

---

# Caractérisation expérimentale des propriétés chimio-mécaniques de l'interphase pâte de ciment – granulat par MEB et nano-indentation

A. Gîrboveanu<sup>1, 3</sup>, M. Jebli<sup>1,2</sup>, F. Jamin<sup>1,2</sup>, V. Huon<sup>1</sup>, D. P. Georgescu<sup>3</sup>, M. S. El Youssoufi<sup>1, 2</sup>,

*1 LMGC, Univ. Montpellier, CNRS, Montpellier, France*

*2 MIST Lab., IRSN, CNRS, Univ. Montpellier, France*

*3 Laboratoire du Département de Constructions en Béton Armé – Université Technique de Constructions de Bucarest, Bucarest, Roumanie*

---

*RÉSUMÉ. Cet article présente une étude expérimentale des propriétés chimiques et mécaniques de l'interphase pâte de ciment / granulat. La zone d'interphase est la zone de la pâte de ciment qui se trouve à proximité immédiate du granulat sur une épaisseur d'environ 20 – 50 µm et qui possède des propriétés mécaniques et chimiques différentes de celles de la pâte de ciment pure. Des échantillons composites pâte de ciment / granulat calcaire ont été conçus et préparés afin de permettre l'étude des propriétés chimiques et mécaniques de l'interphase. La pâte de ciment est réalisée à base de ciment Portland avec un rapport E/C de 0,4. Les profils de concentration en Calcium réalisés autour la zone de l'interphase montrent une forte concentration en calcium due à la présence de la portlandite. Les essais de nano-indentation indiquent une zone de faiblesse au niveau de l'interphase.*

*ABSTRACT. This article presents an experimental study of the chemical and mechanical properties of the interphase cement paste / aggregate. The interphase zone is the zone of the cement paste which is in the immediate vicinity of the aggregate to a thickness of about 20 - 50 µm and which has different mechanical and chemical properties compared to the pure cement paste. Cement paste / limestone aggregate composite samples were fabricated to allow the study of the chemical and mechanical properties of the interphase. The cement paste is made of Portland cement with an W / C ratio of 0.4. Calcium concentration profiles around the interphase area show a high concentration of calcium due to the presence of portlandite. The nano-indentation tests indicate a zone of weakness at the interphase level.*

