction: Evaluation, use of SCMs and/or RAC, *Constr Build Mat*, 36, 141-150.
- Thiery, M. (2005). Modélisation atmosphérique des matériaux cimentaires, Prise en compte des effets cinétiques et des modifications microstructurales et hydriques. Thèse de doctorat, ENPC.
- Younsi, A., Turcry, Ph., Rozière, E., Aït-Mokhtar, A., Loukili, A. (2011). Performance-based design and carbonation of concrete with high fly ash content, *Cem Concr Comp*, 33, 993-1000.