*MOTS-CLÉS : INTERPHASE PATE DE CIMENT / GRANULAT (ITZ), MEB, CALCIUM, PORTLANDITE, NANO-INDENTATION.*

*KEY WORDS: INTERNAL TRANSITION ZONE, LEACHING, SEM, CALCIUM, PORTLANDITE, NANOINDENTATION.*

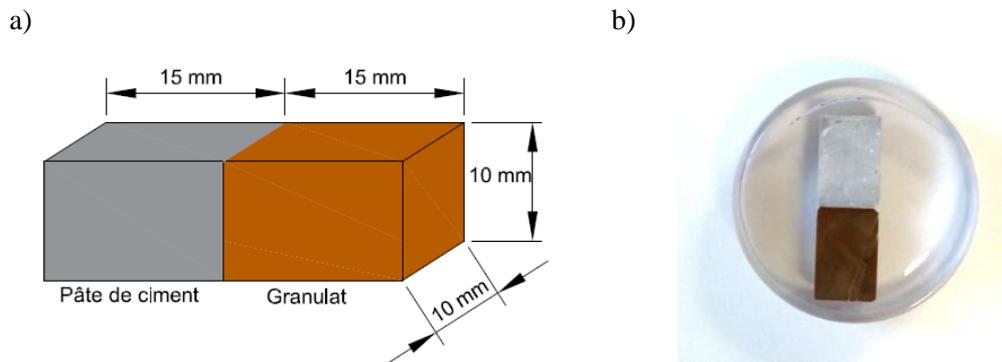
---

## 1. Introduction

Le béton à l'état final présente une structure triphasique : granulats, pâte de ciment durcie, interphase. La pâte de ciment durcie est formée par les produits d'hydratation : la matrice de silicates de calcium hydratés (C-S-H) et des cristaux de portlandite (CH) et d'ettringite. La portlandite, sous forme de cristaux hexagonaux, est une espèce chimique fortement soluble qui se trouve en quantité plus importante au niveau de l'interphase. L'interphase est une zone de pâte de ciment se trouvant à proximité immédiate du granulat dont l'épaisseur varie entre 20 et 50  $\mu\text{m}$ . Plusieurs phénomènes, dont notamment l'effet de paroi et le ressuyage, favorisent la formation de cette zone de plus forte porosité [LEE 06]. Par conséquent, l'interphase est caractérisée par des propriétés mécaniques plus faibles que celles de la pâte de ciment pure [JEB 16], [XU 17]. La nature du granulat influe également sur la structure chimique de cette interphase. Les granulats calcaires, dits réactifs, permettent une meilleure adhérence que les granulats siliceux [KAM 14]. L'objectif de cette étude est de caractériser d'un point de vue chimique et mécanique les gradients qui se développent au niveau de l'interphase pâte de ciment - granulat, dans le contexte d'une étude plus large sur la dégradation chimique de l'interphase.

## 2. Protocole expérimental

Dans cette partie, nous allons présenter le protocole expérimental de réalisation des échantillons et de leurs conditionnements, ainsi que les méthodes employées pour la caractérisation chimique et mécanique de l'interphase. Les échantillons de forme parallélépipédique sont constitués d'une pâte de ciment pure et d'un granulat calcaire formant ainsi un composite d'un volume total de  $10 \times 10 \times 30 \text{ mm}^3$  (fig. 1a). La pâte de ciment a été préparée avec un ciment CEM I 52,5 avec un rapport Eau/Ciment de 0,4. Les granulats calcaires sont originaires de la carrière de Villeneuve Lès Maguelone. Après la fabrication, les échantillons ont été conservés dans de l'eau saturée en chaux pendant 90 jours afin d'éviter une dégradation précoce. Afin de permettre les observations au Microscope Électronique à Balayage (MEB) et la nano-indentation, les échantillons ont été enrésinés et polis afin d'assurer une surface suffisamment lisse (fig. 1b).



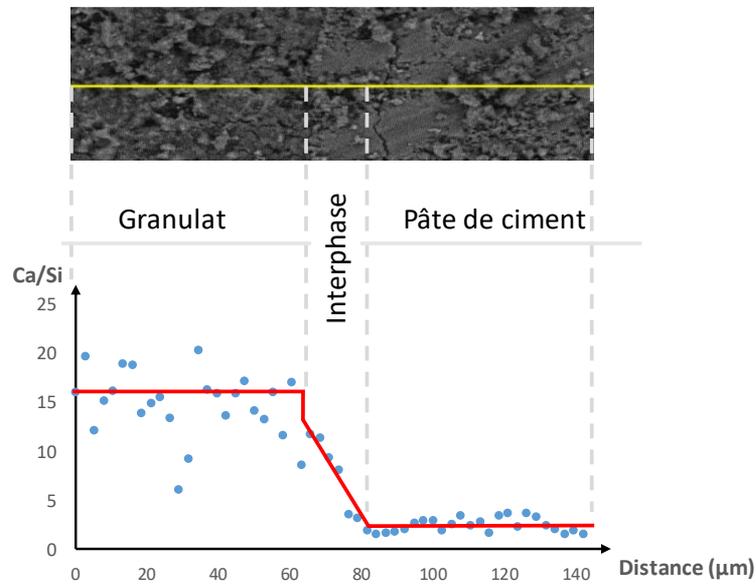
**Figure 1.** Configuration géométrique de l'échantillon (a) et la capsule qui a servi à la réalisation de la section polie (b)

## 3. Résultats expérimentaux

### 3.1. Microscope Électronique à Balayage

Le MEB permet des analyses chimiques par la technique EDS (Energy Dispersive X-ray spectrometry). En analysant plusieurs points sur une même ligne prédéfinie, il est possible d'obtenir le profil longitudinal de concentration de plusieurs éléments chimiques, notamment le calcium (Ca) et le silicium (Si). Les silicates de calcium hydratés (C-S-H) sont caractérisés par des rapports massiques Ca/Si compris entre 2 et 3 et des rapports  $\text{Ca/Si} > 3$  sont associés à des zones riches en portlandite (CH) [NGU 13].

Les profils du rapport massique Ca/Si réalisés en direction perpendiculaire à l'interphase (fig. 2) montrent des zones de forte concentration en calcium dans les 15-20  $\mu\text{m}$  suivant le granulat. Le rapport Ca/Si au niveau de l'interphase varie entre 15 dans la proximité du granulat et 2-3 au cœur de la pâte de ciment.

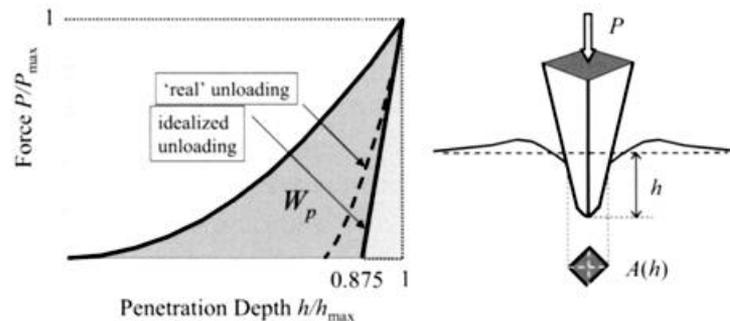


**Figure 2.** Gradient du rapport Ca/Si au niveau de l'interphase

### 3.2. Nano-indentation

La nano-indentation est une technique employée pour caractériser les propriétés mécaniques du matériau à une échelle très réduite et qui est dérivée des techniques de mesure de la dureté. Une mesure d'indentation suppose la pénétration du matériau par une aiguille sur une profondeur inférieure au micromètre permettant l'analyse de la réponse mécanique du matériau. Selon les dimensions de l'empreinte de l'aiguille utilisée, il est possible d'en déduire la dureté locale. La pente de la courbe force / profondeur en début de la portion de décharge permet de mesurer le module d'indentation en supposant qu'en début de décharge la réponse du matériau est élastique (fig. 3). La réalisation des grilles de points d'indentation suffisamment étendues donne accès aux propriétés mécaniques du matériau par l'intermédiaire d'indicateurs statistiques.

Dans cette étude, la nano-indentation a été utilisée pour quantifier le gradient de dureté et de rigidité au niveau de l'interphase. Dans cet objectif, des grilles d'indentation ont été réalisées au niveau de l'interphase avec un minimum de 5 points d'indentation pour une distance donnée par rapport à la surface de contact pâte de ciment / granulat. Le gradient de propriétés mécaniques a été réalisé en moyennant toutes les valeurs de la dureté et du module d'indentation pour des points situés à la même distance par rapport à la surface de contact pâte de ciment / granulat.



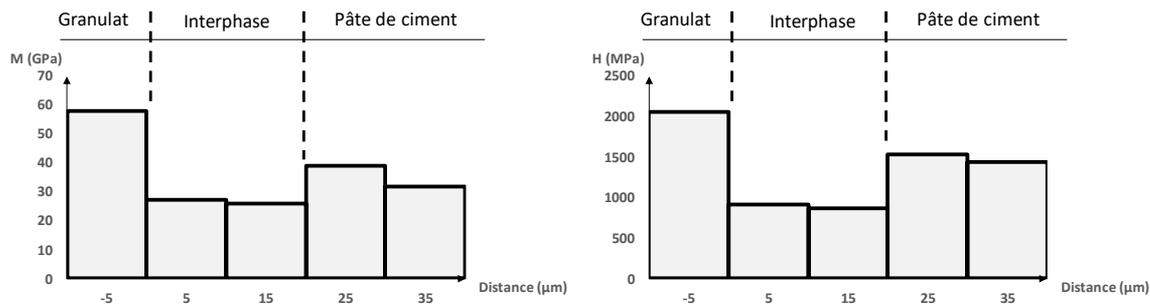
**Figure 3.** Principe de l'essai de nano-indentation. Mesure du module d'indentation (gauche) et de la dureté (droite) [CON 07]

La figure 4 montre les résultats moyennés sur les 10  $\mu\text{m}$  du module d'indentation et de dureté. On remarque la présence de trois zones :

- Une zone très rigide et dure représente le granulat.
- Une deuxième zone, moins rigide, où une baisse des propriétés mécaniques sur une distance de 20  $\mu\text{m}$  est observée. Cette zone représente la zone d'interphase.

- Une troisième zone dans laquelle on note une remontée des valeurs du module d'indentation et de la dureté. Cette zone correspond à la pâte de ciment.

Les résultats de la nano-indentation montrent que la zone de 20  $\mu\text{m}$  dans le voisinage du granulat est associée à l'interphase. Le rapport entre le module d'indentation moyen de l'interphase et celui de la pâte de ciment vaut 0,75 tandis que le rapport entre la dureté moyenne de l'interphase et celle de la pâte de ciment vaut 0,6.



**Figure 4.** Gradient du module d'indentation et de la dureté au niveau de l'interphase

#### 4. Discussion

Les résultats des observations chimiques (MEB) et de la nano-indentation indiquent une zone avec une épaisseur d'environ 20  $\mu\text{m}$  avec des propriétés différentes de celles de la pâte de ciment. Du point de vue chimique, cette zone est caractérisée par un rapport Ca/Si élevé, ce qui suggère une forte teneur en portlandite. Malgré le fait que les cristaux de portlandite sont plus durs que les particules de C-S-H, ils participent peu au développement des propriétés mécaniques de la pâte de ciment. Les résultats des essais de nano-indentation indiquent pour l'interphase des moins bonnes propriétés mécaniques par rapport au cœur de la pâte de ciment sur la même épaisseur que l'analyse chimique EDS – 20  $\mu\text{m}$ .

En conclusion, les analyses chimiques au MEB et la nano-indentation ont révélé une zone d'environ 20  $\mu\text{m}$  d'épaisseur caractérisée par une forte concentration en portlandite, une porosité élevée et des propriétés mécaniques inférieures par rapport au cœur de la pâte de ciment. Cette zone peut constituer une phase privilégiée pour la dégradation chimique et sa propagation.

**Remerciements :** Les auteurs remercient le Laboratoire Charles Coulomb, et notamment Messieurs Laurent Bonnet et Pascal Etienne, pour l'aide apportée à la réalisation des essais de nano-indentation.

#### 5. Bibliographie

- [CON 07] CONSTANTINIDES G., ULM F.-J., VAN VLIET K., « On the use of nanoindentation for cementitious materials », *Materials and structures*, vol. 36, n° 3, 2003, p. 191-196.
- [JEB 16] JEBLI M., Caractérisation à l'échelle locale des propriétés mécaniques de l'interphase pâte de ciment-granulat et application à la lixiviation, Thèse de doctorat, Université de Montpellier, 2016.
- [KAM 14] KAMALI-BERNARD S., KEINDE D., BERNARD F., « Effect of aggregate type on the concrete matrix/aggregates interface and its influence on the overall mechanical behavior. A numerical study », *Key Engineering Materials*, vol. 617, 2014, p. 14-17.
- [LEE 06] LEEMAN A., MÜNCH B., GASSER P., HOLZER L., « Influence of compaction on the interfacial transition zone and the permeability of concrete », *Cement and Concrete Research*, vol. 36, n° 8, 2006, p. 1425-1433.
- [NGU 13] NGUYEN T. D., Etude de la zone d'interphase « granulats calcaires poreux-pâte de ciment » : influence des propriétés physico-mécaniques des granulats ; conséquence sur les propriétés mécaniques du mortier, Thèse de doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne, 2013.
- [XU 17] XU J., BINBIN W., ZUO J., « Modification effects of nanosilica on the interfacial transition zone in concrete: A multiscale approach », *Cement and Concrete Composites*, vol. 81, 2017, p. 1-10.